THÈSE / UNIVERSITÉ DE RENNES 1

sous le sceau de l'Université Européenne de Bretagne

pour le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE RENNES 1

Mention : Sciences de la Terre

Ecole doctorale Sciences de la Matière

présentée par

Sarah Leray

préparée à l'unité de recherche UMR6118

Géosciences Rennes

UFR Sciences et Propriétés de la Matière

Caractérisation des aquifères de socle cristallin et de leur ressource en eau

-

Apport des données d' « âge » de l'eau

Thèse soutenue à Rennes le 12/12/2012

devant le jury composé de :

Fabrice GOLFIER
Maître de conférence, LAEGO-ENSG / *rapporteur*

Julio GONCALVES
Professeur, CEREGE/ *rapporteur*

Jérôme GAILLARDET
Professeur, IPGP / *examinateur*

Kerry GALLAGHER
Professeur, GEOSCIENCES RENNES/ *examinateur*

Hélène PAUWELS
Experte, BRGM / *examinateur*

Jean-Raynald DE DREUZY
Chargé de recherche, CNRS / *directeur de thèse*

Luc AQUILINA
Professeur, GEOSCIENCES RENNES / *invité*

Olivier BOUR
Professeur, GEOSCIENCES RENNES / *invité*

Résumé

Jadis délaissés au profit des milieux plus simples et/ou accessibles, les milieux souterrains fracturés, notamment ceux de socle cristallin, bénéficient désormais d'un intérêt croissant vue leur capacité à constituer de réelles ressources en eau. La compréhension de ces systèmes apparaît donc comme un enjeu majeur en hydrogéologie.

Nous explorons avant tout la possibilité de structures portant une ressource en eau autres que celles jusqu'à présent identifiées *i.e.* la zone altérée et les fractures régionales sub-verticales. Nous identifions à ce propos les fractures locales à faible pente, confirmant ainsi certaines observations de site comme celles réalisées sur l'aquifère de socle cristallin de Plœmeur (Bretagne). Nous étudions ensuite l'apport des données d'« âge » pour la caractérisation des systèmes hétérogènes complexes et de leur ressource. Issues de mesures de concentration, elles sont classiquement utilisées dans les milieux peu hétérogènes pour quantifier la recharge. Nous reconsidérons ici leur sensibilité et montrons, en cohérence avec le degré d'incertitude des propriétés, qu'elles peuvent autant servir à caractériser la structure du champ de vitesse plutôt que sa magnitude. Par une réflexion plus générale sur leur contenu informationnel, nous montrons aussi qu'elles ne peuvent seules identifier le modèle d'écoulement et la distribution des temps de résidence associée, en raison de leur caractère intégrateur. Il en résulte pléthore de modèles cohérents avec les données même si peu pertinents pour la prédiction tel que le modèle exponentiel. Nous proposons au final les moyens de contrecarrer cet écueil par une utilisation spatiale et temporelle de la donnée.

Mots clefs: hydrogéologie, milieux fracturés, ressources en eau, âge de l'eau, traceurs environnementaux, modèles hydrogéologiques conceptuels, distribution des temps de résidence.

Abstract

Fractured media have been traditionally less explored and exploited compared to simpler and more accessible ones. However, they are now much more under consideration as they may actually constitute viable groundwater resources. Understanding this type of medium is thus a main stake of hydrogeology.

We first propose to explore groundwater resources bearing structures in hard-rock systems other than the already identified ones, *i.e.* the weathered zone and regional sub-vertical fractured zones. In this connection, we identify local sub-horizontal fractured zone. This type of structures may apply to aquifers for which traditional models fail, like the Plœmeur hard-rock aquifer (Brittany). We then study the contribution of age data for characterizing complex heterogeneous systems and their resource. Emerging from concentration measurements, these data are classically used in fairly homogeneous models to quantify recharge. Yet, we reconsider their sensitivity and show that, considering the properties uncertainty in complex systems, they can be used to quantify the velocity field structure rather than its magnitude. Carrying out a more general thought about their information content, we also show that being integrative data, a sole data cannot identify flow model and the associated residence time distribution. This results in plenty of consistent models, yet inadequate for prediction *e.g.* the exponential model. We finally propose ways to counteract this difficulty using spatial and temporal distribution of data.

Keywords: hydrogeology, fractured aquifers, groundwater resources, groundwater age, environmental tracers, conceptual hydrogeological models, residence time distribution.

Remerciements

Comme à mon habitude, je vais faire deux versions pour les remerciements. Le lecteur, selon son courage, pourra choisir l'une ou l'autre.

Version courte :

Merci à tous !

Version (très) longue[1] *:*

Merci, dans le désordre:

- Aux personnes que j'ai oubliées dans ces remerciements !
- Aux reviewers de mes articles (même pas besoin de les soudoyer !), aux membres du jury à qui j'espère avoir transmis l'essence de l'âge de l'eau.
- A Catherine qui gère toujours parfaitement les missions de l'équipe ; à Eddie qui m'a appris à me servir de la machine à relier ; à toutes les personnes, en général, qui œuvrent au quotidien pour rendre le labo agréable à vivre.
- A Christian, le messie de GoCad. Il a su faire abstraction de tous ses principes pour transmettre une partie de son savoir à un individu du sexe faible. Chapeau l'artiste !
- Aux compagnons de tarot, Alain, Charlotte, Christian, Claudine, Eline, Gloria, (Radio) Gwen, Justine et Laurie – « Allez, encore une ! » ; aux occupants de la salle 222 en général, Anne-Claire, Aurélie, Fabien, Justine, Marie, Paul, Sylvia et bien d'autres…
- A la communauté d'h2olab, Aurélien, Baptiste, Edouard, Grégoire, Jocelyne, Nadir, Thomas et particulièrement Géraldine – sa bonne humeur est un plaisir à chaque fois.
- Au QG Café (mais comment faites-vous pour travailler dans ces conditions !?) : Rébecca et Clément pour nous nourrir, pour leur altruisme et leur générosité sans limite ; « Titi » Antoine parce qu'il est Normand et, qui plus est, Condéen – et qu'il a, à ce titre, toute mon estime ; Jérôme pour ses petits desserts ainsi que sa constante bonne humeur.
- A mes collègues de bureau, Jérémy qui par sa présence à temps ± complet a agrémenté mes journées au moins autant que la plante du bureau. Je retiens : « Toujours voir le côté fun ! » ; Maria, imperturbable, inébranlable ! La Russie nous envoie Maria, la France lui envoie Gérard. On gagne au change ; plus éphémèrement, Julien : sa perpétuelle complainte à propos du temps breton me fait espérer que le paradis sur Terre existe bel et bien. Par paradis, j'entends « lieu où le soleil n'est pas un mythe » ; plus récemment,

[1] Presque aussi ~~pénible~~ longue que le Seigneur des Anneaux !

Régis : *n.m.* individu né pour être en retard ; et Eline, mon binôme dans l'éducation d'un Régis (cf. définition plus haut).

- A mes compagnons dans la quête du graal, j'ai nommé l'âge de l'eau : Luc, Olivier, Tanguy, Thierry et Virginie. J'espère avoir fait avancer le Schmilblick.
- A tous ceux qui font ou ont fait l'équipe hydrau et le labo: Alex, Aline, Annick, Caro de Lausanne, Kristofferson, Delphine, Etienne, Homonyme, Docteur Jimenez, Jo, Laure, Laurent, Loïc, Morgane, Nico, Philippe(s), monsieur pâtes Pietro, Pascal, Romain, Seb, Thibault, Yves…
- A Feña, « Poj favoj ! »
- Aux Barcelonais, Amanda, Alexis et Amélie, pour avoir largement contribué à faire de mon séjour à Barcelone une expérience inoubliable.
- A ma famille : mon père Vincent, scientifique dans l'âme, il a toujours montré un grand intérêt à ce que je fais ; mon frère Cédric, ma naissance l'a fait pleurer, ma soutenance l'a fait dormir – on progresse ;-) ; Mamie Margot, « non, Mamie, je n'ai plus d'examens » ; les Mayet qui ont fait le (très) long déplacement ! à mes oncles, tantes et cousin(e)s en général.
- A mes amis : Amélie, Céline « Bébeille », Emilie « Maman », Fabrice, Jacky « la 5ème copine », Solène, Tancrède et Thibault. Même si la recherche ne vous parle pas toujours, votre support indéfectible a été essentiel tout au long de ces années. Plus que les mots, les valeurs que l'on partage m'ont été d'un secours immense dans les moments personnels les plus difficiles. Vous êtes ma base, merci pour ça.
- *Last but not least*, à mon directeur de thèse Jean-Raynald, aussi appelé « papa JR » par ses étudiants. Peut-on rêver meilleur chef ? D'ailleurs, « chef » est-il si approprié tant ce qu'il transmet est bien au-delà de simples directives ? Comme quoi, on peut avoir une tête bien pleine et un cœur généreux. En espérant que notre collaboration perdure !

Allez, Sarah croche !

Un pas devant, quoi qu'il arrive

Table des matières

Préambule 1

Liste des symboles 3

Chapitre 1 Introduction 5

1.1. Ressources en eau dans les aquifères de socle cristallin 5

1.1.1. Introduction 5

1.1.2. Les milieux fracturés 6

1.1.3. Caractéristiques et occurrence des aquifères de socle cristallin 7

1.1.4. Occurrence de la ressource en eau dans les aquifères de socle cristallin 11

1.1.5. Discussion sur les modèles de ressource en eau dans les aquifères de socle cristallin 14

1.2. Les données d'« âge » de l'eau 16

1.2.1. Estimer l'âge de l'eau : exemple des gaz atmosphériques 16

1.2.2. Processus affectant la concentration 18

1.2.3. Double intégration de l'information 21

1.2.4. Contenu de l'information et sa variabilité 23

1.2.5. Lisibilité de l'information 25

1.2.6. Utilisations classiques des données d'âge 31

1.2.7. Utilisation conjointe de différents types de données 34

1.2.8. Discussion sur la donnée d'âge 35

1.3. Démarche de la thèse et méthodologie 37

Chapitre 2 Matériel et méthodes 39

2.1. Développements numériques au sein de la plateforme h2olab 39

2.1.1. H2olab et son consortium 39

2.1.2. Contributions personnelles 45

2.2. Développement d'utilitaires sous Matlab 59

2.2.1. Produit de convolution 59

2.2.2. Manipulation de fichiers et autres utilisations 60

2.3. Site de Plœmeur (Bretagne) 62

2.3.1. Introduction générale 62

2.3.2. Données et contraintes 63

2.3.3. Conclusions sur le site 71

Chapitre 3 Recherche de structures porteuses d'une ressource en eau en contexte cristallin 73

3.1. Introduction 73

3.2. *Numerical modeling of the productivity of vertical to shallowly dipping fractured zones in crystalline rocks* (article publié) 74

3.3. Conclusions 87

Chapitre 4 Apport des données d'âge pour la caractérisation des structures complexes très hétérogènes 89

4.1. Introduction 89

4.2. *Contribution of age data to the characterization of complex aquifers* (article publié) 91

4.3. Résultats complémentaires 107

4.3.1. Acquisition du temps dans chaque structure 107

4.3.2. Modèle d'écoulement 110

4.3.3. Taux de dilution : estimation du pôle profond 112

4.4. Conclusions 115

Chapitre 5 Contenu informationnel des chroniques d'âge apparent 117
5.1. Introduction 117
5.2. *Temporal evolution of age data under transient pumping conditions* (article soumis) 119
5.3. Résultats complémentaires 158
5.3.1. Rapidité du changement de mélange : cohérence avec les données de température 158
5.3.2. Taux de dilution : estimation du pôle profond 159
5.4. Conclusions 160
Chapitre 6 Discussion et perspectives 163
6.1. Ressources en eau 163
6.1.1. Perspectives : taille des boucles de circulation (échelle régionale) 163
6.1.2. Perspectives : diversion de la recharge (échelle locale) 164
6.2. Apport des données d'âge 165
6.2.1. Terminologie 165
6.2.2. Pour la ségrégation de modèles hydrogéologiques 165
6.2.3. Pluralité de l'information 166
6.2.4. Pour la caractérisation de la ressource 169
6.3. Compréhension du site de Plœmeur 171
Chapitre 7 Conclusion générale 173
Table des illustrations 175
Références 179

Préambule

On associe souvent la naissance de l'hydrogéologie aux travaux de Henry Darcy (1856) qui aboutirent à la mise en place de la célèbre loi éponyme d'écoulement dans les milieux poreux. Il aura fallu plus d'un siècle pour que l'on s'intéresse aux milieux fracturés. Ces milieux sont composés d'une roche relativement peu perméable, la matrice, présentant des fissures et/ou des failles. Non seulement la fracturation crée de l'hétérogénéité mais en plus les fractures elles-mêmes ont des propriétés géométriques et hydrodynamiques extrêmement variables. L'hétérogénéité des milieux fracturés amplifie très fortement la difficulté de la démarche de caractérisation, difficulté par ailleurs inhérente au fait que les systèmes souterrains ne sont pas visibles. Cette limitation résulte en une réelle difficulté à comprendre les paramètres clés des écoulements et, le cas échéant, de l'occurrence d'une ressource en eau viable.

Pourtant, si difficile que cette caractérisation puisse paraître, elle n'en reste pas moins essentielle. En effet, les systèmes souterrains fracturés se révèlent être finalement plus perméables que supposé, surtout en profondeur, et ainsi une réelle alternative aux ressources en eau classiques, parfois soumises à des pressions démographiques fortes ou plus sensibles aux pollutions. Ils sont aussi parfois la seule ressource en eau disponible, c'est le cas dans certains pays arides. La compréhension des systèmes souterrains fracturés apparait donc comme un enjeu majeur en hydrogéologie, et surtout dans la recherche de nouvelles ressources. Jusqu'à maintenant deux structures ont été identifiées comme porteuses d'une ressource en eau, la zone altérée proche de la surface et les failles sub-verticales associées à des linéaments. Pourtant, des observations montrent que des sites n'entrent pas dans ce cadre, c'est le cas de l'aquifère de Plœmeur (Bretagne). Partant de ce constat, plusieurs questions se posent : existe-t-il d'autres ressources susceptibles de fournir une ressource en eau viable ? Et si c'est le cas, quel est le dénominateur commun qui caractérise ces structures ?

Autre question légitime : comment les identifier ? Les données communément disponibles sur un site sont les niveaux piézométriques mais elles ont le désavantage d'être assez sensibles aux conditions locales. Les données géophysiques et géodésiques, telles que la tomographie électrique et la gravimétrie, permettent d'accéder à l'organisation de l'hétérogénéité mais cette mesure est uniquement d'ordre géologique. Elle est aussi très intégrative et souvent limitée aux premières dizaines de mètres. Quant aux données d'âge qui ne sont en fait que les concentrations de certains éléments chimiques, elles sont assez classiquement utilisées pour

caractériser la recharge dans des systèmes simples mais sont, de manière générale, sensibles à tout paramètre influençant le champ de vitesse. Comment appréhender ces données dans les systèmes fracturés ou très hétérogènes ? Peut-on caractériser la ressource en eau des aquifères complexes de socle ? Quelle est la pertinence des modèles d'écoulement et de prédiction *via* la distribution des temps de résidence initialement formulés pour des milieux homogènes ?

Le Chapitre 1 (page 5) consiste en une partie introductive dédiée à la présentation des connaissances actuelles vis-à-vis de la ressource en eau dans les aquifères de socle et des données d'âge de l'eau. Le Chapitre 2 (page 39) présente les outils utilisés et développés pour mener à bien les simulations numériques, approche choisie pour répondre aux différentes questions de la thèse. Le site de Plœmeur constitue le matériau de cette thèse en servant de mise en application des réflexions et résultats trouvés. Ce site dont le fonctionnement hydrogéologique n'est pas totalement compris est aussi présenté dans le Chapitre 2. C'est aussi un site pour lequel de nombreuses données sont disponibles et toutes localisées près du puits de pompage, conditions idéales pour (in)valider les modèles classiques tels que le modèle exponentiel. Une première étude (Chapitre 3, page 73) réalisée *via* des simulations numériques sur un modèle hydrogéologique générique est consacrée à l'exploration et à la caractérisation des structures porteuses de ressource en eau, en complément des structures classiques. Le Chapitre 4 (page 89) puis le Chapitre 5 (page 117) sont consacrés à la problématique des données d'âge comme outils de caractérisation des aquifères de socle cristallin, et plus généralement des aquifères complexes. Ces deux chapitres abordent le contenu informationnel de la donnée d'âge ainsi que les moyens d'accroître la quantité d'information. Le Chapitre 6 (page 163) rappelle et discute les différents résultats obtenus et pose les bases d'études futures dans la continuité de cette thèse. Le Chapitre 7 (page 173) clôt ce manuscrit de thèse.

Liste des symboles

Symbole	Dimension ou unité	Définition
A	T	Age déduit de la concentration d'un élément dissous, dit traceur, ou de son activité (isotope radioactif)
c	mol. L^{-3}	Concentration molaire d'un élément dissous
C_{in}	pptv	Fonction d'entrée d'un traceur (ex : chronique atmosphérique)
C_{in}^{-1}	T	Fonction conjuguée de la fonction d'entrée d'un traceur
dl	L	Déplacement infinitésimal
$\delta (x\text{-}x_0)$	-	Fonction Dirac, = 1 si $x = x_0$ = 0 sinon
h	L	Charge
H	L	Epaisseur de la zone saturée
K	L. T^{-1}	Conductivité hydraulique
K_H	mol. L^{-3}. atm^{-1}	Constante de Henry d'un élément dissous
l	L	Position le long d'une ligne d'écoulement
L	L	Longueur de la ligne d'écoulement
λ	T^{-1}	Constance de décroissance radioactive
p	atm	Pression partielle d'un gaz
p_{ATM}		Pression atmosphérique
p_{H2O}	atm	Pression de la vapeur d'eau
φ	-	Porosité

$p(t)$	-	Probabilité des temps de résidence t
Q	$L^3.\ T^{-1}$	Débit, en entrée ou en sortie, d'un réservoir
R	$L.\ T^{-1}$	Taux de recharge potentiel ou efficace, selon la formule
S	L^2	Surface d'alimentation d'un pompage
t	T	Temps de résidence sur une ligne d'écoulement
$\bar{t}$	T	Temps de résidence moyen
t_E	T	Temps de résidence moyen dans le cadre du modèle exponentiel
t_P	T	Temps de résidence moyen dans le cadre du modèle piston
t_m	-	Date de mesure ou d'échantillonnage
t_r	-	Date de recharge apparente
$t_{1/2}$	T	Temps de demi-vie d'un isotope radioactif
τ	T	Backward time ou temps de résidence régressif
v	$L.\ T^{-1}$	Vitesse sur une ligne d'écoulement
V	L^3	Volume échantillonné ou volume d'un réservoir
x	pptv	Teneur atmosphérique d'un gaz

Chapitre 1 Introduction

Ce chapitre est composé de deux parties indépendantes. La première traite des connaissances actuelles sur la ressource en eau dans les aquifères de socle cristallin et donne le cadre général de ce travail de thèse. La seconde partie aborde la problématique de la donnée d'âge : son sens, sa sensibilité, sa variabilité, son utilisation… Bien que les applications de cette donnée soient multiples (caractérisation de la chimie de l'eau et de son évolution, interaction surface/profondeur : processus de recharge; dynamique du ruissellement…), nous nous concentrons dans ce travail sur l'intégration de la donnée d'âge de l'eau dans le processus de conception d'un modèle hydrogéologique de site et son utilisation dans la détermination des paramètres critiques d'un système vis-à-vis de la ressource en eau.

1.1. Ressources en eau dans les aquifères de socle cristallin

Après une introduction sur le contexte de cette thèse et la place des milieux fracturés dans la recherche (1.1.1), nous présentons brièvement les différents types de milieux fracturés (1.1.2). Nous présentons ensuite les caractéristiques des aquifères de socle cristallin (1.1.3) et finalement les deux modèles explicatifs de l'occurrence de la ressource en eau dans ces aquifères (1.1.4).

1.1.1. Introduction

Les milieux souterrains fracturés sont typiquement composés d'une roche relativement peu perméable, la matrice, présentant des fissures et/ou des failles aux propriétés variables. Il en résulte des milieux très complexes pour lesquels l'hétérogénéité est *a priori* non prédictible. Les particularités des milieux fracturés que l'on détaille dans la partie suivante obligent à adapter les méthodes de caractérisation, d'exploitation et de protection.

Les milieux souterrains fracturés ont reçu une attention toute particulière ces dernières décennies (Figure 1-1). C'est d'abord pour les propriétés de la roche primaire que s'est développé cet intérêt. Sa très faible perméabilité induit des temps de résidence très longs (Neretnieks, 1990) et des écoulements très faibles ce qui en a fait un lieu privilégié pour le stockage de déchets nucléaires (Come et al., 1984) et de CO_2 (Koide et al., 1992; Vandermeer, 1995). La géothermie s'est aussi fortement développée dans les années 1980 (Bödvarsson and

Tsang, 1982; Murphy et al., 1981) devant s'adapter aux spécificités de ces milieux, notamment à la problématique de la diffusion dans la matrice. Enfin, en termes de ressources en eau, les fortes pressions environnementales et démographiques appliquées aux autres ressources en eau douce ont fortement favorisé le développement de cette branche de la recherche. Citons à ce propos les pollutions diffuses affectant majoritairement les masses d'eaux de surface telles que les rivières, les eaux souterraines pouvant bénéficier quant à elles d'une épuration naturelle par les roches. Mentionnons aussi l'augmentation de la pression démographique et sociale (consommation domestique propre) et de la pression économique (agriculture, énergie, industrie) faisant des ressources souterraines classiques des milieux désormais sous forte contrainte (UNESCO, 2009). Réputés très peu perméables, les milieux fracturés se sont aussi révélés parfois relativement productifs ce qui a encouragé leur étude. Les milieux fracturés sont aussi explorés pour d'autres applications telles que celles concernant leur caractère pétrolifère ou gazifière.

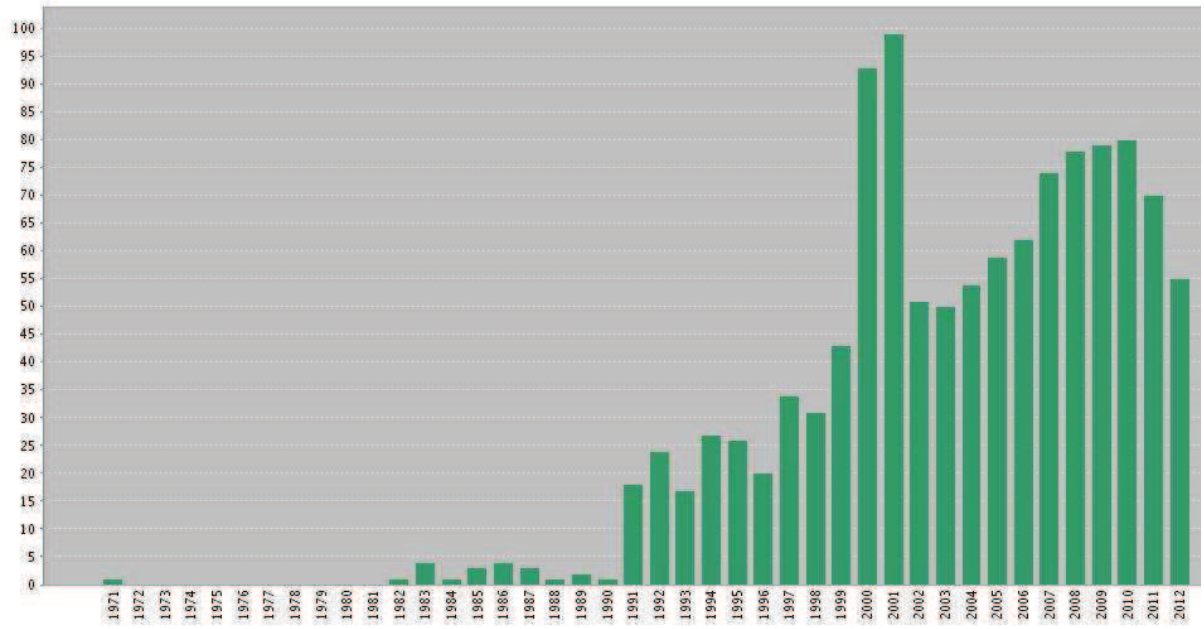


Figure 1-1: Histogramme du nombre de publications ayant pour sujet « fractured aquifers ». La recherche est basée sur le site Web of Knowledge. Les résultats sont similaires pour une recherche ayant pour sujet « hard-rock aquifers » et pour une recherche étant en plus dans le domaine « water resources ».

1.1.2. Les milieux fracturés

Les milieux fracturés englobent un certain nombre de types d'aquifère qui diffèrent par les minéraux rencontrés, l'intensité de la fracturation, son mode de formation et sa dynamique (Figure 1-2). Les roches clastiques sont des dépôts sédimentaires (sables, limons, argiles…)

fragmentés par l'érosion et parfois redéposés. Elles disposent d'une assez bonne porosité primaire et d'une fracturation modeste. Les roches carbonatées, souvent nommées karst, sont des roches d'origine sédimentaire, principalement calcaires, dans lesquelles les cavités sont obtenues par dissolution de la roche mère (érosion hydrochimique et hydraulique). Les cavités ont une dynamique temporelle assez marquée comparée aux autres roches fracturées. Les aquifères de socle recouvrent plus de la moitié de la surface des continents. Ils regroupent les roches d'origine volcanique – formées par la solidification rapide en surface de roches magmatiques – et celles d'origine cristalline – formées par refroidissement très lent du magma et cristallisation totale. Les roches volcaniques sont souvent intercalées de roches sédimentaires à la manière d'un système multicouches.

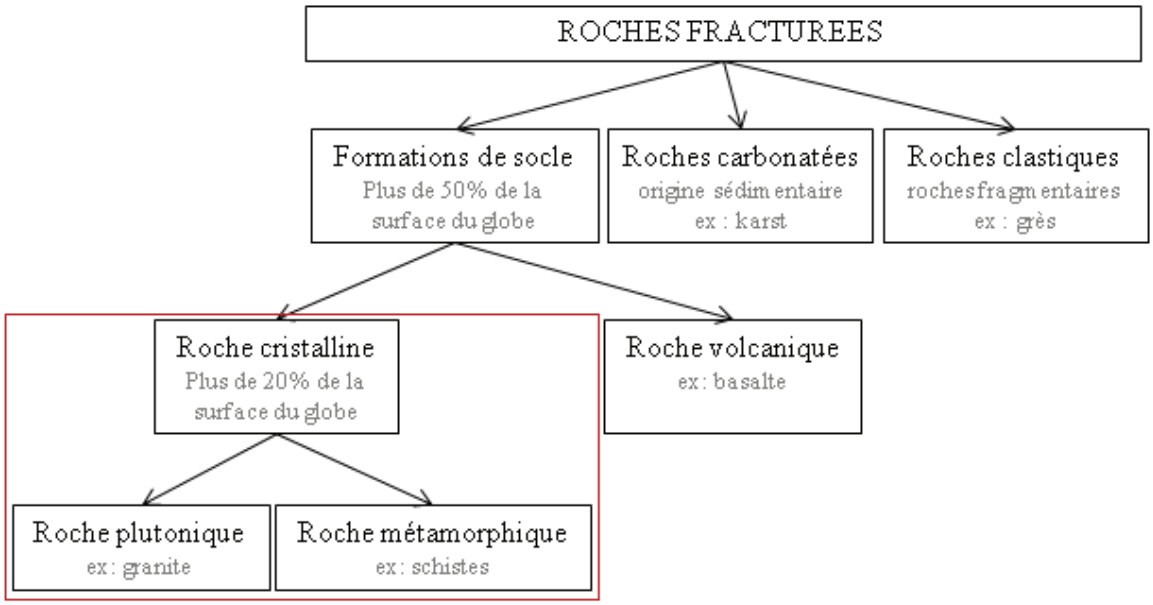


Figure 1-2: Classification des roches fracturées.

1.1.3. Caractéristiques et occurrence des aquifères de socle cristallin

Nous nous concentrons sur les aquifères de socle cristallin constitués de roches plutoniques (ex : granite) et de roches métamorphiques (ex : schistes). Présents sur tous les continents (Figure 1-3), ils sont souvent issus de massifs montagneux anciens : ils sont typiquement composés d'une roche mère cristalline fracturée et d'un encaissant partiellement altéré (Wyns et al., 2004). La productivité de ces aquifères excèdent rarement 30 m^3/h (Figure 1-4).

Figure 1-3: Occurrences principales des aquifères de socle cristallin dans le monde, d'après Singhal et Gupta (1999).

Rock type	Region	Well yield (m^3/h)	Well depth (m)	Source
Granite-gneiss	Southern and eastern India	15-80	3-150	(CGWB, 1995b; UNESCO, 1984)
Granite-gneiss, Charnockite	Tamilnadu, South India	6-18	30-70	(Perumal, 1990)
Granite and gneiss	Kwara, Nigeria	9.5	50-75	(Houston, 1992)
Granite and gneiss	Victoria, Zimbabwe	4.1	20-30	(Houston, 1992)
Gneiss (fractured)	Maharashtra, India	48	164	(CGWB, 1995a)
Granodiorite and gabbro (fractured)	Lee Valley, USA	3.5-23	60-150	(Kaehler and Hsieh, 1994)
Pegmatite (fractured)	Karnataka, India	110	42	(CGWB, 1995a)
Quartz vein (fractured)	Bihar, India	55	137	(CGWB, 1995a)
Marble	Sri Lanka	2.4-24	-	(Jayasena et al., 1986)
Quartzite	Sri Lanka	1.6-28.8	-	(Jayasena et al., 1986)
Schist	Connecticut, USA	4.16	33.4	(UNESCO, 1972)
Slate	Maine, USA	3.42	-	(UNESCO, 1979)

Figure 1-4: Productivité des forages dans des aquifères de socle cristallin de diverses régions du monde, adapté de Singhal et Gupta (1999).

L'altération peut être de différente nature selon les conditions climatiques, la minéralisation de la roche et la fracturation déjà présente. En climat tropical, l'altération est intense et aboutit à la formation d'argile; c'est le cas de l'altération des feldspaths, présents dans les granites notamment. La couche correspondante, nommée allotérite, n'a plus les caractéristiques du matériau originel (White et al., 2001). En climat continental, l'altération est plus ménagée et mène à une augmentation de la porosité. La couche correspondante, isaltérite, conserve les caractéristiques de la roche d'origine (Cleaves, 1993), les micaschistes par exemple seront plus enclins à former ce type d'altérites. Souvent, la couche d'allotérite se superpose à la couche d'isaltérite (Figure 1-5). En termes de propriétés hydrodynamiques, les deux altérites sont clairement distincts, le premier défavorisant fortement l'écoulement contrairement au second.

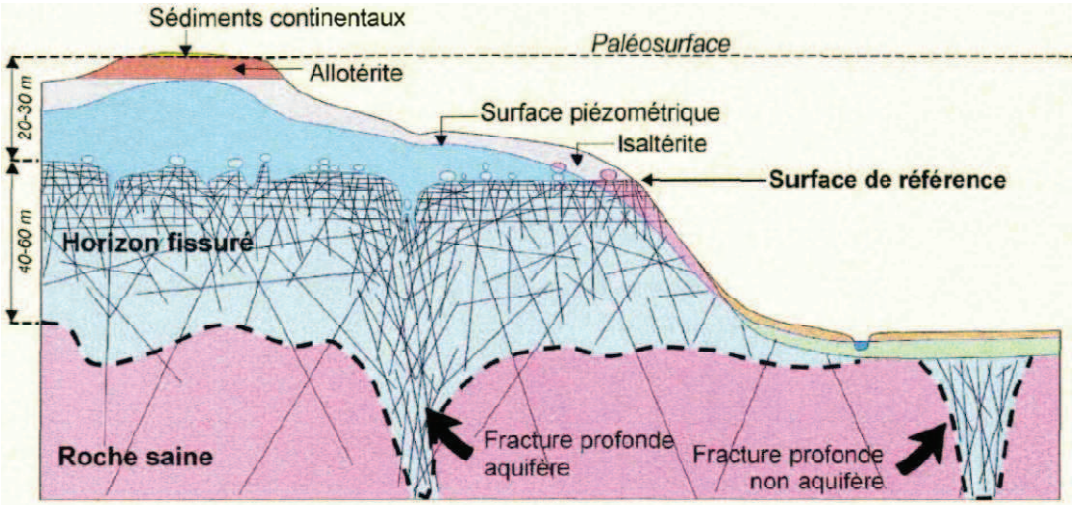


Figure 1-5: Profil typique d'altération et de fracturation des aquifères de socle cristallin, d'après Wyns et al. (2004).

Quant à la fracturation, elle peut être issue d'événements tectoniques (Houston and Lewis, 1998), de phénomènes de décompression (Taylor and Howard, 2000) ou de la mise en place même de la roche cristalline – c'est le cas des plutons granitiques (Wright and Burgess, 1992). Non seulement la fracturation crée de l'hétérogénéité, disons-le de manière binaire, mais en plus les fractures, elles-mêmes, ont des propriétés extrêmement variables hydrauliquement (Figure 1-6) et géométriquement (longueur et orientation). A l'échelle supérieure du réseau de fractures, le degré de fracturation diminue souvent – mais pas systématiquement – avec la profondeur (Houston and Lewis, 1998; Wyns et al., 2004).

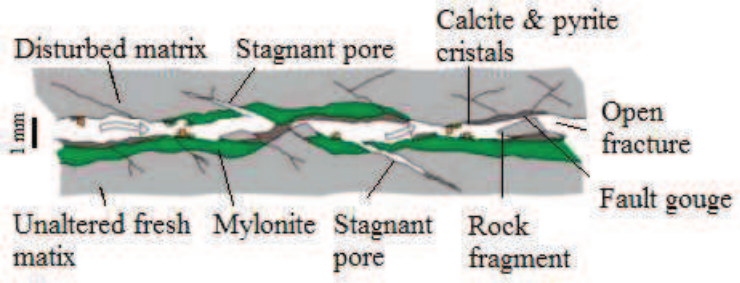


Figure 1-6: Représentation schématique d'une fracture, d'après Winberg et al. (2000).

Sans entrer plus loin dans les détails, retenons simplement que les propriétés hydrodynamiques sont très variables spatialement (jusqu'à 12 ordres de grandeur (Tsang et al., 1996)) et à différentes échelles (Figure 1-7) à la fois à cause des différentes lithologies rencontrées et à cause des fractures. Retenons aussi que les écoulements sont souvent organisés en chenaux (Tiedeman and Hsieh, 2004; Tsang and Neretnieks, 1998) et qu'au seuil de percolation *i.e.* lorsque le réseau est connecté, ils sont contrôlés en partie par la géométrie

du réseau, en plus de la distribution des propriétés hydrauliques des fractures (Darcel, 2002; de Dreuzy, 1999; de Dreuzy, 2001).

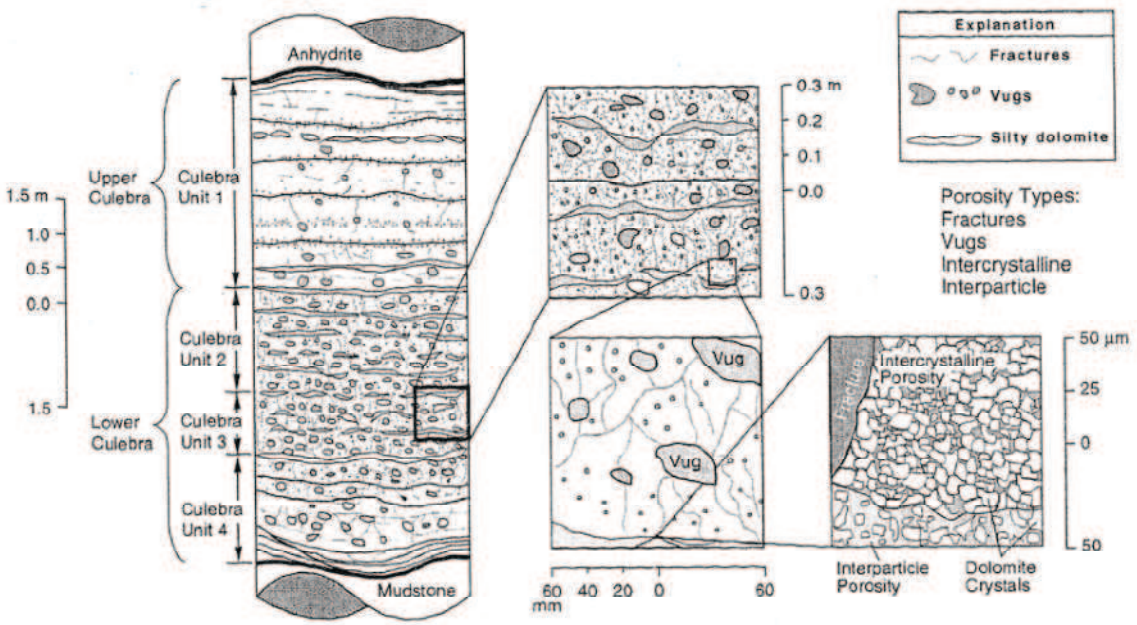


Figure 1-7: Schéma illustrant la variabilité de l'hétérogénéité à différentes échelles, d'après Meigs and Beauheim (2001).

La fracturation autant que l'altération sont ainsi très variables. Aussi, les deux processus, altération et fracturation, peuvent être liés : l'altération provoquant de la fracturation – gonflement des argiles par exemple – et la fracturation étant une zone préférentielle d'altération (Acworth, 1987; Cho et al., 2003). Les processus de génération/transformation des propriétés hydrodynamiques, porosité et perméabilité, sont donc extrêmement complexes.

1.1.4. Occurrence de la ressource en eau dans les aquifères de socle cristallin

L'origine d'une ressource en eau, *i.e.* les paramètres clés qui la contrôlent, est difficile à identifier en contexte de socle cristallin et constitue un thème de recherche très actif. Cette arduité provient à la fois de la caractérisation des propriétés hydrodynamiques dans toute leur variabilité et de la caractérisation de leur distribution spatiale à l'échelle de l'aquifère. Peinant à caractériser ces propriétés, nous avons ainsi du mal à qualifier leur rôle vis-à-vis de la ressource en eau. Jusqu'à maintenant, deux types de structures ont été identifiés comme potentiellement responsables de la ressource en eau en contexte cristallin. Nous présentons ci-après ces deux modèles.

1.1.4.1. Zone fracturée

Le premier type de structures à avoir été identifié concerne les zones fracturées résultant principalement de phénomènes tectoniques. Pléthore d'études statistiques ont mis en évidence la bonne corrélation entre la productivité des puits et les discontinuités détectées par les linéaments (Fernandes and Rudolph, 2001; Kouamé et al., 2010; Larsson, 1972; Naik et al., 2001; Narayana et al., 1996; Neves and Morales, 2007; Siddiqui and Parizek, 1971). Parmi ces études, un bon nombre se concentre sur la variation de la productivité des puits avec l'orientation des linéaments (Figure 1-8), l'idée étant d'établir un lien entre des événements tectoniques et la productivité (Fernandes and Rudolph, 2001; Greenbaum, 1992; Neves and Morales, 2007). La position des linéaments étant ainsi perçue comme un des indicateurs de la ressource en eau, elle est classiquement intégrée dans le processus de création de cartes de productivité potentielle (Elewa and Qaddah, 2011; Lee et al., 2012; Masoud and Koike, 2005; Oh et al., 2011; Rao, 2006).

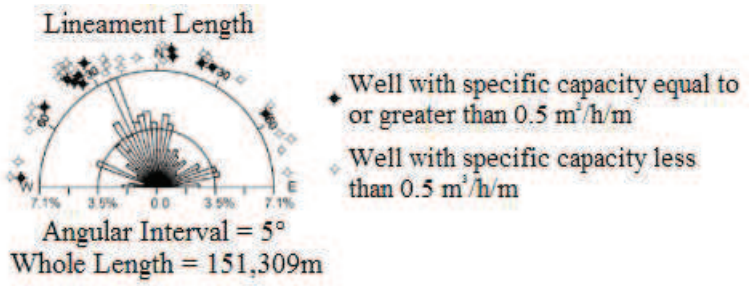


Figure 1-8: Diagramme en rose montrant la variation des capacités spécifiques des puits avec l'orientation des linéaments, d'après Fernandes et Rudolph (2001).

En plus de la bonne corrélation établie entre les linéaments et la productivité des puits, la nature même des linéaments – liés à la surface – les rend facilement accessibles et justifie la systématisation de leur exploration. L'approche classique d'exploration de la ressource en eau consiste donc à repérer ces accidents affleurant en surface, issus majoritairement de zones sub-verticales (Mayer and Sharp, 1998; Singhal and Gupta, 2010) ; l'emploi des méthodes de télédétection y est prépondérant (Greenbaum, 1992; Sander, 2007; Singhal and Gupta, 2010; Wright and Burgess, 1992).

Bien inférieure à celle rencontrée dans les milieux poreux, la productivité des puits excède rarement quelques litres par second (Lachassagne et al., 2001; Singhal and Gupta, 2010; Wright and Burgess, 1992). Elle est aussi très variable et il est très courant de rencontrer des puits « secs » car les fractures ne sont pas systématiquement ouvertes et connectées (Kuusela-Lahtinen et al., 2003; Larsson, 1972; Neves and Morales, 2007; Walker et al., 2001) et sont

limitées dans leur extension. En tant que structures que l'on peut qualifier de quasi-bidimensionnelles, elles ne disposent pas d'un coefficient de stockage élevé (Le Borgne et al., 2006). Aux problèmes de connectivité et à leur caractère local, s'ajoute leur sub-verticalité qui limite *a priori* la communication avec des structures environnantes et la collecte de la recharge (Sander, 2007).

1.1.4.2. Modèle de Wyns et al. (2004)

Plus récemment, la zone altérée a été identifiée comme l'autre structure porteuse d'une ressource en eau. Comme présenté dans la partie 1.1.3, la zone altérée, aussi appelée saprolite ou regolith, se situe juste sous la surface (Dewandel et al., 2006; Lachassagne et al., 2011; Taylor and Howard, 2000; Wyns et al., 2004). Sa formation est un phénomène complexe : le type d'altération résulte en un matériau contribuant à l'existence d'une ressource (augmentation de la porosité) et/ou l'entravant (formation d'argile) selon le climat et le type de roche (Singhal and Gupta, 2010). Comme dit précédemment, les zones fracturées peuvent constituer des zones d'altération préférentielle en ce qu'elles peuvent faciliter l'infiltration de l'eau en profondeur, même si la zone altérée reste assez peu profonde (Figure 1-9). Tout ceci résulte tant en des caractéristiques hydrodynamiques et structurales très variables dans l'espace (1.1.3) qu'en une ressource incertaine (Taylor and Howard, 2000). Aussi, la proximité avec la surface accroît leur vulnérabilité aux contaminations anthropiques (Dewandel et al., 2010). Pourtant, cette structure constitue parfois la seule ressource disponible (Greenbaum, 1992; Negrel et al., 2011). Sa caractérisation et celle de la ressource associée passe par la régionalisation de ses propriétés – perméabilité et porosité (traitement statistique des données avec ou sans inversion, lien entre les mesures géophysiques et les paramètres hydrodynamiques..) empruntée à la caractérisation des aquifères alluviaux et sédimentaires (Dewandel et al., 2012). L'organisation en strates (ou multicouches) de cette structure (Figure 1-5) justifie ce rapprochement avec les milieux poreux.

Location	Total thickness (m)	Saturated thickness (m)	Transmissivity (m^2/day)	Origin
Malawi				
Livulezi	24.1	17.6	1-20	Chilton and Smith-Carington (1984)
Dowa West	24.7	16.1	0.2-5	
Lilongwe	30.0	22.2	-	
Mponela North	20	16.6	26	Wright (1988)
Mponela South	35	32.2	Very low	
Zimbabwe				
Masvingo area	18	13.3	5.2	Houston et Lewis (1998)
Masvingo area	29	24	3.3	
Murape	20	17.4	7.0	
Hatcliffe Windpump	26	22.7	12.0	
Hatcliffe Willowtree	14	8.1	40.0	Wright (1988)
St Nicholas	12	7.7	1.4	
Mukumba	11	8.1	0.2	
St Liobas	17	13.2	1.5	

Figure 1-9: Caractéristiques hydrauliques de zones altérées en Afrique, adapté de Wright et Burgess (1992).

1.1.5. Discussion sur les modèles de ressource en eau dans les aquifères de socle cristallin

Bien que ces deux types de structures présentent tous deux la particularité d'être facilement accessibles ce qui explique le fait qu'elles aient été préférentiellement étudiées, elles sont très largement différentes dans leur nature. Les fractures détectées par linéaments sont sub-verticales (Sander, 2007) et quasi bidimensionnelles. Elles sont souvent plus productives que les zones altérées, de l'ordre de quelques litres par seconde. La zone altérée est quant à elle quasi-horizontale, tridimensionnelle et assimilable à un milieu poreux.

Des études de site ont soumis l'idée que d'autres structures pouvaient expliquer la présence d'une ressource en eau. Elles ont notamment relevé de fortes productivités sur des sites où une structure fracturée à faible pente était en place (Davison, 1985; Le Borgne et al., 2006;

Liou et al., 2010; Ruelleu et al., 2010; White and Burbey, 2007). L'aquifère de Plœmeur par exemple pourrait entrer dans ce cadre : beaucoup plus productif que ce qui est traditionnellement observé dans ces deux modèles – plus de 100 m^3/h, altération localisée dans les vallées et n'excédant pas la trentaine de mètres, structure sub-verticale relativement locale et, non des moindres, structure à faible pente apparemment présente sur l'intégralité du site. Bien que moins aisément identifiable (Ruelleu et al., 2010), ce genre de structures pourrait constituer une ressource en eau en supplément aux ressources portées par les structures déjà identifiées. La présence de ces structures « cachées » impliquerait la mise en place de méthodes de caractérisation adaptées.

1.2. Les données d'« âge » de l'eau

Une donnée n'a de sens que si elle aide à la compréhension du système et permet, le cas échéant, de progresser dans l'élaboration d'un modèle conceptuel. L'apport des données d'âge pour au mieux la caractérisation complète des milieux souterrains, au pire la réduction de l'incertitude dans les modèles conceptuels hydrogéologiques est très largement reconnu (Carrera and Varni, 2000; Castro and Goblet, 2003; Franssen et al., 2003; Mattle et al., 2001; McMahon et al., 2010; Sanford, 2011; Sanford et al., 2011; Shapiro, 2011; Troldborg et al., 2007; Zuber et al., 2011). Pourtant, l'utilisation des données d'âge n'est pas toujours heureuse ou évidente (Ginn et al., 2009; McMahon et al., 2010; Stichler et al., 2008; Troldborg et al., 2008).

Ainsi, pour les données d'âge comme pour les autres types de données, il convient de s'interroger sur l'information apportée par ces données : présentent-elles des caractéristiques spécifiques ? Sont-elles redondantes par rapport à d'autres données ? En d'autres termes, sont-elles pertinentes ? Comment les utiliser conjointement avec les autres données (hydrologique, géophysique, pétrophysique, hydrogéologique…) et dans quels contextes hydrogéologiques? Ces questions sont d'autant plus légitimes que l'obtention de données d'âge peut s'avérer ardue : solutés quasiment indétectables, installation et méthodes d'analyse complexes et coûteuses…

Dans cette partie, nous illustrons l'obtention des données d'âge de l'eau par l'exemple de la datation aux gaz atmosphériques tels que les chlorofluorocarbones et l'hexafluorure de soufre (1.2.1). Nous rappelons ainsi qu'elle n'est qu'une transformation de la concentration. Nous détaillons ensuite les processus de réactivité affectant la concentration présentant par là-même les traceurs les plus utilisés en datation (1.2.2). Puis, une description rapide des phénomènes de transport physique appuie l'analyse théorique sur la spécificité de ces données (1.2.3). Nous apportons ensuite des indices sur le contenu informationnel de la donnée d'âge et son évolution spatiale (1.2.4). Enfin, nous posons la question de la lisibilité de cette donnée (1.2.5) et de la manière dont elle est employée (1.2.6) et avec quels autres types de données (1.2.7).

1.2.1. Estimer l'âge de l'eau : exemple des gaz atmosphériques

L'âge de l'eau ne se mesure pas : il est estimé par des mesures de concentration de solutés dissous dans l'eau. En fait, tout élément chimique dont les concentrations sont mesurables et mesurées sur le site étudié peut *a priori* être utile dans la détermination de l'âge : il suffit de

connaître la source du traceur (typiquement en surface et/ou en profondeur) ainsi que son taux de décroissance dans le cas d'isotopes radioactifs.

La datation aux gaz anthropogéniques (CFC, SF_6) illustre parfaitement le lien entre l'âge et la concentration. Les chlorofluorocarbones (CFC) sont des molécules synthétiques dont la présence dans l'atmosphère à des teneurs mesurables est due à leur utilisation entre les années 50 et 90 dans l'industrie chimique, comme gaz réfrigérant ou propulseur notamment. Comme en témoigne la Figure 1-10, leur teneur atmosphérique n'a cessé de croître jusqu'à leur interdiction, motivée par leur effet néfaste sur la couche d'ozone. L'hexafluorure de soufre (SF_6) est, quant à lui, toujours utilisé dans l'industrie principalement pour ses qualités conductrices. Sa longue durée de vie dans l'atmosphère, estimée à quelques siècles, explique l'augmentation constante de sa concentration atmosphérique depuis les années 50 (Figure 1-10).

La datation aux gaz atmosphériques repose sur l'utilisation de la loi de Henry (éq. (1)) permettant de passer d'une concentration molaire c de notre échantillon ou de la recharge – éventuellement corrigée pour prendre en compte les processus affectant la concentration, à sa teneur atmosphérique équivalente x.

$$c = K_H \times p = K_H \times x \times (p_{ATM} - p_{H20}), \quad \textbf{(1)}$$

avec K_H la constante de Henry du gaz considéré (mol/l/atm), P sa pression partielle (atm), p_{ATM} la pression atmosphérique (atm) et p_{H20} la pression de la vapeur d'eau (atm). La constante de Henry et la pression de la vapeur d'eau sont fonction de la température de l'eau de recharge ainsi que de sa salinité. La pression atmosphérique est fonction de l'altitude.

L'utilisation des CFC et du SF_6 pour la datation est en apparence assez simple : d'une concentration en élément dissous mesurée dans un puits et moyennant quelques hypothèses, est calculée la teneur atmosphérique par la loi de dissolution des gaz de Henry (cf. $x_{CFC\text{-}12}$ sur la Figure 1-10). L'abscisse de la teneur atmosphérique de l'échantillon est considérée comme étant la date de recharge de l'échantillon t_r (cf. $t_{CFC\text{-}12}$ sur la Figure 1-10). Nous en déduisons ensuite l'âge A (cf. $A_{CFC\text{-}12}$ sur la Figure 1-10), qui n'est rien d'autre que le lapse de temps entre la date de recharge moyenne t_r et la date d'échantillonnage (cf. t_m sur la Figure 1-10) :

$$A = t_m - t_r = t_m - C_{in}^{-1}(x), \quad \textbf{(2)}$$

avec C_{in}^{-1} la transposée de la chronique de la teneur atmosphérique du gaz. En définitive, la transformation en âge ne sert qu'au traitement des données pour en faciliter la lisibilité : tout n'est finalement question que de concentration.

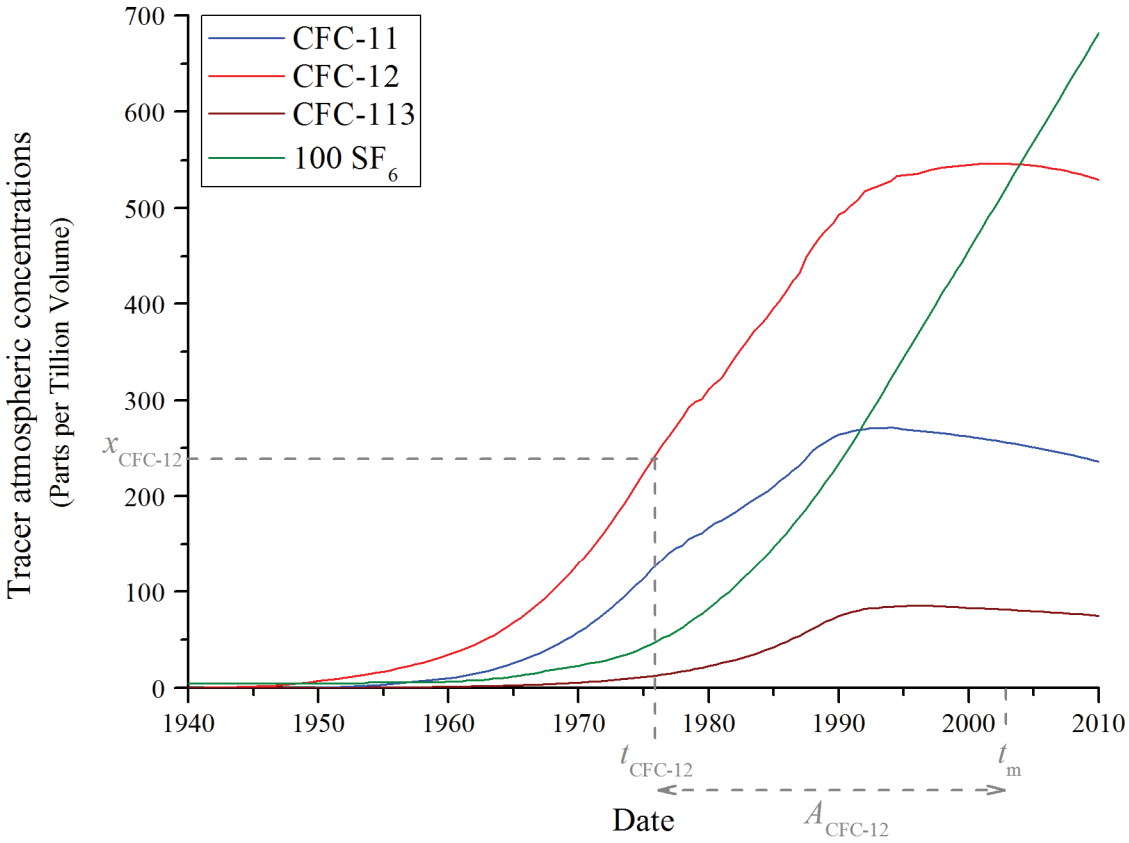


Figure 1-10: Méthode de détermination de l'âge apparent par un gaz atmosphérique: exemple des CFC et du SF_6.

1.2.2. Processus affectant la concentration

Si tout n'est question que de concentration, il convient donc de se demander quels processus affectent la concentration et ainsi de quoi cette donnée témoigne.

La concentration d'un soluté est le résultat de deux types de transformation : celle due aux phénomènes de transport physique et celle due aux réactions biogéochimiques. L'utilisation d'éléments chimiques, pour la datation des eaux et la caractérisation des milieux, se révèle donc en réalité délicate compte tenu des nombreux phénomènes d'altération de l'information possibles. En effet, bien loin du traceur idéal, la concentration des solutés en général et des traceurs environnementaux en particulier subit de nombreuses modifications telles que celles dues à des sources multiples, à des réactions (changements de conditions physico-chimique, sorption, précipitation, dégradation), à la décroissance radioactive si l'élément est un isotope

instable ou encore à une modification du fractionnement isotopique, notamment à proximité des lacs et des glaciers (Katz et al., 1995; Stichler et al., 2008).

Par la présentation des traceurs les plus couramment utilisés (Philips and Castro, 2003), nous mettons en exergue ces phénomènes d'altération du signal mais aussi certains de leurs avantages. L'accent est spécialement mis sur les CFC puisque mesurés sur le site d'étude de Plœmeur.

- Carbone-14

Naturellement produit par réaction entre l'azote et les neutrons issus des rayons cosmiques, le ^{14}C décroit en ^{14}N. Les essais nucléaires des années 1950 et 1960 ont fortement modifié le taux de production naturelle. L'activité du ^{14}C est fonction du flux de rayons cosmiques et des échanges entre l'atmosphère, les réservoirs terrestres (en premier lieu la végétation) et l'océan (Plummer and Sprinkle, 2001; Wassenaar et al., 1991). L'activité actuelle est de 0.23 Bq/gC ce qui rend cet élément facilement mesurable par scintillation. Les sources et pertes en ^{14}C sont multiples : il subit des réactions de précipitation et de dissolution des minéraux carbonatés (Maloszewski and Zuber, 1991), est affecté par les réactions d'oxydo-réduction induites par l'activité microbienne (Aravena et al., 1995)… La fiabilité des résultats dépend fortement de la complexité de la géochimie et impose une analyse au cas par cas (Sültenfuβ et al., 2011). La méthode la plus employée consiste à utiliser des modèles géochimiques d'équilibre et de transfert de masse entre les phases, par exemple le modèle NETPATH (Plummer et al., 1991).

- Tritium - ^{3}H

Ponctuellement produit par les essais nucléaires dans les années 1950 et 1960, la concentration atmosphérique a décru de manière exponentielle et vaut désormais quasiment le niveau de production naturelle, dû quant à lui à la spallation de l'azote. Le tritium réagit rapidement pour former de l'eau tritiée ^{3}HHO ce qui en fait donc un excellent traceur de l'eau malgré un temps de demi-vie court d'environ 12 ans. Pour palier au phénomène de décroissance radioactive qui transforme le tritium en hélium-3 (^{3}He) , la méthode du rapport $^{3}H/^{3}He$ est très souvent utilisée (Cook and Solomon, 1997; Corcho Alvarado et al., 2007; Ekwurzel et al., 1994; Koh et al., 2006; Plummer et al., 1998a; Shapiro et al., 1998; Sheets et al., 1998; Solomon et al., 1995; Szabo et al., 1996). En définitive, ce n'est pas la concentration en tritium qui est utilisé pour la datation mais la somme $[^{3}H] + [^{3}He]$ qui se comporte comme un traceur conservatif. Les sources d'hélium-3 autres que tritiogénique, *i.e.*

atmosphérique, terrigénique ou par excès d'air (Aeschbach-Hertig et al., 1998), constituent un frein à cette méthode de datation.

- L'hexafluoride de soufre - SF_6

La quasi-linéarité de sa chronique et sa monotonie en font un traceur particulièrement intéressant pour la datation des eaux jeunes. Mais celle-ci présente un inconvénient considérable dû à la production naturelle observée dans les milieux présentant des fluorites (CaF_2) - notamment les granites (Harnisch and Eisenhauer, 1998), dans des roches ignées, volcaniques, sédimentaires ou encore les fluides hydrothermaux (Busenberg and Plummer, 2000) ainsi que dans les basaltes (Koh et al., 2007).

- Chlorine - ^{36}Cl et Argon-39

Les milieux cristallins sont loin d'être des milieux favorisant l'utilisation d'isotopes radioactifs pour la datation. En effet, la désintégration spontanée de l'uranium et du thorium composant la roche produit des neutrons qui affectent de nombreux isotopes, à commencer par l'argon-39 (désintégration du potassium-39 ^{39}K) et la chlorine (Corcho Alvarado et al., 2005). Pourtant, les constantes de temps de ces deux traceurs, respectivement 269 ans et 301 000 ans, sont très intéressantes.

- CFC

Contrairement à certains traceurs comme l'isotope 36 du chlore ^{36}Cl (Park et al., 2002) ou l'hélium ^{3}He (Cook and Solomon, 1997), les CFC ne sont pas soumis à des phénomènes de production « naturelle » car ce sont des gaz d'origine strictement anthropique. Néanmoins, il peut se produire ce qu'on appelle une contamination, issue le plus souvent de fuites provenant de fosses septiques, de décharges ou de réservoirs industriels mais aussi de mauvaises manipulations lors de l'échantillonnage (IAEA, 2006). Des concentrations en CFC qui dépassent localement la valeur d'équilibre eau-air actuelle peuvent s'en dégager. Le résultat est donc une donnée inexploitable pour la détermination des âges d'où l'utilité de mesurer les concentrations pour différents CFC car si un élément est contaminé, cela n'est pas forcément le cas pour les autres CFC.

Des phénomènes de sorption des CFC sur la phase solide peuvent se produire dans des milieux riches en carbone organique - par exemple de la tourbe ou du charbon (IAEA, 2006). Néanmoins, le comportement des différents CFC face à la sorption est loin d'être similaire. Plusieurs études ont montré que le CFC-113 était plus soumis au phénomène de sorption que

les CFC-11 et CFC-12. Cook et al. (1995) ont estimé le coefficient de retard du CFC-113 à 1.7 dans un aquifère sablo-limoneux. Bauer et al. (2001) ont modélisé le transport en deux dimensions dans un aquifère basaltique fracturé et ont quantifié le facteur de retard du CFC-113 à 1.5, comparé au SF_6, ^{3}H et ^{85}Kr. Busenberg et Plummer (1992) ont, quant à eux, étudié un aquifère sableux à grain grossier et n'ont pas constaté de retard dans le transport des CFC.

Les CFC-11, CFC-12 et CFC-113 sont considérés comme stables dans des conditions aérobiques (Dunkle et al., 1993; Katz et al., 1995; Plummer et al., 1998a; Plummer et al., 1998b; Szabo et al., 1996) mais sont soumis à une dégradation microbienne dans le cas contraire. Là encore, les CFC n'ont pas un comportement homogène : le CFC-11 est souvent observé comme étant le plus rapidement soumis à la dégradation. Oster et al. (1996) ont observé la dégradation des CFC-11 et CFC-12 dans des milieux anoxiques probablement méthanogéniques avec un taux de dégradation du CFC-11 10 fois plus important que celui du CFC-12. Cook et al. (1995) puis Shapiro et al. (1997) ont constaté une dégradation quasi-complète du CFC-11 mais la stabilité du CFC-12 dans un aquifère sableux sulphato-réducteur, avec des taux de dégradation pour le CFC-11 toutefois différents entre les études.

Par ces quelques exemples, il apparaît clairement qu'il convient de considérer les phénomènes de réactivité et/ou les sources multiples pour la datation. Néanmoins, il est possible que ces phénomènes puissent être considérés comme négligeables ou affectant préférentiellement certains traceurs, c'est le cas de la dégradation microbienne et de la sorption des CFC. Par ailleurs, il existe des méthodes pour pallier aux phénomènes de dégradation de la concentration comme en témoigne la méthode de datation au tritium.

1.2.3. Double intégration de l'information

1.2.3.1. Mélange de lignes de flux

Même en négligeant les phénomènes de réactivité, l'interprétation des données de concentration demeure difficile. La mesure en elle-même crée de la complexité car elle n'est jamais ponctuelle. Elle mélange entre elles des lignes de flux différentes tant et si bien que la concentration mesurée représente la moyenne d'une distribution de concentrations. Cette distribution est fonction du transport physique du soluté, par advection dans le fluide en mouvement et par diffusion, des sources au point de mesure. Dans les systèmes naturels donc souvent hétérogènes, la très forte variabilité des vitesses induit des conditions de circulations complexes et une très forte variabilité des concentrations. La concentration d'un soluté

mesurée dans un piézomètre est donc le résultat de phénomènes de mélange d'eaux ayant des concentrations différentes c'est-à-dire, pour les gaz atmosphériques tels que les CFC, ayant pénétré dans l'aquifère à des dates et lieux différents. Elle peut s'exprimer par le produit de convolution (éq. (3), Maloszewski and Zuber (1982)) entre la distribution des temps de résidence $p(t)$ et la concentration en soluté à la source $C_{in}(t_m - t)$ et éventuellement un facteur de décroissance radioactive $e^{-\lambda t}$.

$$c(t_m) = \int_0^{\infty} C_{in}(t_m - t) \times p(t) \times e^{-\lambda t} dt, \quad \textbf{(3)}$$

avec $c(t_m)$ la concentration mesurée à la date de la mesure t_m. La distribution des temps de résidence $p(t)$ agit ainsi comme une fonction de pondération exprimant la contribution de chaque concentration en entrée à la concentration moyenne. L'âge s'exprime ainsi de la manière suivante[1]:

$$A(t_m) = t_m - C_{in}^{-1}\left(c(t_m)\right) = t_m - C_{in}^{-1}\left(\int_0^{\infty} C_{in}(t_m - t) \times p(t) \times e^{-\lambda t} dt\right). \quad \textbf{(4)}$$

1.2.3.2. Cumul le long d'une ligne de flux

Le temps de résidence t d'une ligne d'écoulement de longueur totale L est l'intégration des temps de trajet infinitésimaux le long de cette ligne (éq. (5)), définis comme étant le ratio d'un déplacement infinitésimal dl sur la vitesse réelle v à la position l:

$$t = \int_L \frac{dl}{v(l)}. \quad \textbf{(5)}$$

Le temps de résidence est donc fonction de l'intégralité des facteurs influençant les conditions de circulation le long de cette ligne. La distribution des temps de résidence $p(t)$ est ainsi fonction de l'organisation de l'écoulement dans le domaine échantillonné.

La concentration mesurée naît alors d'une double intégration, celle s'opérant le long de la ligne d'écoulement et celle s'opérant par mélange des lignes de courant. Tout aussi complexe que les phénomènes de réactivité et de production, le transport physique et la mesure, en

[1] Nous supposons ici que la transformation de la concentration molaire en teneur atmosphérique est identique quelque soit le temps de résidence (cf. loi de Henry éq (1)).

créant de la dispersion et du mélange, participent à l'évolution de l'information portée par la donnée de concentration. Finalement, l'information n'est pas unique et très probablement modifiée. Par contre, là où la réactivité altère généralement le signal, le mélange, lui, l'enrichit en cumulant l'information.

1.2.4. Contenu de l'information et sa variabilité

La question se pose alors de savoir quel type d'information est porté par la concentration moyenne mesurée, mais aussi où et dans quelles conditions intervient ce mélange. Négligeant les processus réactionnels et considérant le produit de convolution présenté plus haut, l'information contenue dans la concentration moyenne est uniquement liée à la distribution des temps de résidence. Quel est son type (géologique, hydrologique, structural…)? Quelle est sa portée (local, global)? En d'autres termes, quel lien peut-on établir entre les données de concentrations et les paramètres du système? La comparaison de deux modèles extrêmes, le modèle piston et le modèle exponentiel, apporte des éléments de réponse.

1.2.4.1. Dialectique amont-aval

Le modèle piston a été introduit il y a quelques décennies (Begemann and Libby, 1957; von Buttlar and Libby, 1955) et largement utilisé depuis (Burton et al., 2002; Koh et al., 2007; Koh et al., 2006; Plummer et al., 2001; Solomon et al., 2010). Ce modèle suppose que tous les chemins d'écoulement arrivant à la zone de mesure ont le même temps de résidence $\bar{t}$, quelque soit la forme ou la taille de la zone de détection. $\bar{t}$, aussi noté t_P, est défini par:

$$\bar{t} = t_P = \frac{\varphi L}{R}, \qquad \textbf{(6)}$$

avec φ la porosité, L la longueur de la ligne de l'écoulement et R le taux de recharge. Le temps de résidence étant unique, la distribution des temps de résidence est un Dirac:

$$p(t) = \delta(t - \bar{t}), \qquad \textbf{(7)}$$

Le modèle piston n'est donc valide que lorsque le mélange dans le milieu et dans la zone d'échantillonnage est faible: la distribution mesurée se rapproche d'un Dirac et on ne mélange pas une large gamme de temps de résidence. Si cela peut être le cas en amont d'un système soit proche de la zone de recharge ou en réalisant une mesure extrêmement locale dans un système très peu dispersif, l'utilisation du modèle piston paraît plus que douteuse plus en aval. Ainsi, l'information fournie par le modèle piston ne peut être très souvent que locale. En fait, plus la mesure est faite en aval dans le système, plus nous mesurons une large variété

d'eaux par convergence des lignes de flux: par extension, plus l'échantillon contient d'information sur le système et sur sa complexité, moins cette information est exploitable de telle manière que dans la zone de décharge, l'information est totalement mélangée et nous nous attendons à « lire » une information globale et moyenne.

Face à ce postulat, il est légitime de se demander ce que signifie cette mesure globale au point de décharge. Bien que les conditions de mélange soient différentes, les hydrologues (Eriksson, 1958; Kaufman and Libby, 1954) ont utilisé, pour l'étude de systèmes naturels, le modèle de mélange parfait initialement développé par les chimistes pour les batchs et réacteurs (Danckwerts, 1953; Kaufman and Libby, 1954). Gelhar and Wilson (1974), Lerner et Papatolios (1993) et Haitjema (1995) ont donné une justification physique au modèle de mélange parfait, aussi appelé modèle exponentiel, en établissant un lien entre la distribution des temps de résidence et les paramètres physiques et hydrodynamiques. Sous l'hypothèse de Dupuit-Forchheimer et en s'assurant de l'homogénéité locale du système (pas de stratification) et de la constance en tout point du taux de recharge R et du ratio $\frac{\varphi H}{R}$ (Luther and Haitjema, 1998), ils ont montré que la distribution de probabilité des temps de résidence suivait une loi exponentielle :

$$p(t) = \frac{1}{\bar{t}} \exp\left(-\frac{t}{\bar{t}}\right), \quad \textbf{(8)}$$

avec $\bar{t}$ le temps de résidence moyen, aussi noté t_E:

$$\bar{t} = t_E = \frac{\varphi H}{R}, \quad \textbf{(9)}$$

avec H l'épaisseur de la zone saturée. Par ces deux modèles extrêmes, piston et exponentiel, nous voyons que la datation des eaux souterraines s'inscrit dans une dialectique amont-aval. Nous verrons par la suite comment exploiter cette caractéristique (section 1.2.5.2).

1.2.4.2. Contenu de l'information

On l'a vu précédemment : la vitesse joue un rôle primordial dans le transport de soluté. Par ces deux modèles, somme toute basiques, nous notons tout de même l'importance du domaine échantillonné. La donnée d'âge serait donc éventuellement porteuse d'une information structurale. Dans le modèle piston, l'information structurale se résume à la longueur de l'écoulement L. Dans le modèle exponentiel, l'information structurale serait l'épaisseur de la zone saturée. Dans cette épaisseur, transparaît en fait la notion de volume ; le temps de

résidence moyen (éq. (10)) peut être en effet simplement défini comme étant le volume échantillonné V divisé par le débit, en entrée ou sortie, du réservoir Q.

$$\bar{t} = \frac{\varphi H \times S}{R \times S} = \frac{V}{Q}, \quad \textbf{(10)}$$

avec S la surface d'alimentation du réservoir. Haggerty et Gorelick (1995) ont déjà mis en évidence l'importance du volume dans le transport. Bethke et Johnson (2002) ont repris cette idée en constatant que dans un système bidimensionnel l'acquisition du temps de résidence trouvait son origine principale dans la seule présence d'aquitards. Considérons un système stratifié aquifère-aquitard-aquifère, à l'état permanent, dans lequel l'évolution de l'âge est gouvernée par l'advection dans les aquifères et la diffusion dans l'aquitard : comme les molécules d'eau dans l'aquitard vieillissent à un taux constant de 1, le flux de masse d'âge entre l'aquitard et l'aquifère, défini comme le produit d'un âge avec sa proportion et noté J ici, est simplement la masse d'eau contenue dans l'aquitard :

$$J(z) = \varphi\rho D\left(\frac{\partial t}{\partial z}\right) = \varphi\rho D\left(-\frac{z}{D}\right) = -\varphi\rho z, \quad \textbf{(11)}$$

avec φ la porosité de l'aquitard, ρ la masse volumique de l'eau, D le coefficient de diffusion, t le temps de résidence et z la position dans l'aquitard, égale à 0 au centre de l'aquitard et l à l'interface aquitard-aquifère. Le temps de résidence moyen qui découle d'un bilan de masse d'âge est donc insensible à la perméabilité de l'aquitard mais aussi fortement sensible à son volume représenté par le produit φl :

$$J(z = l) = \varphi\rho l. \quad \textbf{(12)}$$

Par contre, les auteurs n'ont pas analysé l'effet sur la distribution des temps de résidence en elle-même.

1.2.5. Lisibilité de l'information

Les paramètres du système sont donc clairement visibles dans la distribution des temps de résidence. Mais d'une part, la donnée de concentration provient d'un produit complexe entre la distribution des temps de résidence et le signal lié au traceur utilisé $C_{in}(t_m - t)$. L'utilisation d'un traceur transforme la distribution des temps de résidence en une distribution de concentrations. Et d'autre part, l'échantillonnage résulte en la moyenne de la distribution de concentrations. Ainsi, d'une information riche découle une observation pauvre (Figure 1-11) qu'on transforme communément en âge mais qui n'a aucune signification particulière, et

n'est, en aucun cas, égal au temps de résidence moyen *i.e.* le premier moment de la distribution des temps de résidence. Caractériser $p(t)$ et les paramètres du système par les données d'âge est donc un challenge.

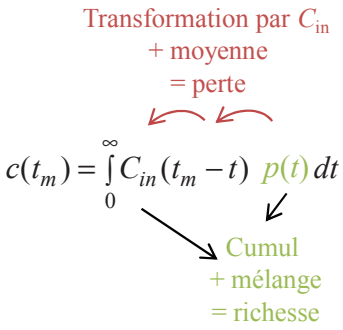


Figure 1-11: Problématique de la richesse et de la perte d'information avec les données d'âge.

1.2.5.1. Complémentarité des traceurs

- Apport de $C_{in}(t)$

Les traceurs peuvent ne pas donner des âges identiques. Mais cette incohérence entre les traceurs ne signifie pas forcément réactivité. En effet, de par leur chronique $C_{in}(t_m - t)$, les traceurs ne mesurent pas de la même manière la distribution des temps de résidence. D'une part, il se peut qu'ils ne mesurent pas la même partie de la distribution. La Figure 1-12 illustre la **spécificité des traceurs** : la convolution réalise donc un filtrage de la distribution des temps de résidence. La spécificité des traceurs représente donc un avantage car, par leur temps de demi-vie ou leur chronique atmosphérique, ils ne caractérisent pas les mêmes échelles de temps et donc les mêmes structures (Carrera and Varni, 2000). Chaque traceur peut caractériser spécifiquement certains traits de la distribution qui ont pour source certains paramètres du système.

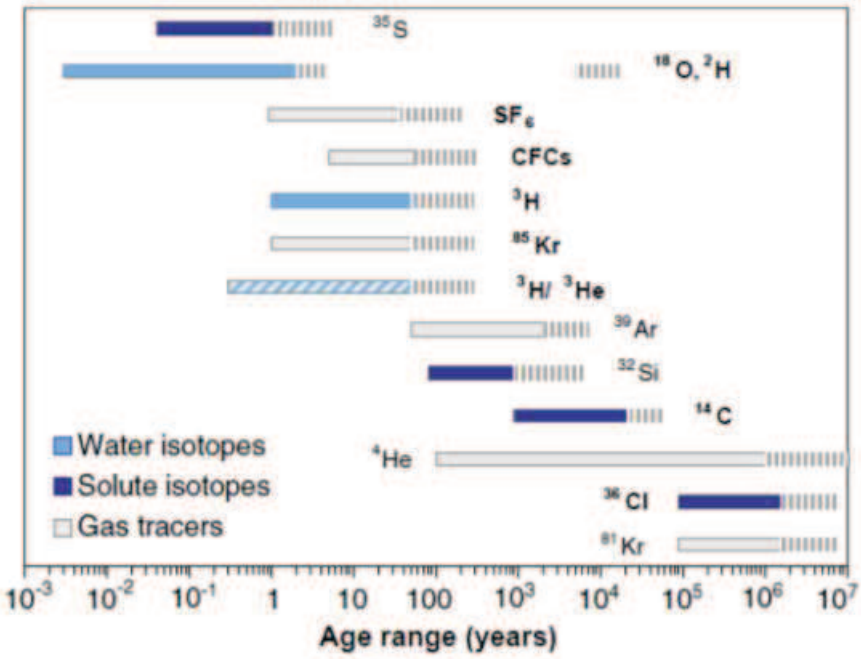


Figure 1-12: Echelle de temps caractéristique de certains traceurs, d'après Newmann et al. (2010).

D'autre part, même en mesurant la même partie de la distribution, les traceurs ont un **comportement différent face au mélange**. Prenons l'exemple des CFC et du SF_6 qui sont sensibles aux temps de résidence inférieurs à 70 ans : la chronique atmosphérique des traceurs normalisée par leur concentration atmosphérique moyenne révèle plus nettement les différences entre traceurs que leur chronique atmosphérique seule. Ainsi, vue la Figure 1-13, nous pouvons clairement nous attendre à ce que le CFC-11 et le CFC-12 donnent exactement les mêmes âges quel que soit le modèle d'écoulement et la distribution qui en ressort. Le CFC-113 exhibe, quand à lui, une plus grande sensibilité aux eaux jeunes. Cet effet est encore plus marqué pour le SF_6. Conclure alors sur l'âge de l'eau par la simple cohérence des traceurs est donc aberrant (Burns et al., 2003; Izbicki et al., 2004; Katz et al., 1995; Shapiro et al., 1998; Starn et al., 2010; Stotler et al., 2011; Stotler et al., 2010; Vandenbohede et al., 2011), d'autant plus si l'échantillonnage se fait en aval dans le système : la variabilité des temps de résidence est telle que le mélange est évident.

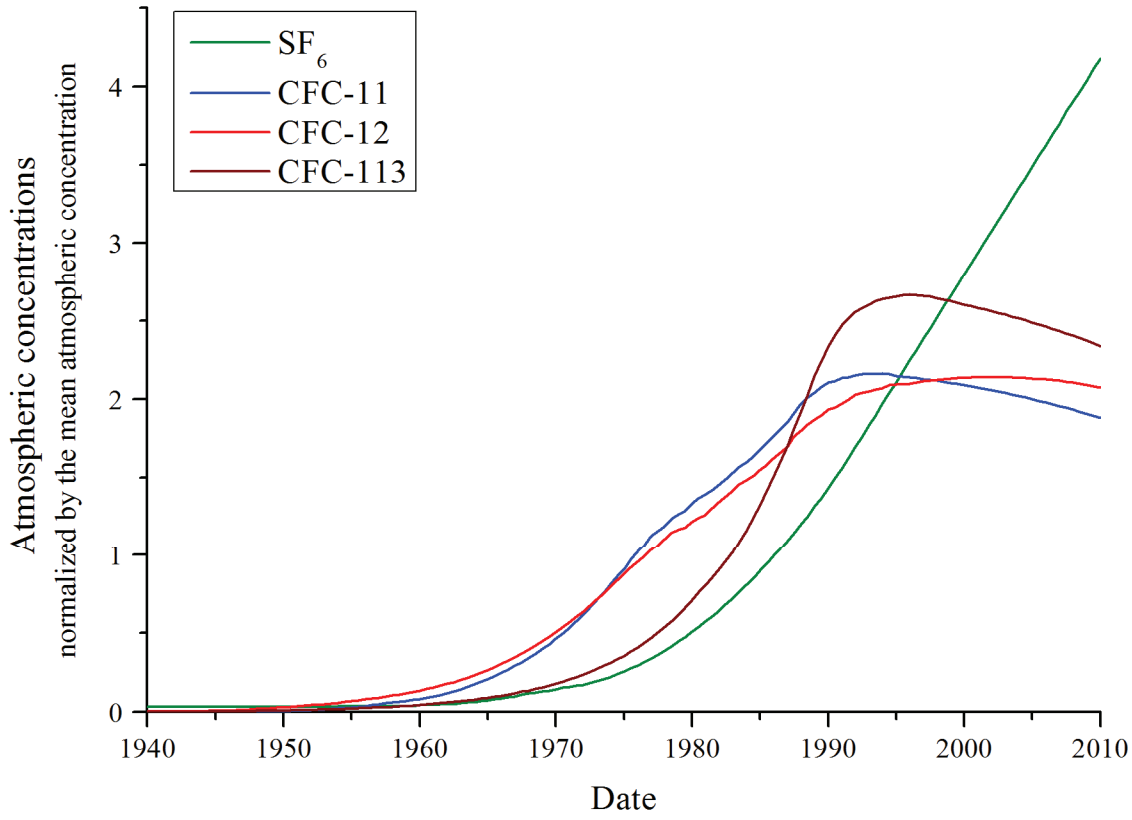


Figure 1-13: Chroniques atmosphériques des CFC et du SF_6, normalisées par leur teneur atmosphérique moyenne.

Sous réserve d'une réelle valeur ajoutée par tous les traceurs et de leur accessibilité, leur utilisation conjointe dans une étude peut permettre:

- d'apprécier la variabilité des temps de trajet (Cook et al., 2005; Long and Putnam, 2009; Solomon et al., 2010; Sturchio et al., 2004; Varni and Carrera, 1998; Weissmann et al., 2002),
- de réduire l'incertitude due à la non-monotonie des chroniques,
- d'identifier et quantifier les origines spatiales de l'eau : de la surface, de la profondeur, d'une masse d'eau en surface – lac, rivière, glacier (Castro et al., 1998; Long and Putnam, 2009; Stichler et al., 2008),
- de faire la lumière sur les processus affectant préférentiellement certains traceurs et ainsi corriger les biais liés à l'altération tels que la dégradation, la sorption, la contamination (Bauer et al., 2001; Cook et al., 1995; Ekwurzel et al., 1994; Park et al., 2002; Shapiro et al., 1997) et au transport dans la zone non-saturée (Zoellmann et al., 2001).

L'étude de site par la mesure de **multiples traceurs** est une démarche devenue classique. (Bauer et al., 2001; Cook and Solomon, 1997; Corcho Alvarado et al., 2007; Corcho Alvarado et al., 2005; Knowles et al., 2010; Plummer et al., 2001; Qin et al., 2011; Sültenfuβ et al., 2011).

- Limites liées aux traceurs

Connaître la chronique

Avant de l'utiliser, il faut connaître la chronique du traceur $C_{in}(t)$. Pour les isotopes radioactifs, déterminer le temps de demi-vie $t_{1/2}$ suffit à la caractériser : c'est une exponentielle décroissante ayant pour constante de temps $\lambda = \frac{Ln2}{t_{1/2}}$. Pour les gaz atmosphériques d'origine anthropique, il est possible d'observer un **signal atmosphérique hétérogène** dû à la variabilité de la production comme c'est le cas pour le ^{85}Kr. Pour d'autres traceurs comme les CFC ou le SF_6, l'effet est moins marqué (Darling and Gooddy, 2007; Maiss and Brenninkmeijer, 1998), à part proche de sites industriels (Oster et al., 1996).

Le signal atmosphérique peut par ailleurs être altéré lors de son **transport dans la zone non-saturée**, d'autant plus si son épaisseur est importante. Un des mécanismes principaux de transport dans la zone non saturée est la diffusion à travers la phase gazeuse. Mais l'advection et la diffusion dans la phase liquide après dissolution du gaz, la sorption-désorption sur les particules de sol et éventuellement la dégradation participent aussi au transport du signal atmosphérique et le déforment (Engesgaard et al., 2004). Cook et Solomon (1995) puis Engesgaard et al. (2004) et l'IAEA (2006) ont montré que le temps de transfert apparent reste négligeable pour une épaisseur de moins de 10m.

Tout gaz dissous est aussi soumis à l'effet d'**excès d'air** qui se traduit par une sursaturation en gaz par rapport à la solubilité d'équilibre avec l'atmosphère, attribuée à une augmentation transitoire du niveau d'eau de la nappe. Excès d'air qui peut s'estimer par l'analyse des concentrations des différents gaz nobles, particulièrement par analyse du ratio azote/argon. Dans le cas des CFC, la concentration étant plus élevée qu'elle ne devrait l'être, l'excès d'air provoque donc généralement une sous-estimation des âges. Wilson et McNeill (1997) ont montré que l'excès d'air ne dépasse pas 1 cm^3/kg/m de remontée. Ils ont aussi noté que l'excès d'air mesuré sur de nombreux sites d'étude excédait rarement 10 cm^3/kg ce qui correspondrait à une remontée rapide de nappe de 10m, en l'occurrence peu commune. Par ailleurs, l'IAEA (2006) montre que, dans des conditions extrêmes de température de l'eau de

30°C et d'excès d'air de 30 cm^3/kg, l'erreur sur les âges en CFC-11, CFC-12 et CFC-113 est respectivement inférieure à 4 ans, 11 ans et 3 ans. Pour une remontée de nappe relativement douce et une recharge en climat tempéré, l'excès d'air peut être considéré comme négligeable.

La solubilité des gaz ainsi que la proportion des isotopes stables (^{18}O, ^{2}H) dépend de la température. La **température de recharge** est donc un des paramètres clés de la solubilité d'un gaz. L'une des utilisations des gaz nobles est d'ailleurs la détermination de la température de recharge : sous réserve d'une recharge verticale avec des variations de nappe lentes, elle consiste à prendre des échantillons le long d'un chemin d'écoulement et de retrouver les températures de recharge. Les gaz nobles peuvent éventuellement servir en complément d'autres méthodes de datation : en effet, de la chronique des températures, il est possible de déduire la date de recharge. Busenberg et al. (1993) ont montré qu'une incertitude de ±2°C sur la température de recharge ne provoque qu'une erreur de moins d'un an pour des eaux rechargées avant 1975 et de moins de 3 ans pour les eaux rechargées entre 1975 et 1990. Au-delà de 1990, l'erreur peut s'avérer beaucoup plus importante. L'IAEA (2006) préconise l'utilisation des ratios de concentrations, moins dépendants de la température de recharge, lorsque celle-ci est inconnue. D'ailleurs, il est possible de considérer qu'au-delà d'une épaisseur de sol de 1 ou 2 m, la température de recharge ne suit plus les variations saisonnières de la température du sol (Matthess, 1982) mais seulement la température moyenne annuelle du sol, facilitant ainsi la datation (Andrews and Lee, 1979; Heaton and Vogel, 1981; Herzberg and Mazor, 1979).

Choix des traceurs

Théoriquement, le choix de traceurs est très large, les échelles de temps couvertes aussi. La réalité est tout autre : la réactivité et les sources multiples compliquent leur utilisation. Comme noté précédemment, les milieux granitiques sont par exemple peu propices à l'utilisation d'isotopes instables (^{36}Cl, $^{3}H/^{3}He$, ^{39}Ar) et même de SF_6.

Par ailleurs, des traceurs, bien que potentiellement très utiles, s'avèrent en réalité difficilement mesurables, c'est le cas de l'^{39}Ar, le ^{85}Kr, le ^{32}Si pour les plus connus. Ainsi, un manque de traceur d'âge intermédiaire (gamme 100 - 1000 ans) accessible à la mesure est évident (Newman et al., 2010).

1.2.5.2. Spatialisation de l'information

Nous l'avons vu précédemment la problématique de l'âge de l'eau s'inscrit dans une dialectique amont/aval. En amont, typiquement proche de la surface, la donnée d'âge est locale donc *a priori* exploitable et spécifique, les temps de résidence étant peu dispersés. Pourtant, il est légitime de se poser la question de la représentativité de cette donnée : peut-on en déduire un paramètre - la recharge, la perméabilité, la porosité - qui ait un sens ? Quelle importance attribuer à cette information ?

En aval, proche de la décharge, typiquement un puits de pompage ou un cours d'eau, la donnée est très souvent d'une extrême richesse : elle représente la sensibilité du champ de vitesse à l'ensemble des paramètres du système que ce soient les conditions aux limites, le champ de perméabilité, le champ de porosité ou les termes puits-sources. Pourtant, cette information est globale et seulement représentative d'un comportement moyen. Alors, n'est-elle pas trop restrictive ? Fait-elle avancer dans la définition d'un modèle conceptuel ?

Plus qu'une dialectique amont/aval, c'est ainsi une dialectique représentativité/lisibilité qui caractérise les données d'âge. L'utilisation des ces données se distingue donc par la détermination des points où l'information contenue sur le système est équilibrée entre local et global et où l'information est suffisamment riche mais exploitable. Le volume d'intégration ou de mélange est un paramètre en soi déterminant dans l'exploitation de la donnée.

1.2.6. Utilisations classiques des données d'âge

1.2.6.1. Méthodes classiques de modélisation

Deux méthodes radicalement différentes sont utilisées pour aborder le problème de l'âge de l'eau. La première fait appel à des **concepts d'écoulement implicites**. Plutôt que de déterminer la solution numérique aux phénomènes d'écoulement et de transport, on se sert d'une forme supposée pour la distribution des temps de résidence qu'on intègre dans le produit de convolution d'où l'idée de modèles de boîte (Amin and Campana, 1995; Chesnaux et al., 2005; Etcheverry, 2001; IAEA, 2006; Maloszewski and Zuber, 1982; Zhou and Haitjema, 2012). Hormis le modèle piston, la plupart de ces modèles a été développée pour des aquifères homogènes 2D à géométrie simple en régime permanent; le nombre de paramètres dans ce type de modèles est donc restreint. C'est le cas notamment des modèles exponentiel (épaisseur et recharge constantes), linéaire (épaisseur linéairement variable et recharge constante), exponentiel-piston pour les milieux non-confiné-confiné (Chen et al., 2011; Ivey et al., 2008). Le modèle dit binaire est quant à lui utilisé pour signifier la

possibilité d'une contribution supplémentaire, par exemple la dilution d'un signal ou une source profonde, ou pour des systèmes fracturés ou karstiques (Bockgard et al., 2004; Knowles et al., 2010; Koh et al., 2006; Long and Putnam, 2006; Long and Putnam, 2009; Qin et al., 2011; Solomon et al., 2010). Plus rarement, le modèle dit dispersif est utilisé pour quantifier l'importance relative de l'advection et de la dispersion (Corcho Alvarado et al., 2007; Knowles et al., 2010; Koh et al., 2006; Long and Putnam, 2006; Osenbrück et al., 2006). Réellement, ce sont très souvent plusieurs modèles qui sont utilisés et comparés afin de déterminer le plus cohérent avec les données. Des modèles simples en milieux poreux-fracturés ont aussi été développés tels que l'âge dans un système 2D composé d'une matrice rocheuse et d'une unique fracture verticale (Cook et al., 2005) ou cintrée de deux fractures parallèles (Doyon and Molson, 2012). L'avantage de ces modèles analytiques est bien sûr leur facilité d'utilisation et l'intégration aisée des données. Ozyurt et Bayari (2003; 2005) ont d'ailleurs développé un code Visual Basic dans cette optique. Pourtant, ces modèles ne s'appliquent théoriquement qu'à des milieux simples homogènes 2D. Leur validité est plus qu'incertaine dans des milieux réels hétérogènes 3D soumis à des forçages tels que des pompages et à des conditions aux limites particulières.

La seconde méthode consiste à modéliser directement le temps de résidence moyen, aussi appelé âge de l'eau d'où le terme de **simulation directe de l'âge**. Initiée par Goode (1996) puis reprise par Varni et Carrera (1998), Ginn (1999), Cornaton et Perrochet (2006) et Woolfenden et Ginn (2009), elle repose assez simplement sur l'équation classique d'advection-dispersion modifiée pour prendre en compte un terme source d'intensité « 1 » correspondant au vieillissement de l'eau. La simulation directe de l'âge ne fait appel à aucun traceur. Elle reflète donc l'âge réel de l'eau tel que transformé par les processus de transport physique et constitue de cette manière un outil puissant dans l'analyse des processus et paramètres clefs du transport. Pourtant, la simulation directe de l'âge de l'eau est particulièrement défaillante pour une utilisation dans des cas pratiques car l'âge de l'eau n'est pas l'âge obtenu avec un traceur (Bethke and Johnson, 2008; Castro and Goblet, 2005; Cornaton et al., 2011; Troldborg et al., 2008; Varni and Carrera, 1998). Le lien avec les données est nébuleux et est un sujet ouvert à l'heure actuelle comme en témoignent les travaux récents de Massoudieh et Ginn (2011) dans lesquels les auteurs concluent que la concentration d'un traceur conservatif radioactif est la transformée de Laplace de la distribution des âges.

Une autre méthode, moins utilisée, est la **résolution numérique de l'équation de transport dans des modèles hydrogéologiques 3D** où les paramètres tels que la perméabilité, la recharge peuvent varier spatialement. Dans ces modèles, on suppose que la distribution des temps de résidence est *a priori* plus complexe que dans le cas d'un modèle de boîte ou que la méthode d'échantillonnage n'intègre pas systématiquement l'ensemble des lignes de courant comme c'est le cas pour les modèles de boîte. L'utilisation des données de traceurs dans ces modèles est possible contrairement aux méthodes de simulation directe. Le choix du type de modèles, hydrogéologiques et de transport, dépend de certains critères comme le degré de connaissance du milieu, le degré de résolution ou de finesse attendu ou encore le coût de simulation. Concernant les modèles de transport, le modèle **advectif pur** suppose que les paquets d'eau migrent à vitesse constante le long d'un tube de courant comme des systèmes fermés c'est-à-dire sans échanger d'eau avec les couches voisines. Mais par son hétérogénéité macroscopique, le milieu disperse les concentrations et la zone d'échantillonnage les rassemble. La variation de la concentration est alors seulement due à la migration de l'eau au sein du tube de courant et à son mélange dans la zone d'échantillonnage. Bien que cette méthode soit largement utilisée (Broers, 2004; Pearson and White, 1967; Solomon et al., 1995), sa validité est mise à mal si des phénomènes de dispersion et de mélange sont significatifs (Broers, 2004; Goode, 1996; Varni and Carrera, 1998), ce qui est particulièrement le cas dans les milieux hétérogènes. La concentration présente en effet des discontinuités aux interfaces entre des couches de perméabilité différente. Les modèles **advectif-dispersif-diffusif** tiennent compte des phénomènes de diffusion et de dispersion locale, le premier causant un mélange entre les masses d'eau et le second un étalement. Ils sont néanmoins plus complexes et plus coûteux en temps de calcul.

L'équation de transport peut être résolue de deux manières selon le type de résultats recherché et les informations détenues. La résolution classique en **forward-time** permet de déterminer la distribution spatiale et temporelle de concentration $c(x\,;\,t)$ à partir d'un point source x_s et d'une date de recharge t_r. En forward-time, nous simulons donc le transport de solutés de la zone de recharge, paramètre du transport, vers l'exutoire. La résolution en **backward-time** permet de déterminer la distribution spatiale et temporelle de probabilités $p(x\,;\,\tau)$ à partir d'un point x_m et d'une date t_m de mesure (Neupauer and Wilson, 1999; Neupauer and Wilson, 2001), τ étant défini comme le temps de résidence régressif variant de 0 à $t_m - t_r$ (Cornaton and Perrochet, 2006; Weissmann et al., 2002):

$$\tau = \ date\ de\ mesure - (date\ de\ recharge + temps\ de\ résidence) \quad \textbf{(13)}$$
$$= \ t_m - (t_r - t),$$

en opposition au temps de résidence progressif t^2. Le transport de soluté est donc simulé de l'exutoire vers la zone de recharge. Cette méthode implique de connaître le point de sortie des particules et considère la zone de recharge comme un résultat.

1.2.6.2. Exploitation classique des données

S'il est évident que les concentrations en traceurs environnementaux sont sensibles au champ de vitesse (Carrera and Varni, 2000; Zuber et al., 2011), il apparaît tout aussi évident que le champ de vitesse est sensible au taux de recharge (Newman et al., 2010; Sanford, 2011). La question de l'âge de l'eau et de son intérêt vis-à-vis de l'élaboration de modèles conceptuels s'est pourtant souvent limitée à des systèmes simples : relativement homogènes, en 2D, en régime permanent (Portniaguine and Solomon, 1998; Reilly et al., 1994; Robertson and Cherry, 1989; Solomon et al., 1992) et la recharge est souvent le seul paramètre contraint par les données même dans des travaux récents sans l'analyse consciencieuse de la sensibilité des âges aux autres paramètres (Chen et al., 2011; Cook and Solomon, 1997; Ivey et al., 2008; Sanford et al., 2004; Sheets et al., 1998; Starn et al., 2010). Ceci a été fortement favorisé par l'utilisation de modèles conceptuels simplistes systématiquement fonction de la recharge tels que le modèle exponentiel. Les systèmes naturels étant plus complexes, on peut alors se demander si restreindre l'âge de l'eau à la caractérisation de la recharge n'est pas exagéré voire préjudiciable pour la vision générale qu'on peut avoir sur le rôle des traceurs.

1.2.7. Utilisation conjointe de différents types de données

Lorsqu'utilisée dans le processus de conception d'un modèle hydrogéologique, la donnée d'âge intervient classiquement comme une étape de recalibration de certains paramètres et de validation du modèle (Izbicki et al., 2004; Troldborg et al., 2007). Partant d'un modèle conceptuel issu de l'interprétation d'observations géologiques voire de données géophysiques, les données d'âge arrivent en complément des données de piézométrie et de débits tels que ceux mesurés en rivière. Reilly et al. (1994), Sheets et al. (1998) puis McMahon et al. (2010) ont notamment ajusté le taux de recharge et la perméabilité de leur modèle homogène bidimensionnel grâce aux données de CFC. Mattle et al. (2001) ont recalibré quant à eux la

[2] Cette relation s'applique aussi au temps de trajet. Le temps de trajet est défini en tout point du système. Le temps de résidence correspond quant à lui au temps de trajet considéré à la sortie du système.

conductance d'un lit de rivière que la donnée de piézométrie seule n'avait pu contraindre. Si l'on compare une donnée de piézométrie – mesure à l'échelle locale d'un potentiel – et une donnée de traceurs environnementaux – mesure à grande échelle de la dérivée du même potentiel, on conclut bien évidemment que les deux types de données sont théoriquement complémentaires (Carrera and Varni, 2000; Castro and Goblet, 2003; Portniaguine and Solomon, 1998; Sanford, 2011). Dans les faits, l'apport des données d'âge pour la réduction de l'incertitude n'est pas si évident: par une étude inverse sur un milieu synthétique 2D et en rappelant le caractère cumulatif de la donnée d'âge, Ginn et al. (2009) constatent que la non-unicité des modèles persiste malgré l'utilisation conjointe des données de piézométrie et d'âge. McMahon et al. (2010) feront plus tard la même observation.

Plus rarement, l'âge de l'eau est combiné à des données de géochimie tels que les ions chlorure et sulfate (McMahon et al., 2010), la conductivité hydraulique (Qin et al., 2011). Mais les données lorsqu'utilisées conjointement ne sont, le plus souvent, pas intégrées à des modèles (Burns et al., 2003; Chen et al., 2011; Johnston et al., 1998; Knowles et al., 2010; Stotler et al., 2010). Vandenbohede et al. (2011) illustrent l'intégration de différentes données dans la conception d'un modèle de site : ils utilisent à la fois des données de tests hydrauliques et de température en forage pour contraindre les flux localement et des données de datation et de qualité de l'eau pour une contrainte plus globale des vitesses d'écoulement. Bien que la méthodologie de traitement des données de datation soit fausse, cette étude met en valeur la divergence des données en termes de sensibilité et donc leur complémentarité en termes d'information.

1.2.8. Discussion sur la donnée d'âge

Quel que soit le type de milieu étudié, on peut dire que l'utilisation de la donnée d'âge, par le caractère intégrateur de ladite donnée, s'inscrit dans une dialectique représentativité/lisibilité. La localisation de l'information paraît primordiale si tant est qu'on puisse avoir un quelconque contrôle sur cette localisation.

Par ailleurs, la donnée d'âge est une mesure du champ de vitesse et donc des paramètres le déterminant. Par contre, le type de milieu impacte le rôle respectif des paramètres et leur degré d'incertitude contraignant ainsi à considérer les données d'une part vis-à-vis du milieu et d'autre part les unes par rapport aux autres.

Aussi, les modèles classiques de représentation de la distribution des temps de résidence tels que le modèle exponentiel ont été initialement développés pour les milieux homogènes

simples où l'écoulement est bidimensionnel et soluble analytiquement. Leur validité paraît plus que douteuse pour les milieux complexes. L'information contenue dans la donnée d'âge ainsi que l'utilisation de distributions des temps de résidence associées à des concepts d'écoulement implicites est l'objet du Chapitre 4. Le gain d'information par la multiplication des données d'âge est l'objet du Chapitre 5, bien que déjà abordé dans le Chapitre 4.

1.3. Démarche de la thèse et méthodologie

Dans cette thèse, nous proposons d'étudier la multiplicité des ressources dans les milieux de socle cristallin dans lesquels, rappelons-le, les propriétés hydrauliques sont très variables et les structures rencontrées non triviales. Cette étude est présentée dans le Chapitre 3. Nous reconsidérons ensuite l'emploi des données d'âge pour la caractérisation des systèmes complexes : d'abord, l'apport d'une donnée unique (Chapitre 4) puis la multiplication des données et des informations en élargissant aux conditions de flux transitoire (Chapitre 5). L'intégralité des trois études présentées dans cette thèse a été réalisée *via* des simulations numériques. Cette approche a requis quelques choix qu'il convient de justifier.

D'abord, la modélisation de l'écoulement s'est faite en **conditions de surface libre**. Ce choix paraît évident pour des systèmes naturels pour lesquels l'interaction avec la surface n'est pas connue *a priori*. Ce mode de modélisation laisse la recharge libre de toute contrainte et le profil de la surface libre est un résultat du modèle et non un paramètre.

Ensuite, nous avons privilégié l'**approche en milieu continu** pour la représentation des hétérogénéités : seules les hétérogénéités macroscopiques ont été représentées. Ce choix moins évident a été motivé par plusieurs contraintes :

- La contrainte logicielle : la modélisation étant réalisée à l'échelle du site, la représentation d'hétérogénéités locales, notamment par des fractures discrètes, aurait été soit impossible en termes de ressources informatiques soit beaucoup trop gourmande en temps de calcul ;
- Le manque de données sur le site : l'absence de contraintes fortes sur le réseau de fractures (géométrie des fractures, perméabilité, densité des fractures) ne justifiait pas sa représentation qui n'aurait pu être faite que par l'utilisation d'un modèle stochastique ;
- L'application : le but est ici d'étudier la ressource en eau et sa caractérisation donc d'analyser les chemins d'écoulement les plus rapides. Nous supposons donc que la connectivité du système est suffisamment bonne et l'approche par un milieu poreux possible tant pour l'écoulement que pour le transport (Cook et al., 1996; Long et al., 1982). Cette hypothèse de très bonne connectivité à l'échelle du site se défend très bien pour le site de Plœmeur et les traceurs utilisés (les chlorofluorocarbones). Les choix de modélisation auraient été tout autre si l'on avait souhaité étudier le stockage de déchets radioactifs par exemple.

Le choix d'une **perméabilité isotrope** a été, pour sa part, dicté par :

- La nature des structures rencontrées : d'une part, la connaissance de l'anisotropie des structures était limitée à l'échelle du site ; et d'autre part, le fort gradient de perméabilité suffisait à induire un écoulement anisotrope ;
- La quantité de grandeurs explorées, limitée par l'approche manuelle.

Les simulations du transport ont, quant à elles, été réalisées en ne prenant en compte que le phénomène d'**advection**. La diffusion moléculaire et la dispersion à l'échelle microscopique ont donc été ignorées pour deux raisons :

- Les simulations en advection : elles présentent l'avantage d'être beaucoup plus rapides que celles en advection-diffusion-dispersion. Aussi, intégrer de la diffusion-dispersion suppose de renseigner les paramètres associés et ajoute donc une complexité supplémentaire qu'on ne maîtrise pas forcément ;
- Principalement, les traceurs étudiés associés au type d'hétérogénéités : ce travail a été basé sur l'utilisation des données en chlorofluorocarbones. Ces traceurs d'eau « jeune » ne distinguent pas les eaux ayant un temps de résidence supérieur à 70 ans. La représentation des vitesses lentes n'est donc pas prépondérante. La diffusion au sein de structures peu perméables surtout si ces structures interviennent comme des barrières « externes » à l'écoulement – c'est le cas des granites de Plœmeur – n'a donc aucun rôle sur les temps de résidence courts. La dispersion microscopique peut être considérée comme négligeable à cause de la présence du pompage qui est une condition de mélange extrême. Par contre, il est important de noter que l'utilisation d'argon-39 ou de carbone-14 par exemple, caractérisant respectivement des eaux centenaires et millénaires, aurait nécessité une réflexion plus poussée sur la représentation des vitesses faibles. Aussi, la présence de lentilles d'argile aurait nécessité de considérer les phénomènes de diffusion et de dispersion (Varni and Carrera, 1998).

Notons que le choix du modèle de transport est une question encore largement débattue. Pour ma part et comme je viens de l'exposer, cette question nécessite une analyse au cas par cas en prenant en considération le type d'hétérogénéités rencontré sur le site et leur localisation, les conditions aux limites et les termes puits-sources ainsi que la spécificité de chaque traceur vis-à-vis des conditions d'écoulement.

Chapitre 2 Matériel et méthodes

Ce chapitre présente en premier lieu les outils numériques et informatiques utilisés et mis en place dans cette thèse. Seuls les développements majeurs et les plus pertinents pour ce travail sont présentés. Le site d'étude, l'aquifère de Plœmeur dans le Morbihan (Bretagne), sur lequel nous avons appliqué les méthodologies d'étude de l'occurrence de la ressource en eau et de l'utilisation des données d'âge en contexte très hétérogène, est présenté en second lieu.

2.1. Développements numériques au sein de la plateforme h2olab

2.1.1. H2olab et son consortium

L'intégralité des simulations numériques réalisées dans cette thèse a été exécutée *via* la plateforme h2olab (http://h2olab.inria.fr/index.php?page=home). Cette plateforme de développement numérique, mise en place en 2006, est dédiée à la génération de milieux géologiques complexes ainsi qu'à la simulation de l'écoulement de fluide monophasique et du transport de solutés en hydrogéologie (Erhel, 2011; Erhel et al., 2009). Elle s'applique aussi bien aux milieux poreux qu'aux milieux fracturés et à la combinaison des deux.

2.1.1.1. La mutualisation de compétences au-service de questions environnementales

Cinq laboratoires et un Observatoire de Recherche en Environnement (ORE), organisés en consortium, s'investissent mutuellement dans le développement de la plateforme. En voici la liste :

- Equipe SAGE, à l'INRIA Rennes Bretagne Atlantique et l'IRISA,
- Equipe TRANSFERT, laboratoire Géosciences à l'Université de Rennes 1,
- CDCSP, Institut Camille Jourdan à l'Université de Lyon 1,
- Pprime, à l'Université de Poitiers,
- ORE H+, coordonné par Tanguy Le Borgne, membre de l'équipe TRANSFERT.

La diversité des compétences des différents partenaires du projet permet de couvrir l'intégralité des disciplines liées au projet, que ce soient les mathématiques appliqués, les moyens de calcul et outils logiciels ou encore les géosciences - objet même de la modélisation.

2.1.1.2. Politique de développement et mise en œuvre du travail collaboratif

Généricité, modularité et efficacité sont les maîtres mots du projet et sont systématiquement au cœur des discussions. Dans cette optique, le langage de programmation C++ a été privilégié; l'abstraction par les classes virtuelles pures et le polymorphisme par l'héritage allant dans le sens d'une très grande applicabilité des outils et des modules développés. La plateforme pouvant être utilisée autant sous Linux que sous Windows, la portabilité des sources est assurée. L'encapsulation des objets rendue possible par le C++ favorise la création d'interfaces et le développement en cascade ainsi que la création de modules imbriqués les uns dans les autres. La rapidité des calculs et la modélisation de problèmes de grandes dimensions sont fortement facilitées par la parallélisation d'une partie des modules *via* MPI. La réalisation de tests ou benchmark renforce la qualité du code.

Travailler en collaboration, par le partage des tâches accomplies et la transmission d'expériences, est une excellente opportunité pour un développement rapide et efficace. Outre des réunions régulières de concertation sur les projets pivots de la plateforme, la collaboration prend place par le partage des fichiers stockés sur un serveur et sous contrôle de version. Aidé par GIT (http://git-scm.com/), chaque développeur peut ainsi facilement apporter sa contribution au tronc commun (Figure 2-1). Une documentation claire et complète du code est aussi primordiale pour son utilisation large et à long-terme.

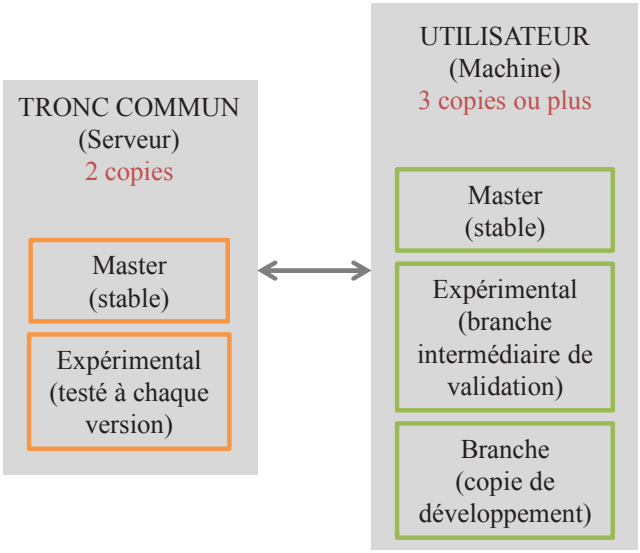


Figure 2-1: Contrôle de version mis en place sous GIT.

Le travail de collaboration impose néanmoins aux acteurs une grande responsabilité en requérant une rigueur et un effort constants pour le respect des engagements communs. Des mécanismes de contrôle, automatiques ou non, ont été mis en place (Figure 2-2). Le contrôle de version permet évidemment un excellent suivi du développement grâce à une sauvegarde incrémentielle des modifications et une gestion des « conflits » - modifications qui affectent la même partie du code. Il est en soi un excellent moyen de pérenniser la plateforme. Les tests de non-régression (TNR) constituent un contrôle supplémentaire de la plateforme en confrontant systématiquement chaque version du code à des résultats de référence. C'est en quelque sorte un benchmark d'un grand nombre de modules de la plateforme, effectué automatiquement et/ou à la demande du développeur (Figure 2-2).

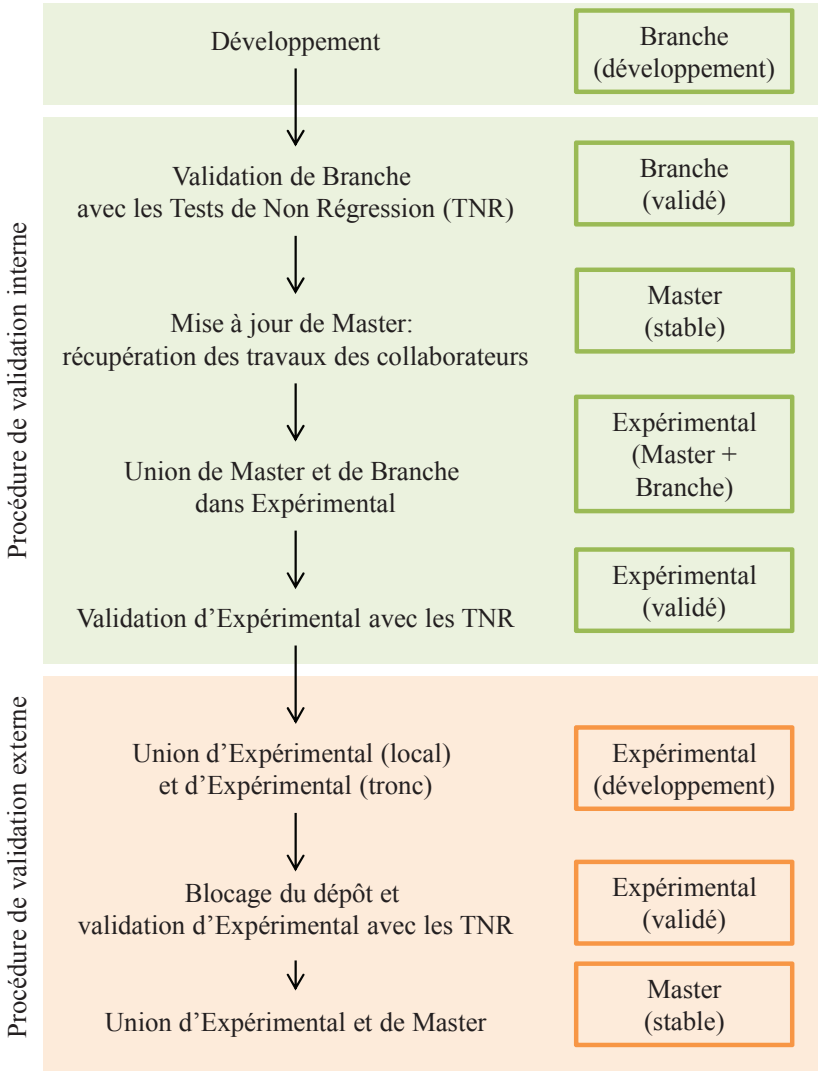


Figure 2-2: Procédure de double validation pour la mise en commun des développements.

2.1.1.3. Architecture de la plateforme

La modularité de la plateforme est garantie par une segmentation en composants eux-mêmes divisés en sous-ensembles. La Figure 2-3 représentant l'architecture du code illustre cette décomposition en modules élémentaires indépendants. Un certain nombre d'applications, aussi appelées « launchers », permet d'étudier des phénomènes tels que la macro-dispersion en milieu poreux hétérogène 2D ou 3D, la chenalisation dans les réseaux de fractures ou encore l'écoulement à surface libre dans des configurations de site.

Ces applications sont la combinaison de modèles physiques pour la représentation des structures (géométrie) et de leurs propriétés (hydrodynamiques notamment), de l'écoulement de flux et du transport de solutés (Figure 2-3). Différentes méthodes numériques ou schémas de discrétisation des équations ainsi que des méthodes de quantification de l'incertitude *via*

Monte-Carlo peuvent être choisis pour la résolution du problème. Ces méthodes font appel à des outils de base (visualisation, interfaçage…), regroupés en utilitaires, et à des outils numériques tels que des outils de maillage ou de stockage des structures. A la base ce cette pyramide, se trouvent les librairies Open source (boost, MPI…) externes à la plateforme.

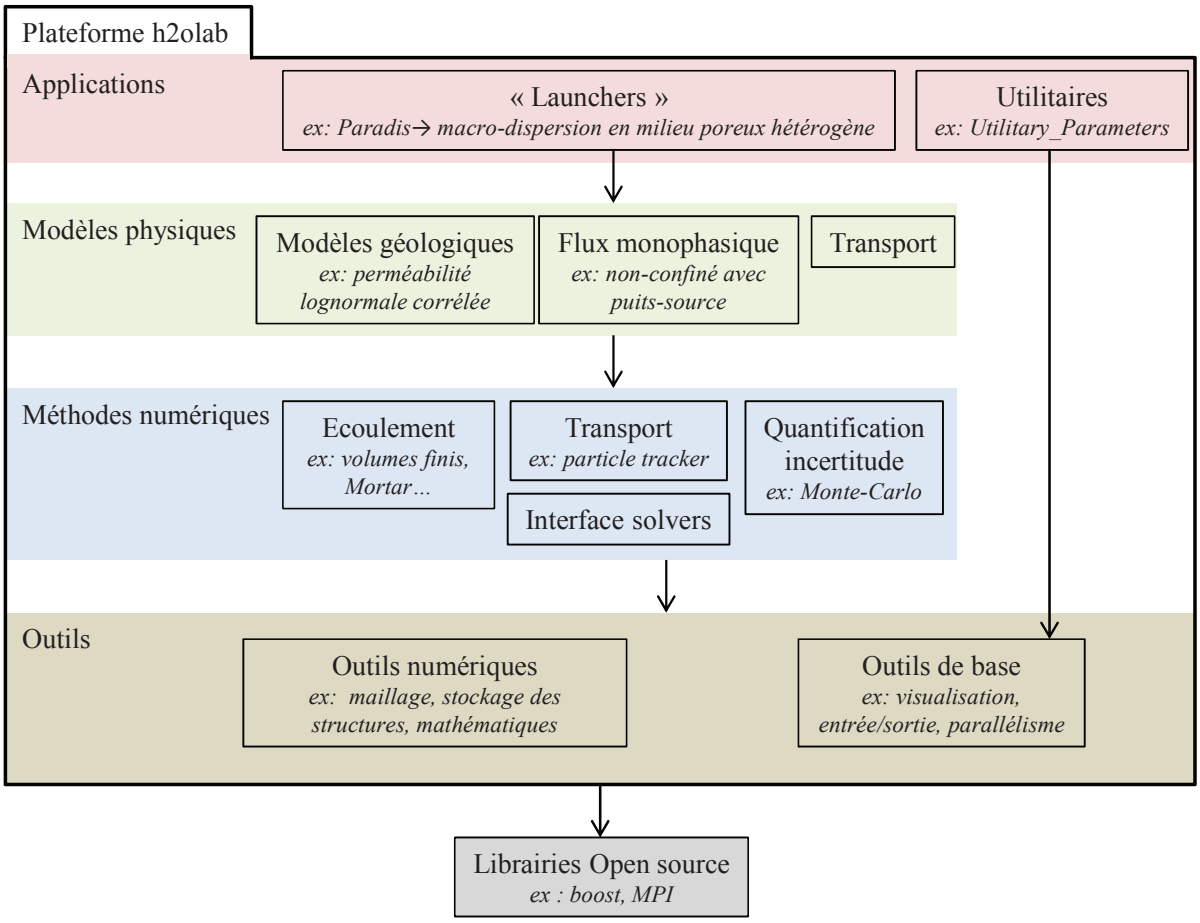


Figure 2-3: Architecture de la plateforme.

2.1.1.4. Les applications *Site Study* et *Runs Generation*

L'application *Site Study* que j'ai utilisée pour réaliser les simulations numériques est, comme son nom l'indique, dédiée à l'étude de sites hydrogéologiques.

- Méthode de génération du modèle hydrogéologique

Dans le cadre de cette thèse, j'ai développé une interface entre la plateforme h2olab et le géomodeleur Gocad, en premier lieu pour la création des modèles de site à géométrie complexe et paramétrisée. L'interfaçage est présenté en détails en section 2.1.2.1.

- Méthode numérique pour l'écoulement

L'équation de diffusivité en 3D en régime permanent est discrétisée sur une grille régulière anisotrope - particulièrement adaptée à la description d'hétérogénéités à l'échelle du site - et résolue par la méthode des volumes finis qui présente l'avantage d'être conservatrice pour les flux. L'équation de diffusivité peut être résolue en conditions confiné ou non-confiné. La modélisation de l'écoulement en conditions non-confiné permet la représentation des conditions de recharge variables naturelles et des variations de hauteurs de nappe saturée. Etienne Bresciani a développé durant sa thèse un algorithme permettant de résoudre l'équation non-linéaire du problème à surface libre en régime permanent (Bresciani et al., 2011). La résolution du problème est basée sur l'utilisation de la méthode des volumes finis avec une adaptation locale du volume et de la position des nœuds des mailles situées sous la surface libre. Cette méthode présente les avantages des deux méthodes de résolution traditionnelles – volume finis classiques et maillages totalement adaptatifs : rapidité de résolution et justesse de la localisation de la surface libre.

- Méthode numérique pour le transport

Le transport de soluté inerte est simulé par un algorithme de transport particulaire, l'avantage étant l'absence de diffusion numérique. Les trajectoires des particules sont déduites par interpolation linéaire du champ de vitesse pour la composante advective et par un modèle stochastique pour la composante diffusive-dispersive.

Une description détaillée des méthodes numériques pour l'écoulement et le transport est présente dans l'article du Chapitre 4.

L'outil *Runs Generation* a, quant à lui, pour rôle d'automatiser la génération de fichiers de paramètres de simulation et de batchs de lancement en séquentiel et/ou simultané. Ainsi, pour une étude faisant varier p paramètres ayant chacun $v(p)$ valeurs, il suffit de renseigner les paramètres communs à toutes les simulations et de préciser, pour les p paramètres, leur $v(p)$ valeurs. Quasi-instantanément sont créés les $\prod_{k=1}^{p} v(p)$ fichiers de paramètres ainsi qu'un certain nombre d'exécutables, de 1 (purement séquentiel) à $\prod_{k=1}^{p} v(p)$ (purement simultané), permettant dans mon cas de lancer l'application *Site Study* avec les fichiers de paramètres.

2.1.2. Contributions personnelles

Les contributions majeures apportées à la plateforme sont l'interfaçage avec le géomodeleur Gocad et l'amélioration de l'algorithme du transport ainsi que son adaptation aux conditions de surface libre. Des modifications mineures ou finalement non utilisés pendant cette thèse concernent le mode d'injection des particules (proportionnelle au flux) ainsi que le découpage du milieu en zones permettant de réaliser des bilans de flux et de décomposer les temps de résidence par zone.

2.1.2.1. Interfaçage avec Gocad

- Présentation de Gocad

Gocad (Geological Object Computer Aided Design) est un logiciel de modélisation 3D des objets géologiques du sous-sol. Il peut prendre en compte une très grande variété de données et d'informations (gravimétrique, sismique, topographique, diagraphies, affleurements, connaissances générales…) et de les interpréter afin d'en déduire un modèle géologique. Les fonctionnalités de ce modeleur (concevoir des formes complexes en 3D, créer des grilles régulières ou non et visualiser des données et des résultats) et son interface très aboutie en font un outil performant et fort agréable en complément de la plateforme de simulations. Le choix de ce géomodeleur a été aussi fortement guidé par l'expertise déjà présente à Géosciences, en la personne de Christian Le Carlier (Caumon et al., 2009; Le Carlier de Veslud et al., 2009).

- Les objets de Gocad

Gocad constitue un outil formidable pour la création des modèles de site permettant de définir des structures à géométrie complexe et paramétrisée telles que des fractures à pendage variable puis d'intégrer ces structures dans un domaine fini discrétisé, appelé « voxet », et enfin d'y décrire facilement pour chaque zone du domaine les propriétés hydrauliques voulues telles que la perméabilité (Figure 2-4).

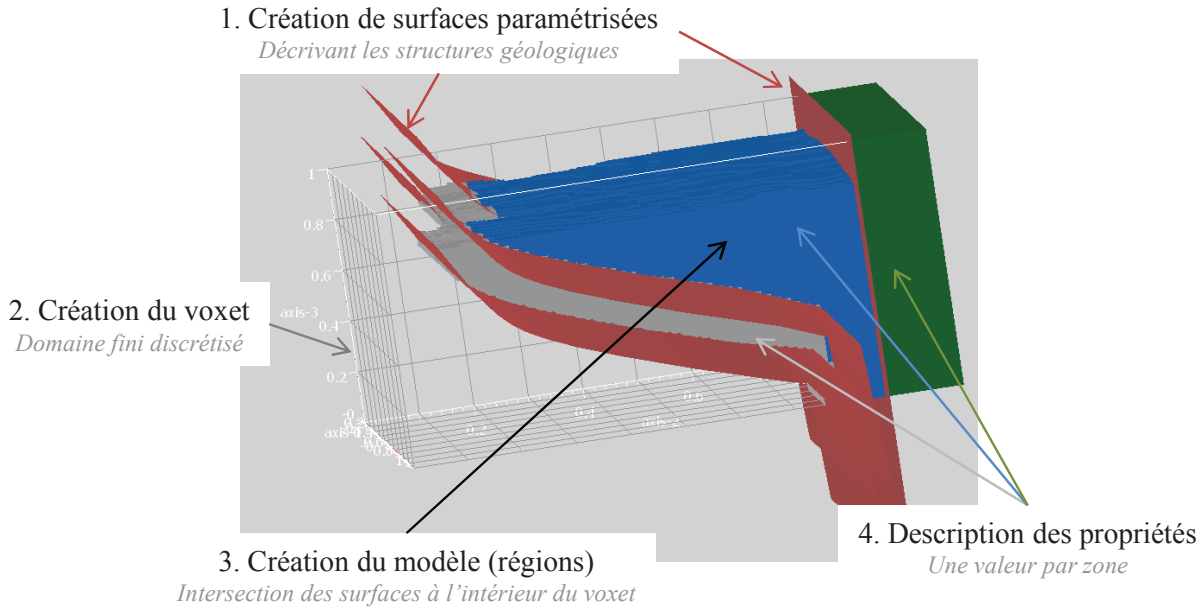


Figure 2-4: Création d'un modèle hydrogéologique sous Gocad.

Outre la souplesse dans la création des structures, la possibilité pour une même structure de définir un grand nombre de champs de propriété est clairement un avantage permettant d'explorer bon nombre de combinaisons possibles, la seule limite étant finalement la taille du fichier de données. Le processus de création de grilles a été fortement optimisé par l'utilisation de scripts rendant automatique une grande partie des étapes de création. Si l'intérêt de Gocad en pre-processing est indéniable, il l'est tout autant en post-processing pour la lecture de résultats tels que le champ de charge hydraulique ou le champ de vitesse qu'on peut aisément intégrer au voxet existant.

La deuxième contribution de Gocad à l'élaboration de modèles et à l'exploitation des résultats concerne les surfaces. En pre-processing, à partir d'un fichier de topographie éventuellement trop grand, il est très aisé de définir la topographie adaptée à la grille créée. Les conditions aux limites, charge imposée et/ou flux imposé, peuvent être aussi décrites sans peine pour n'importe quel bord du domaine avec un niveau de détail optimal c'est-à-dire une information par maille de bord (Figure 2-5). En post-processing, deux des résultats importants des modèles, la position de la surface libre et les flux en surface, peuvent aussi être importés et exploités dans Gocad.

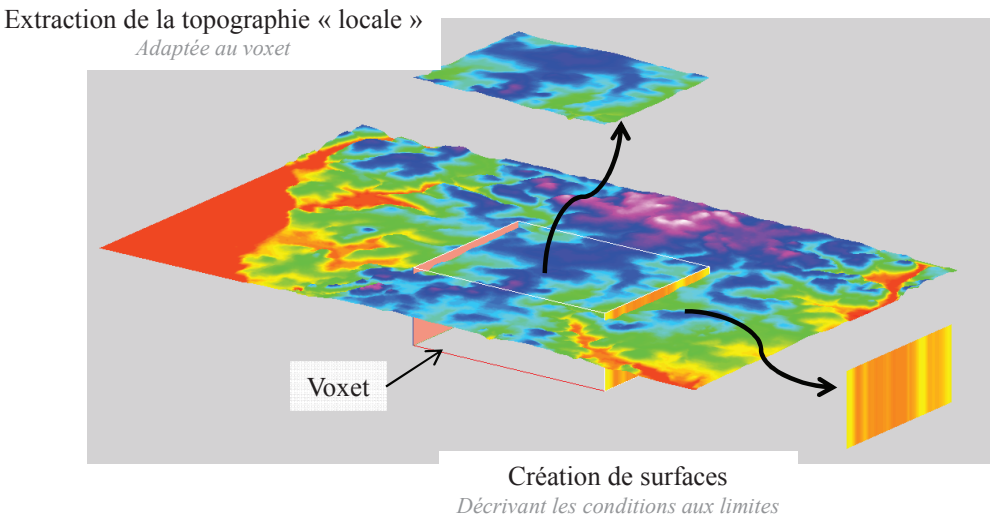


Figure 2-5: Création des éléments de surface : topographie et conditions aux limites.

Peu exploitables en termes de figures car en 3D, les chemins des particules restent néanmoins intéressants pour la compréhension de l'organisation des flux et pour l'analyse des temps de trajet peints sur les lignes (Figure 2-6).

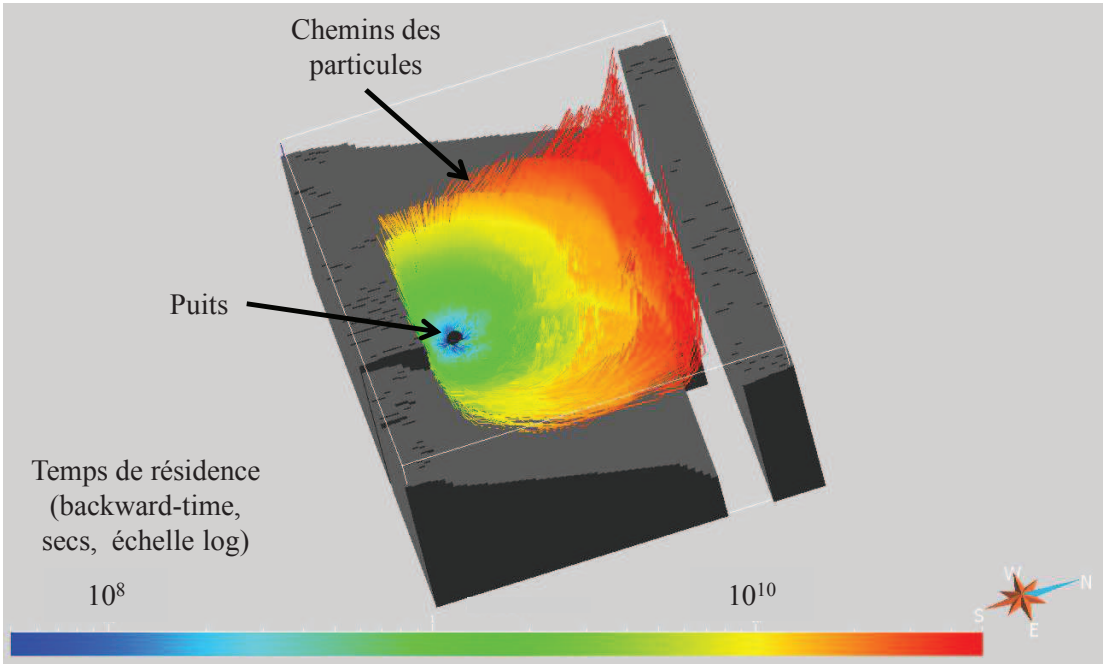


Figure 2-6: Visualisation des trajets des particules et du temps de résidence.

- Format d'échange (lecture, écriture)

L'utilisation de logiciels de pré et post-traitement requiert la création des fichiers sous des formats spécifiques, propres aux logiciels utilisés. L'étape de conversion des fichiers s'est évidemment réalisée dans h2olab puisque accessible et plus flexible que Gocad. La lecture et

l'écriture des fichiers doivent donc tenir compte intégralement des formats de fichiers de Gocad, notamment des en-têtes. L'interfaçage avec Gocad a entraîné la création d'un utilitaire *Utilitary_IO* auquel se sont greffés par la suite d'autres interfaçages (avec les fichiers de GridVisual notamment). Un test de non-régression est consacré à la vérification de l'interfaçage avec Gocad, notamment pour la gestion du changement de repère (voir ci-dessous). L'interfaçage avec Gocad intervient à chaque étape clé de la simulation (encadré en rouge, Figure 2-7):

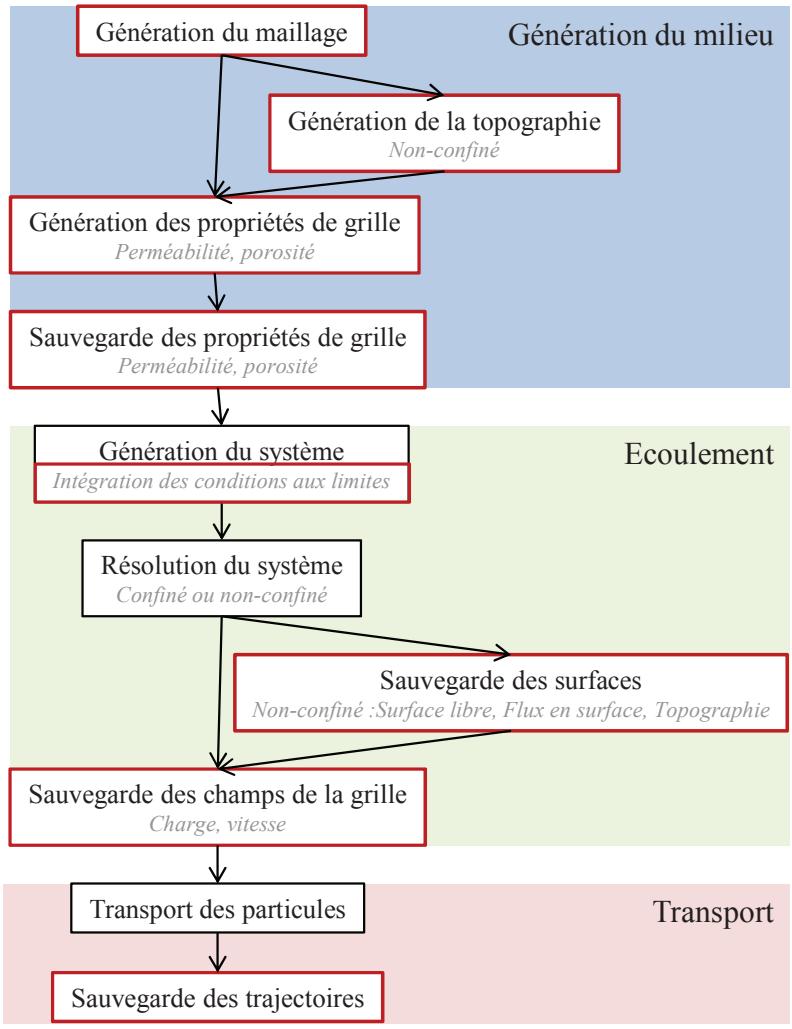


Figure 2-7: Intervention de Gocad dans une simulation type : génération du milieu, écoulement et transport.

- Gestion des repères

A la gestion des formats de fichier s'ajoute une difficulté supplémentaire qui est la concordance des repères orthogonaux entre h2olab et Gocad (Figure 2-8). Tout élément dans h2olab est attaché à un repère orthogonal défini par :

- Un point origine O_H (x_H; y_H; z_H) à un des coins en bas de la grille,
- Trois vecteurs directeurs **I**, **J** et **K**, le vecteur **J** étant par défaut le vecteur vertical.

En tant qu'outil de modélisation, Gocad est à la jonction entre les données – réelles – et les modèles – abstraits. Ainsi, parce qu'il naît de l'analyse de données et qu'il permet d'en faire la comparaison avec les résultats, tout modèle dans Gocad est attaché à des éléments géoréférencés : dans notre cas, le repère Lambert II a été utilisé. La grille, nommée G (Figure 2-8), présente ainsi les caractéristiques suivantes :

- Un point origine O_G (u_G, v_G, w_G) au centre d'une des mailles de coin de la grille, *a priori* différente de l'origine du système de géoréférencement,
- Trois vecteurs directeurs orthogonaux $\mathbf{U}_G$, $\mathbf{V}_G$ et $\mathbf{W}_G$, différents du système de géoréférencement par défaut et *a priori* différents de **I**, **J** et de **K** tant dans la concordance entres les vecteurs que dans leur orientation.

Les informations concernant la grille (discrétisation, taille, point origine, orientation) sont stockées dans un fichier annexe au fichier de données. Dans ce dernier, les propriétés de la grille sont stockées en colonne avec pour trois premières colonnes les indices des éléments du maillage que nous noterons (u; v; w). Ces éléments sont triés dans l'ordre des trois vecteurs directeurs U_G, V_G et W_G. C'est cette contrainte en particulier qui impose aux fonctions de lecture et d'écriture de faire le lien entre les éléments (u; v; w) de Gocad et les éléments d'h2olab que nous noterons (i; j; k). La première étape consiste ainsi à analyser le fichier de référence afin d'en déduire le vecteur vertical puis l'organisation de la base orthonormée directe. Une fois la base connue, la fonction de lecture balayant les données permet de positionner correctement les propriétés des éléments de la grille dans h2olab. Par exemple, si la grille s'inscrit dans le repère **U**, **V**, **W** avec **U** le vecteur vertical et (**V**, **W**, **U**) la base directe associée. La base directe sous h2olab étant (**Z**, **X**, **Y**), on associera à **V** le vecteur **Z**, à **W** le vecteur **K** et à **U** le vecteur **J**. Ce mode de lecture s'applique aussi aux surfaces.

Une complexité supplémentaire s'ajoute pour les données ou résultats de type « point » tels que les trajets des particules. Elle découle bien évidemment du géoréférencement des éléments dans Gocad mais aussi du fait que l'origine du repère dans h2olab est située à un des coins en bas de la grille : les positions des points sont donc connues vis-à-vis de ce point origine alors que l'origine de la grille dans Gocad est définie au centre d'une des mailles de coin. Ainsi, afin de convertir la position d'un point M défini dans h2olab ($\mathbf{O_HM}$) vers un point

M du repère par défaut (**OM**), il faut, en plus de la concordance entre les bases, effectuer la transformation décrite dans l'équation (14).

$$\overrightarrow{OM} = \overrightarrow{OO_G} + \overrightarrow{O_GO_H} + \overrightarrow{O_HM} = \underbrace{\overrightarrow{OO_G} + \overrightarrow{O_GO_H}}_{translations} + \underbrace{\begin{pmatrix} cos\theta & -sin\theta \\ sin\theta & cos\theta \end{pmatrix} \overrightarrow{O_HM_H}}_{rotation\ d'angle\ \theta} \qquad \textbf{(14)}$$

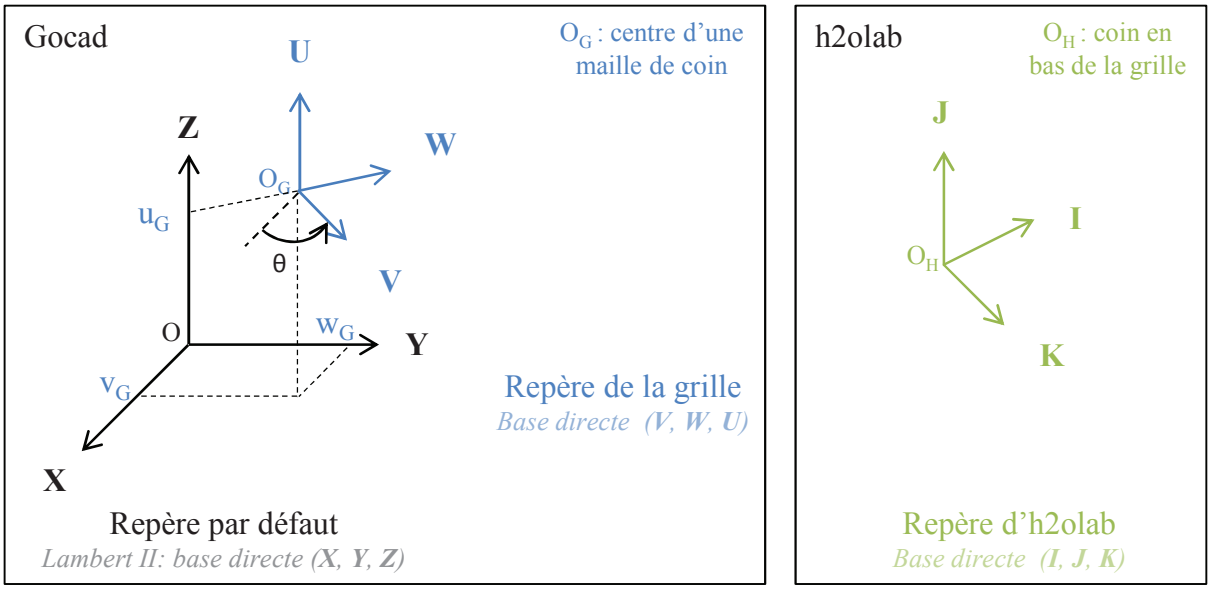


Figure 2-8: Manipulation des données et des résultats dans les différents repères rencontrés pour un interfaçage avec Gocad.

2.1.2.2. Transport

- Présentation: fonctionnement en cascade du transport

Avec comme ambition une grande modularité comme cité plus haut, l'architecture du code de transport dans h2olab s'organise en cascade (Figure 2-9): à la gestion globale du transport, s'ajoutent une gestion par sous-ensembles et une gestion par maille. La gestion générale du transport implique l'injection des particules, le transport et le contrôle (passage entre processeurs, fin de l'algorithme...). Selon que la réalisation du transport se fasse en parallèle ou non, les sous-ensembles peuvent être la grille de calcul elle-même ou des subdivisions de la grille, chacune gérée par un processeur. Une fois positionné sur un sous-ensemble, le transport des particules a lieu maille par maille.

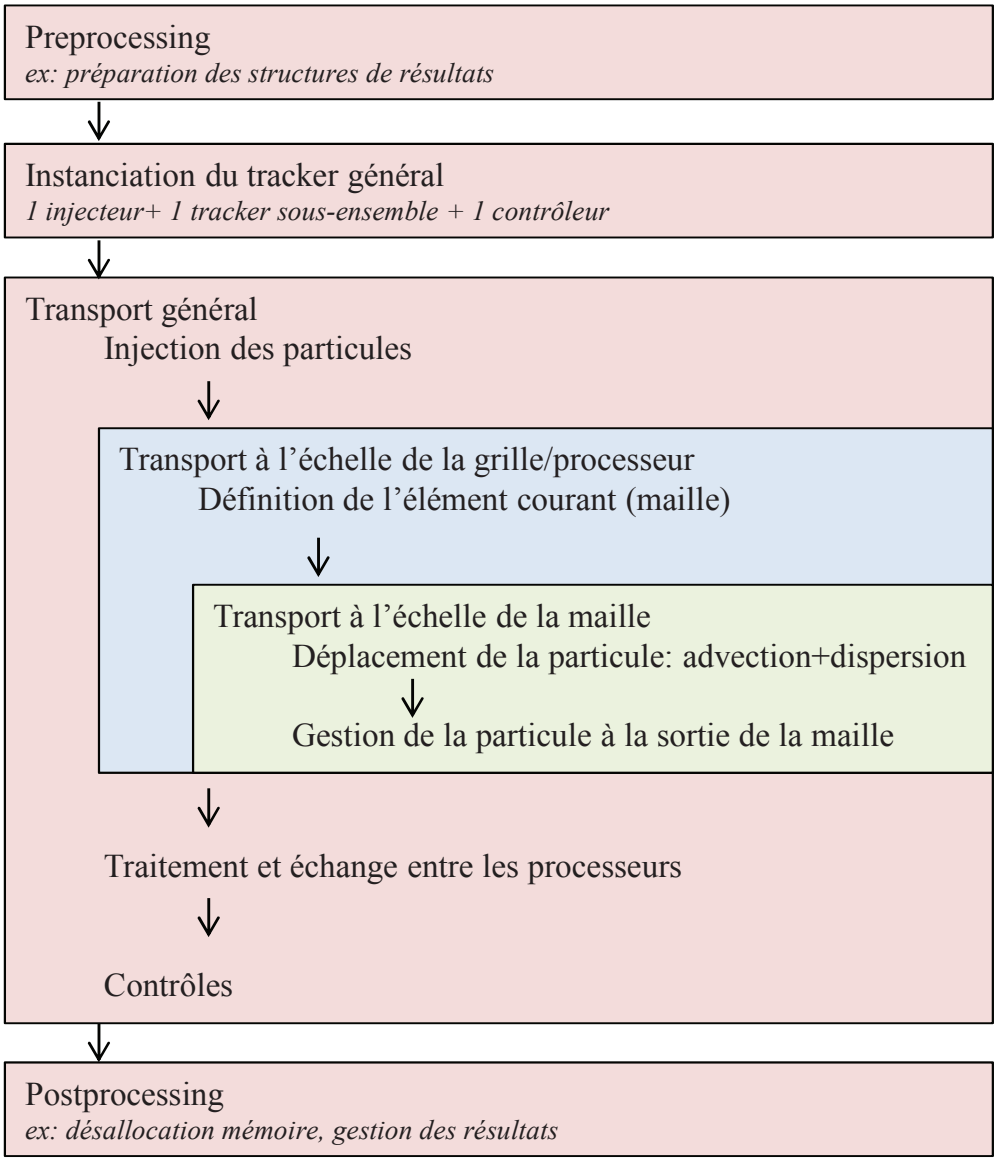


Figure 2-9: Fonctionnement du module de transport.

- Transport en forward-time ou en backward-time

Le transport s'exprime classiquement par l'équation d'advection-dispersion qui définit la concentration d'un soluté comme une fonction du temps et de l'espace. L'option de backward-time est très simplement implémentée par inversion de la vitesse de Darcy v_D lors de la construction du champ de vitesse à partir du camp de charge (éq. (15)).

$$v_D = \begin{cases} -K_{12}\dfrac{h_2 - h_1}{d_{12}} & forward - time \\ +K_{12}\dfrac{h_2 - h_1}{d_{12}} & backward - time \end{cases}, \qquad \textbf{(15)}$$

avec K_{12} la conductivité hydraulique équivalente entre les deux points 1 et 2, h_1 la charge au point 1, h_2 la charge au point 2 et d_{12} la distance entre les deux points 1 et 2.

Une modification qui permet d'améliorer le module de transport et qui trouve sa place tout particulièrement dans les études de site.

- Modification de la gestion des particules à l'interface entre mailles

Une des modifications du code de transport avait pour but une meilleure définition de l'interface entre la maille – l'objet élémentaire du transport – et le sous-ensemble auquel elle appartient (Figure 2-10). Trois éventualités s'offrent à la particule au sortir d'une maille :

- Passer une limite à flux sortants du domaine: la particule est supprimée. La condition est dite BC_ADSORBING.
- Passer une limite à flux nuls ou entrants dans le domaine: cette condition impossible doit renvoyer une erreur. La condition est dite BC_REFLECTING.
- Passer dans une autre maille quelconque, la condition est dite BC_NO. La maille d'arrivée peut :
  - appartenir au même processeur : la condition est dite INSIDE_PROC.
  - ne pas appartenir au même processeur, la particule est alors gérée par un autre processeur : la condition est dite BETWEEN_PROC.

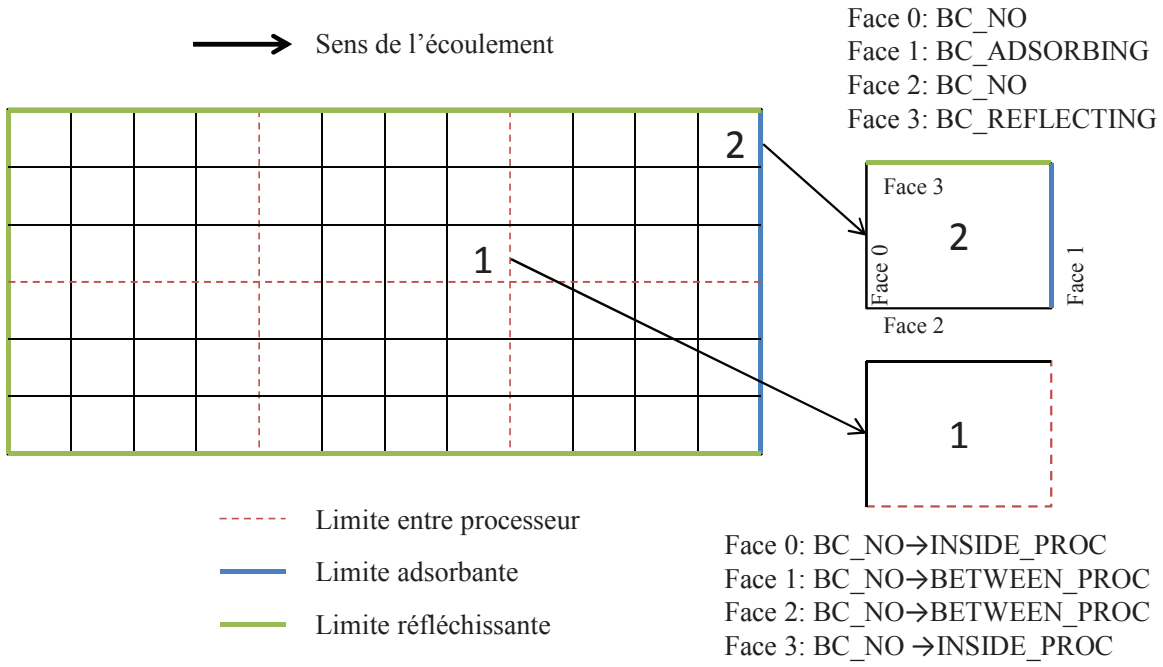


Figure 2-10: Comportements possibles des particules à l'interface entre mailles en 2D.

Initialement, le comportement de la particule au sein de la maille était analysé de manière globale. Les vitesses des particules sur chaque face de la maille - jusqu'à 6 en 3D - étaient effectivement toutes analysées mais un seul comportement en était déduit, sans considérer par quelle face était en réalité passée la particule et donc quelle partie du champ de vitesse elle avait réellement explorée. En d'autres termes, une seule face adsorbante suffisait à faire sortir la particule du domaine ce qui engendrait des imprécisions dans les résultats. Particulièrement, les cas de transport avec dispersion étaient très mal gérés : une particule proche d'un bord adsorbant mais ayant remonté le courant par dispersion sortait finalement du domaine, une particule proche d'un coin adsorbant d'un côté et réfléchissant de l'autre pouvait sortir du domaine par la face réfléchissante grâce à la dispersion.

L'idée de cette modification est donc d'analyser le comportement de la particule non plus de manière globale - dans la maille - mais de manière précise - sur chaque face - en définissant un vecteur associant un comportement à chaque face. A chaque itération de transport, à la définition de l'élément courant, s'ajoute ainsi la définition de ces comportements. Le déplacement de la particule en tant que tel n'est pas modifié par cet algorithme. Seule l'analyse de la face de sortie s'y ajoute (Figure 2-11).

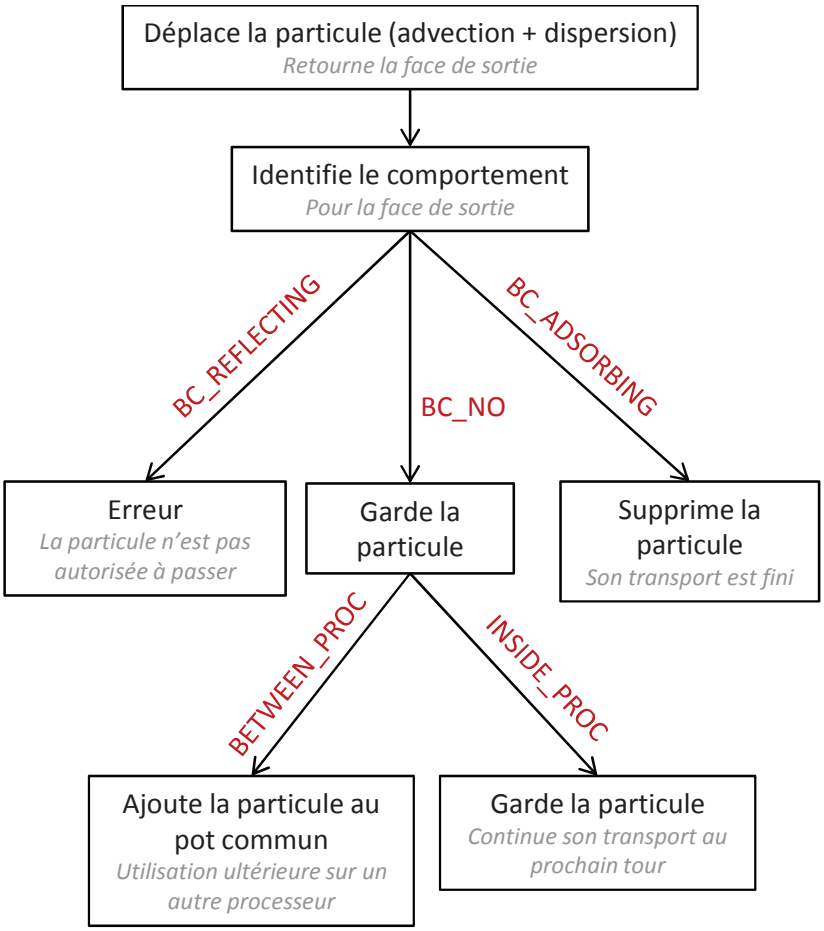


Figure 2-11: Algorithme de gestion des particules à l'interface entre mailles.

Outre la résolution des problèmes cités plus haut, la gestion de l'interface par face s'est révélée particulièrement judicieuse pour les cas de surface libre pour lesquels les limites de la grille et leurs conditions de flux sont beaucoup plus complexes qu'en milieu confiné.

- Transport dans la grille: gestion de la surface libre et intégration des puits

Dans le cas d'une résolution de l'équation de diffusivité en conditions non-confiné, la position de la surface libre, et donc les limites du système, ne sont pas connues *a priori* et diffèrent au moins en partie de celles du domaine discrétisé régulier initial. La fonctionnalité de transport lors d'une simulation en milieu non-confiné exige ainsi une redéfinition des limites du domaine, et des vitesses associées. En effet, autant les limites que leurs vitesses sont critiques dans la gestion des éléments transportés ; la règle d'or étant que l'ensemble des faces de bord doit constituer une surface fermée. Cette redéfinition prend les traits d'un post-traitement après la résolution du système non-linéaire. Elle concerne particulièrement la structure *borders*, un conteneur map ayant pour clé le numéro des mailles de bord (dans le système

global) et pour valeur une map associant aux faces de bord les valeurs de vitesse. La redéfinition des bords (Figure 2-12) se traduit par :

- La suppression de l'ensemble des éléments du conteneur correspondant aux cellules de bord situées strictement au-dessus de la surface libre,
- La création de nouveaux éléments au conteneur correspondant aux mailles situées au niveau de la surface libre,
- La mise à jour des éléments des cellules situées au niveau de la surface libre et sur une des limites verticales du domaine discrétisé initial.

La définition des flux sur les faces de bord suit une règle très simple : les flux sur les faces horizontales supérieures sont calculés par vérification de la conservation de la masse en supposant que les flux à travers les faces des bords verticaux sont nuls. Cette simplification s'avère être plus judicieuse et plus réaliste – flux sub-verticaux sous la surface – qu'un partage hasardeux entre les faces de bord.

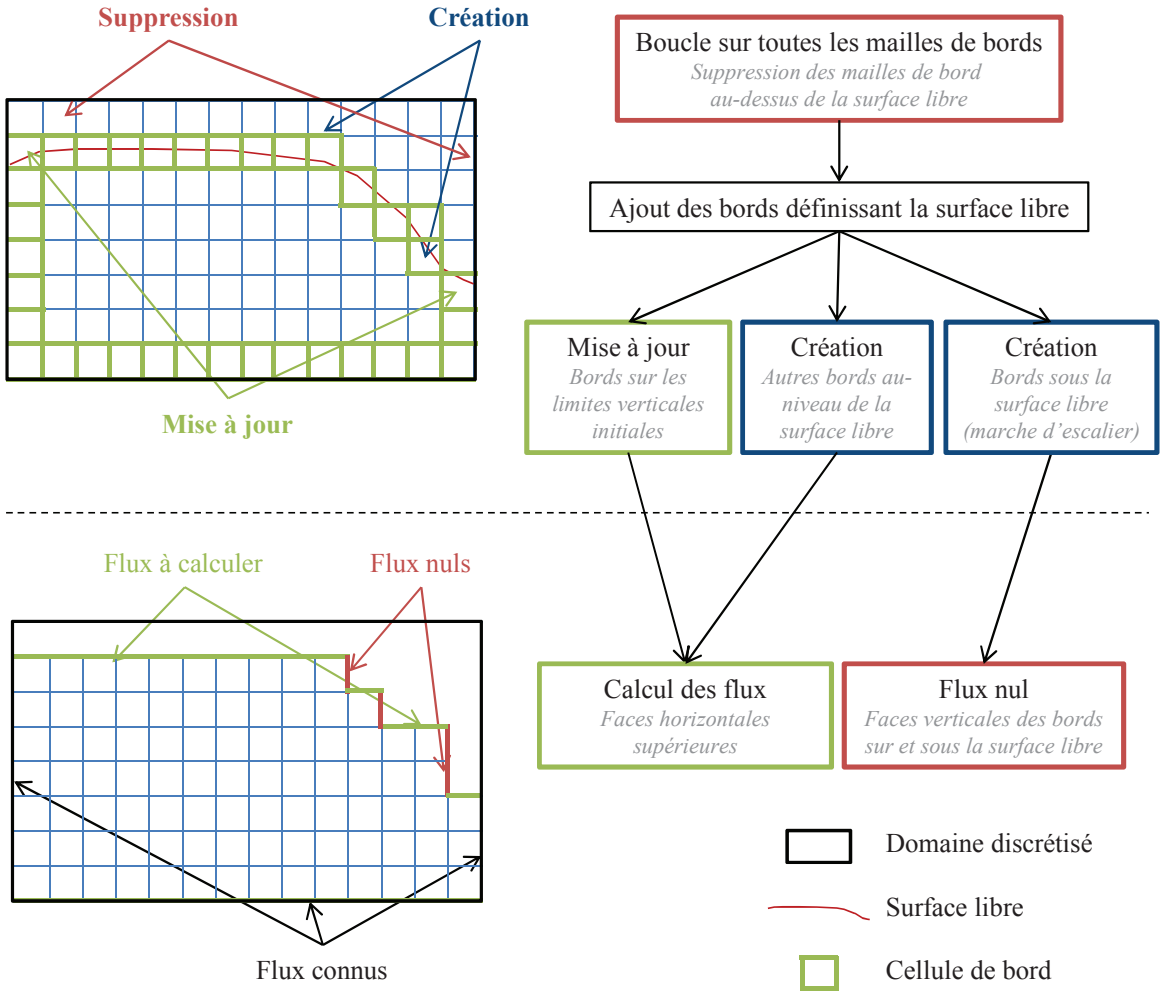


Figure 2-12: Algorithme d'intégration de la surface libre aux limites du domaine.

Il est courant de réaliser des simulations de transport utilisant des modèles de sites possédant un terme puits-source. Il est donc indispensable de gérer correctement le transport des particules aux abords d'une cellule puits-source, en d'autres termes, que les particules aient connaissance de cet exutoire. Ceci est effectué en post-traitement de la résolution de l'équation de diffusivité, en conditions confiné ou non-confiné. Deux cas peuvent se présenter : lors d'une simulation en forward-time si le terme puits-source est un pompage (puits) ou lors d'une simulation en backward-time si le terme puits-source est une injection (source).

L'intégration du puits est réalisée de manière indirecte en intégrant, à la structure *borders*, les faces communes à la maille de puits elle-même et à ses mailles voisines. De cette manière, nous évitons le transport des particules dans la maille de puits où l'interpolation du champ de vitesse peut s'avérer douteuse. Par simplicité, l'ensemble des flux sur les faces ainsi ajoutées

dans la structure *borders* sont imposés sortant : la limite liée au puits est ainsi une surface fermée quelque soient les valeurs de vitesse.

L'adaptation du code de transport aux conditions de surface libre a nécessité un investissement important, la possibilité d'un problème 2D ou 3D, la très forte variabilité de la géométrie de la surface libre ainsi que des conditions de flux en surface imposant un effort supplémentaire de réflexion pour généraliser le traitement du problème. Des tests de non-régression consacrés à la fonctionnalité du transport avec surface libre, avec ou sans terme puits-source, ont été créés.

- Modification de l'algorithme de transport dans la maille

Le module de transport dans la maille dispose de nombreuses fonctions de correction, particulièrement du pas de transport, intervenant dans des cas particuliers de déplacement des particules. De nombreuses améliorations de ces fonctions, beaucoup trop techniques pour être décrites ici, ont été apportées. Ces améliorations se sont avérées très pertinentes pour les études de site où la structure complexe et tridimensionnelle du champ de vitesse, les conditions aux limites particulières, les termes puits-source ainsi que le nombre élevé de particules étaient propices aux défaillances de l'algorithme.

2.1.2.3. Flux et transport en semi-transitoire

Le développement du semi-transitoire avait pour objectif de pouvoir réaliser des simulations de transport avec des changements temporels du champ de vitesse, afin de simuler l'impact d'événements majeurs sur le transport tels que la mise en route d'un pompage. Ces changements sont relativement réduits en nombre et *a priori* décorrélés entre eux d'où l'idée de semi-transitoire, l'avantage étant de pouvoir aborder la problématique du transitoire en gardant les avantages d'une simulation en état permanent - notamment la rapidité d'exécution.

L'implémentation de l'option de semi-transitoire s'est assez facilement réalisée à partir de l'option déjà existante de fluctuation du champ de vitesse : les classes et méthodes ont été réutilisées et adaptées si besoin il y avait, seuls les paramètres sont propres au semi-transitoire. Le principe est assez simple (Figure 2-13): l'utilisateur renseigne les paramètres associés à chaque état du champ de vitesse et les temps de passage d'un champ à l'autre indispensables pour le transport des particules. Chaque champ de vitesse en régime permanent est déterminé tour à tour puis les particules sont transportées successivement dans chaque

milieu caractérisé par un champ de vitesse mais aussi, en conditions non-confiné, des conditions aux limites propres.

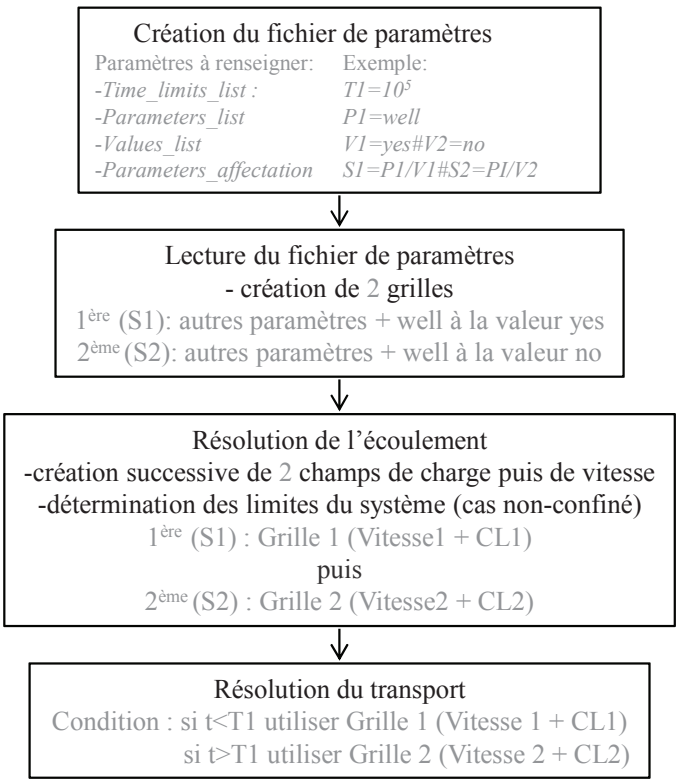


Figure 2-13: Déroulement d'une simulation type en semi-transitoire.

La contrainte majeure de ce type de simulation se rencontre en milieu non-confiné c'est-à-dire lorsque les limites du système sont irrégulières et propres à chaque jeu de paramètres. Les particules transportées dans un premier milieu sont transférées dans un second milieu si leur temps de résidence est supérieur au temps de passage entre les deux milieux. Si le second milieu est plus petit que le premier, typiquement avec une surface libre plus basse, ces particules peuvent donc se retrouver en dehors du second domaine. Ceci est tout simplement lié au fait que ces simulations ont un degré de discrétisation temporelle extrêmement pauvre. Heureusement, l'option forward-backward peut permettre de contourner ce problème : l'idée étant de transporter les particules en premier lieu dans le milieu le plus petit.

Des tests de non-régression, typiquement des perméamètres 2D et 3D, ont été créés pour valider cette fonctionnalité.

2.2. Développement d'utilitaires sous Matlab

2.2.1. Produit de convolution

La détermination des âges obtenus à partir des traceurs environnementaux étant une exploitation des résultats de simulation, typiquement de la distribution des temps de résidence, il a été préféré un développement de l'algorithme sous Matlab (Figure 2-14). L'algorithme ainsi développé est utilisable en l'état pour 4 traceurs : CFC-11, CFC-12, CFC-113 et SF_6 mais adaptable pour n'importe quel traceur, stable ou non, sous réserve de fournir la fonction d'entrée C_{in}.

Bien que relativement simple, cet algorithme repose sur quelques hypothèses qu'il convient de préciser. Tout d'abord, la constante de Henry permet de transformer, dans la loi du même nom, la teneur atmosphérique d'un gaz en une concentration molaire. Elle est fonction de la température de l'échantillon et de sa salinité. La chronique de température de recharge n'est pas connue avec précision. Néanmoins, connaissant globalement les conditions atmosphériques du dernier siècle, on peut s'attendre à ce que les variations de la constante de Henry soit négligeable. Elle est donc considérée constante au cours du temps. Ensuite, à défaut d'avoir des représentations continues pour les chroniques atmosphériques, la détermination de la concentration atmosphérique c(i) correspondant à la date de recharge t_r(i) se fait par interpolation linéaire des concentrations atmosphériques C_{in} connues aux dates t_r et $t_r + \Delta t_r$ englobant t_r(i) :

$$c(i) = (1 - l) \times C_{in}(t_r) + l \times C_{in}(t_r + \Delta t_r), \quad \textbf{(16)}$$

avec $l = \frac{t_r(i) - t_r}{\Delta t_r}$.

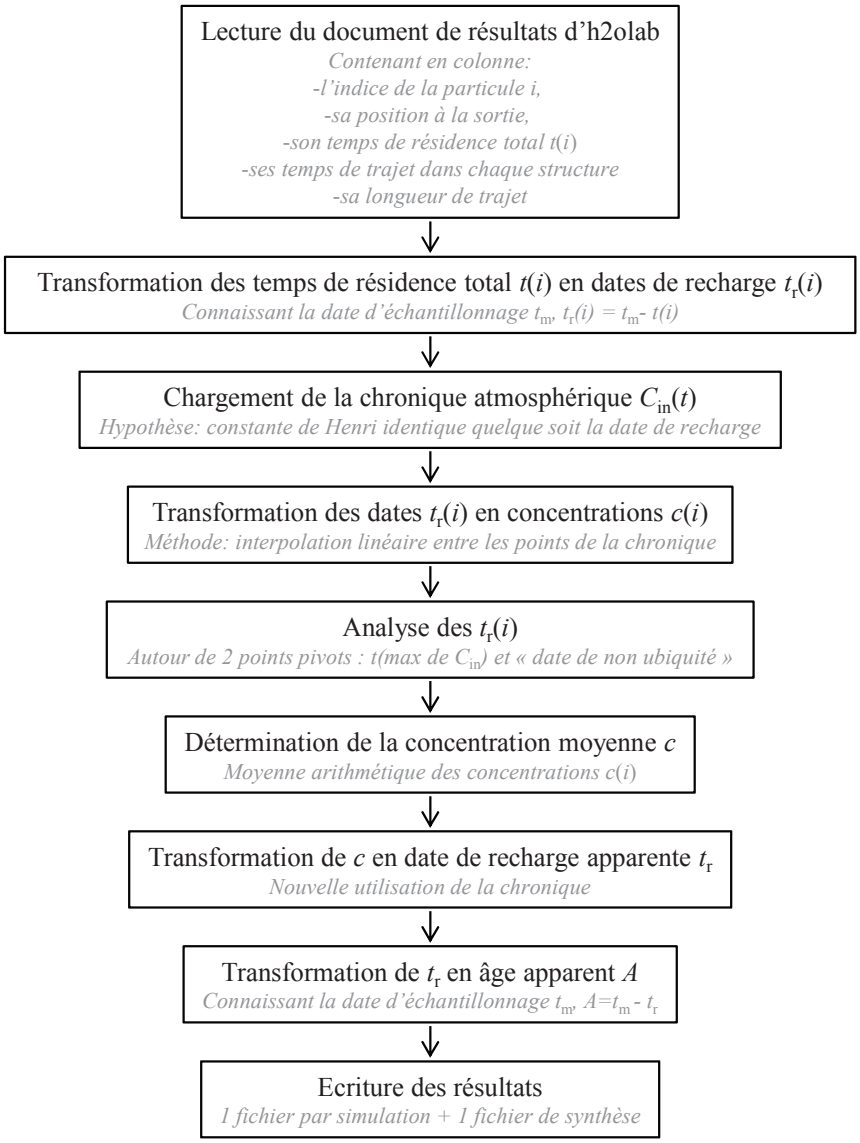


Figure 2-14: Algorithme du produit de convolution réalisé sous MATLAB.

2.2.2. Manipulation de fichiers et autres utilisations

De nombreux utilitaires ont été créés dans Matlab tout au long de cette thèse. Parmi les plus importants, figurent ceux liés à la manipulation, à la transformation des fichiers de résultats ainsi qu'à l'extraction rapide de certains résultats critiques. Les simulations étant réalisées en grand nombre, il était en effet judicieux de pouvoir récupérer de manière systématique les résultats pertinents de chaque simulation et de les regrouper dans des dossiers de synthèse : on pense par exemple à la distribution des temps de résidence ou la position de la surface libre. Il était tout aussi essentiel d'automatiser la transformation de certains résultats en vue de leur utilisation dans d'autres logiciels, notamment de représentation graphique comme Origin. L'extraction rapide de certains résultats concernait spécifiquement la vérification de la

convergence de certains algorithmes, le respect des conditions imposées telles que les termes puits-source ou encore la bonne lecture des fichiers de paramètres.

D'autres utilitaires ont trait au traitement de données pour les études de site ou bien le calcul de solutions analytiques.

A terme, tous les utilitaires créés dans Matlab devraient être intégrés aux autres outils de la plateforme h2olab, permettant ainsi autant leur partage que leur pérennisation grâce au contrôle de version.

2.3. Site de Plœmeur (Bretagne)

Une description succincte du site de Plœmeur est présente dans la partie 3 de l'article sur l'apport des données d'âge de l'eau (Chapitre 4). La section ci-dessous détaille la problématique du site et présente certaines données supplémentaires.

2.3.1. Introduction générale

Plœmeur n'est pas qu'une station balnéaire réputée du Morbihan où se côtoient retraités et touristes en tout genre. C'est aussi un aquifère cristallin très hétérogène particulièrement étonnant car très productif. Il est en effet exploité à plus d'un million de mètres cube par an depuis 1991 pour l'alimentation en eau potable de la ville de Plœmeur composé d'environ 20 000 habitants. Il est suivi par le laboratoire Géosciences Rennes depuis près de 20 ans et fait partie du réseau de sites hydrogéologiques H+.

La problématique essentielle de l'aquifère de Plœmeur concerne l'origine de cette ressource : quelle(s) structure(s) est (sont) responsable(s) de son occurrence et comment s'organisent les écoulements ? Quels sont les temps de résidence et par conséquent comment protéger la ressource ? L'idée n'est donc pas de quantifier cette ressource mais de la comprendre et de la protéger. Par ailleurs, dans quelle mesure peut-on généraliser le fonctionnement hydrogéologique de Plœmeur et l'appliquer à d'autres sites?

L'histoire du site de Plœmeur remonte au moment de l'effondrement de la chaîne hercynienne il y a environ 300 Ma. C'est à cette période qu'apparaissent, en Bretagne, des plutons granitiques qui se mettent en place au sein de micaschistes. Les granites de Plœmeur et de Guidel sont issus de ces phénomènes métamorphiques (Figure 2-15). Après l'effondrement de la chaîne hercynienne, des failles de cisaillement d'orientation Nord 20° (Figure 2-15), liées au cisaillement sud-armoricain, se forment sur le site. Ces failles ont pour effet de déformer les plutons granitiques déjà mis en place en Bretagne. L'événement géologique majeur qui intervient par la suite est l'ouverture de l'océan Atlantique, entre 250 et 200 Ma, dont les contraintes engendrées vont amener la formation de failles d'orientation Nord-140°, très peu visibles sur le site ; et ce, malgré la déformation postérieure due à la formation des Pyrénées (50-40 Ma). Il y a 60 à 50 Ma, se produit une altération des roches jusqu'à une profondeur d'environ 30m dans les bas fonds, profondeur néanmoins extrêmement variable. Cette altération intense, car sous un climat tropical, a entraîné la formation d'argiles. Plus récemment et encore aujourd'hui, on observe une altération ménagée des roches qui conduit à

la formation de roche éventuellement plus poreuse mais pas argileuse à cause du climat peu hydrolysant de ces quelques derniers millions d'années.

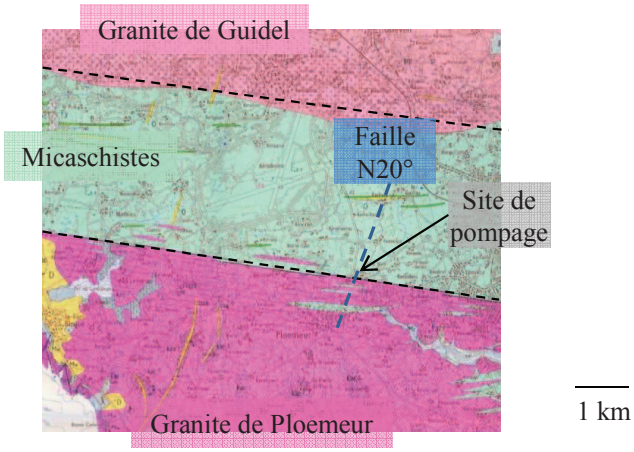


Figure 2-15: Extrait annoté de la carte géologique de Lorient (383) au 50 000ème (Horrenberger et al., 1972).

2.3.2. Données et contraintes

2.3.2.1. Limites du système

La carte géologique fournit quelques indices sur les limites du système : la présence des granites laisse supposer de fortes contraintes sur l'écoulement au Nord et au Sud. Les forages réalisés dans ces granites affichent tous des débits très largement négligeables. Dès lors, considérer les granites de Plœmeur et de Guidel comme des limites à flux nul paraît raisonnable. Aucune contrainte géologique ne semble exister dans l'axe Ouest-Est. La topographie, et notamment la position des points hauts, fixerait donc les limites du bassin hydrogéologique à Plœmeur. Les points bas de la topographie, quant à eux, sont des exutoires possibles du système, outre le puits de pompage. Notons que le site de Plœmeur est caractérisé par une topographie relativement peu variable : le gradient maximal sur la zone à modéliser est de 20 m sur une distance d'environ 1 000 m.

La recharge sur le site a fait l'objet de nombreuses études (Andermann, 2006; Carn, 1990; Touchard, 1999) à partir des données de pluviométrie et d'évaporation potentielle issues de la base de données de Météo France (période 1960-2009). Estimée à 200 mm par an, elle aide dans l'estimation des limites du bassin hydrogéologique : la surface nécessaire à l'alimentation du pompage serait de plus de 5 km^2. Le petit bassin versant (Figure 2-16) ne peut seul satisfaire le débit de pompage.

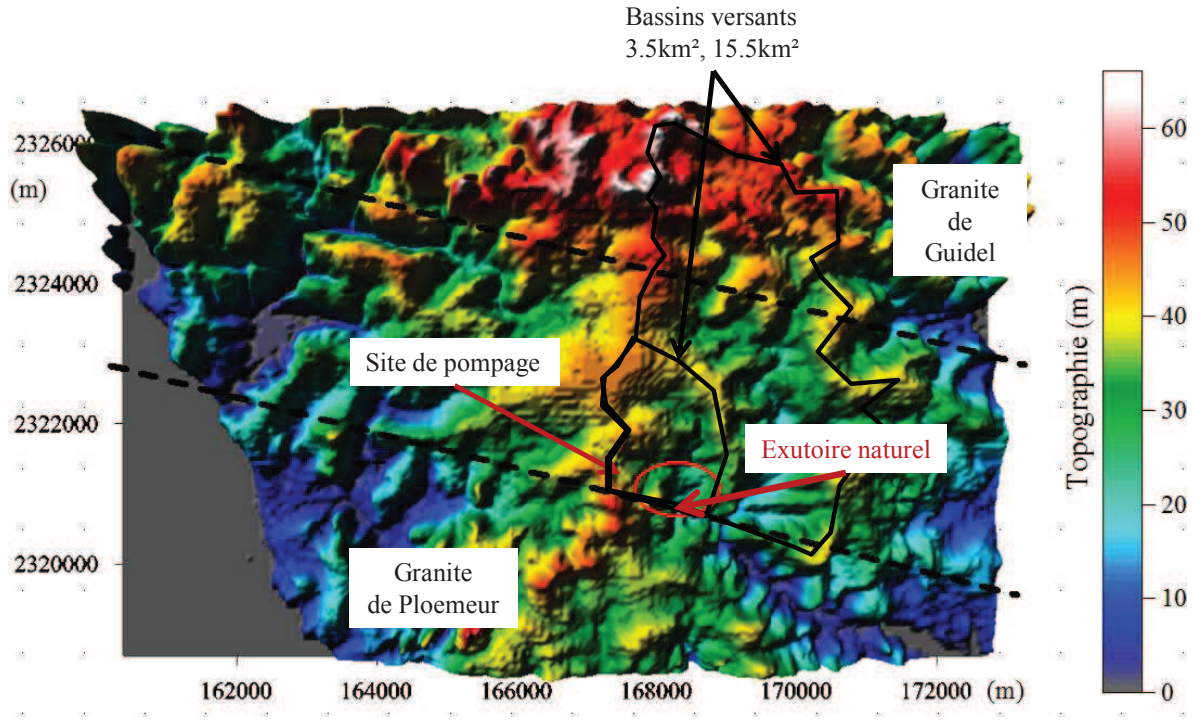


Figure 2-16: Bassins hydrologiques à proximité du site de pompage.

2.3.2.2. Organisation des structures géologiques

Coincé entre les plutons granitiques de Plœmeur et de Guidel (Figure 2-15), cet aquifère semi-confiné implique, à première vue, deux structures majeures : une zone de contact entre le granite de Plœmeur et la roche encaissante composée de micaschistes ainsi qu'une faille normale décrochante d'orientation Nord 20°. Le contact, très fracturé, est composé d'une alternance de feuillets granitiques et d'enclaves de micaschistes, de pegmatite, d'aplite et localement de mylonites et de roches broyées.

A l'échelle du site de pompage, de l'ordre du kilomètre, les nombreux tests hydrauliques effectués (pompage et débitmétrie entre forages) contraignent relativement bien l'organisation des structures, leurs propriétés hydrauliques et la connectivité. Mais les données manquent à une échelle supérieure nous privant d'une idée sur le fonctionnement du site. Seule une étude gravimétrique réalisée entre les deux granites aide dans la représentation de la structure du site à l'échelle plurikilométrique. L'inversion des données de gravimétrie laisse penser que la zone de contact, malgré un fort pendage au droit du site de pompage (30°), tend à pendre plus doucement par la suite jusqu'à se stabiliser à 2km du granite de Plœmeur pour enfin s'effondrer quasi-verticalement (Figure 2-17). Reste que la gravimétrie est un outil de géophysique et non d'hydraulique. Par ailleurs, le profil de la zone de contact est issu de l'inversion des données et suppose donc l'utilisation d'un modèle géologique conceptuel. Les

résultats de gravimétrie ne suffisent seuls à caractériser le fonctionnement hydrogéologique du site.

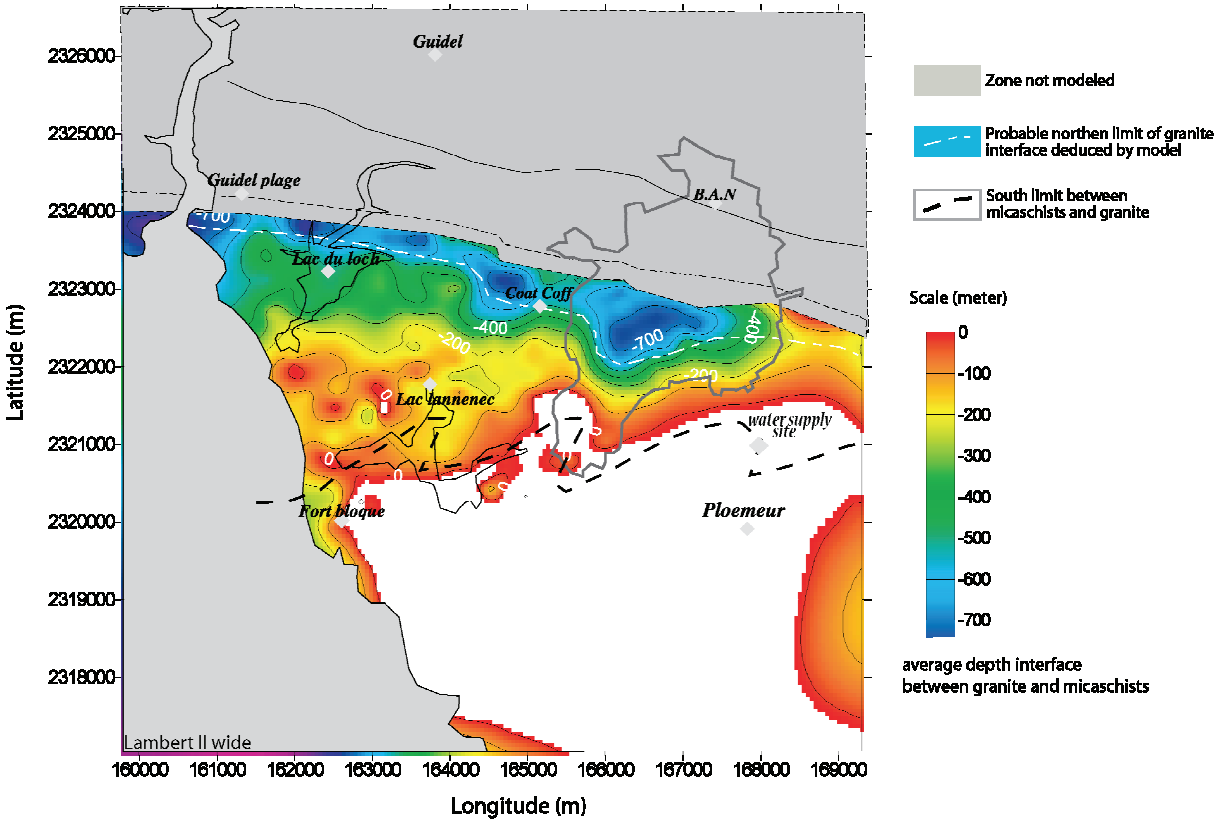


Figure 2-17: Profil de la zone de contact déduite de l'inversion des données gravimétriques, d'après Ruelleu et al. (2010).

2.3.2.3. Propriétés hydrauliques du milieu

Deux vastes campagnes de tests hydrauliques réalisées en 2004 et 2006 sont venues confirmer les observations faites sur le site de pompage lors des forations et reportées par Touchard (1999). La présence de structures actives en profondeur, au reste concomitantes avec la zone de contact et la faille N20°, a été validée et leurs propriétés hydrauliques estimées. La variabilité des transmissivités à faible échelle témoigne de l'hétérogénéité du site, les ordres de grandeurs permettant de cadrer les propriétés des différentes structures. L'accroissement de la transmissivité avec l'échelle (Figure 2-18) révèle une bonne connectivité des structures perméables et donc un contrôle des propriétés hydrauliques à grande échelle par ces structures.

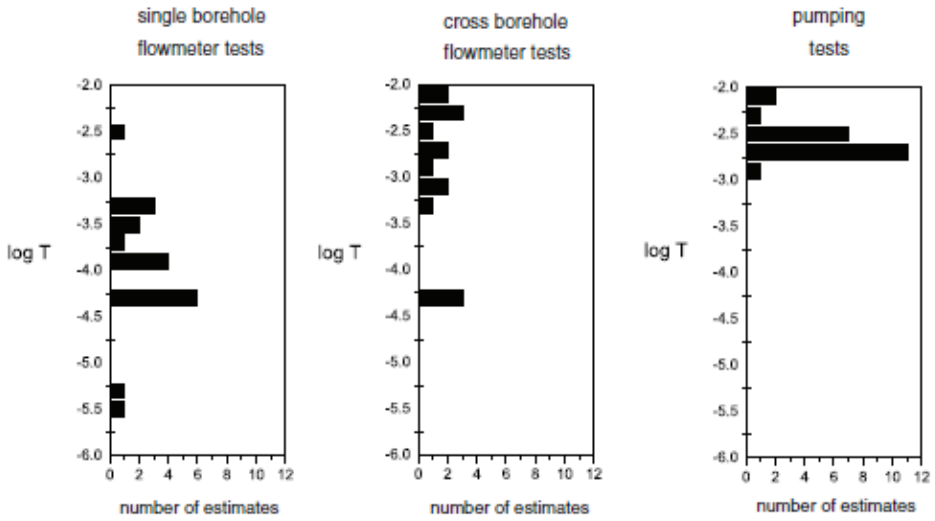


Figure 2-18: Estimation des transmissivités à différentes échelles : à proximité d'un forage (gauche), entre deux forages (10-150m, milieu) et à plus grande échelle (400m, droite), d'après Le Borgne et al. (2006).

Il est à noter que la cohérence des tests hydrauliques et de la gravimétrie avec d'autres données est encourageante. Citons à ce propos les données de déformation (tiltmètre à longue base) qui suggèrent que la recharge viendrait du Nord c'est-à-dire entre les deux granites et les données de température en forage grâce auxquelles on constate une eau anormalement chaude dans les pompages les plus au Nord du site de pompage ce qui suggère non seulement une remontée de fluide de la profondeur estimée à plus de 250m (Figure 2-19) mais aussi la présence d'une ou de plusieurs structures suffisamment perméables pour permettre cette remontée.

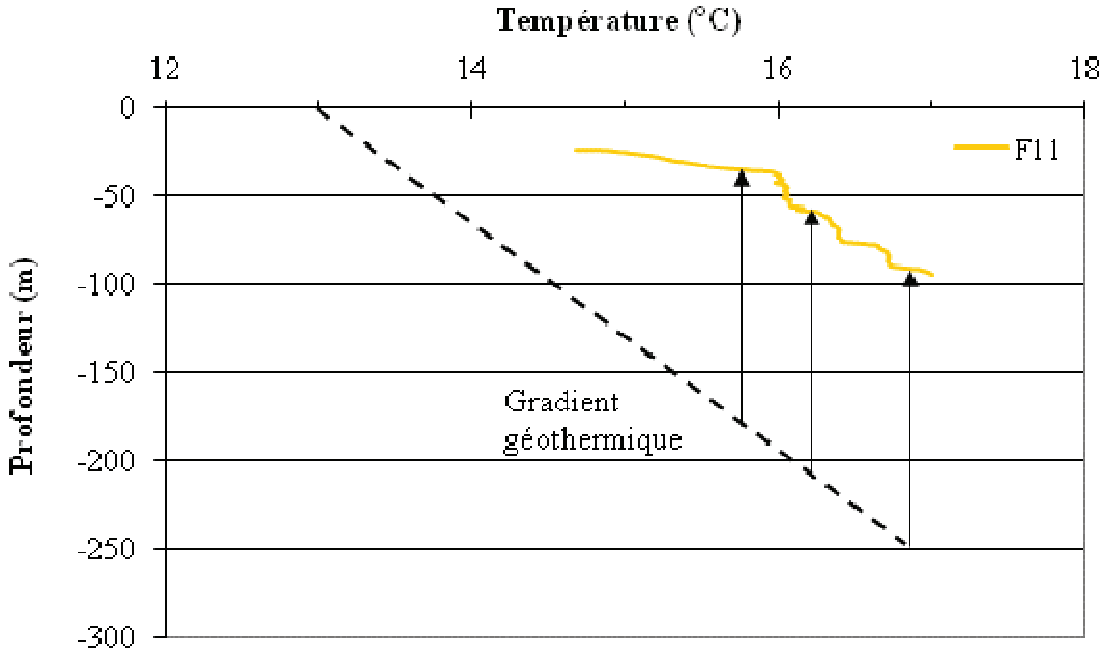


Figure 2-19: Profondeurs possibles des eaux arrivant au forage F11 déduites de l'anomalie du profil de température avec le gradient géothermique, d'après Bour (2010). Le gradient géothermique est basé sur le profil de température d'un forage n'ayant aucun écoulement.

2.3.2.4. Chimie et datation des eaux

Avec le pompage, l'augmentation des concentrations en sulfates et chlorures semblent indiquer une origine profonde de l'eau ce qui concorderait avec une zone de contact qui s'enfoncerait à mesure que l'on va vers le Nord. La diminution des concentrations en nitrates pourrait s'expliquer par de la dénitrification.

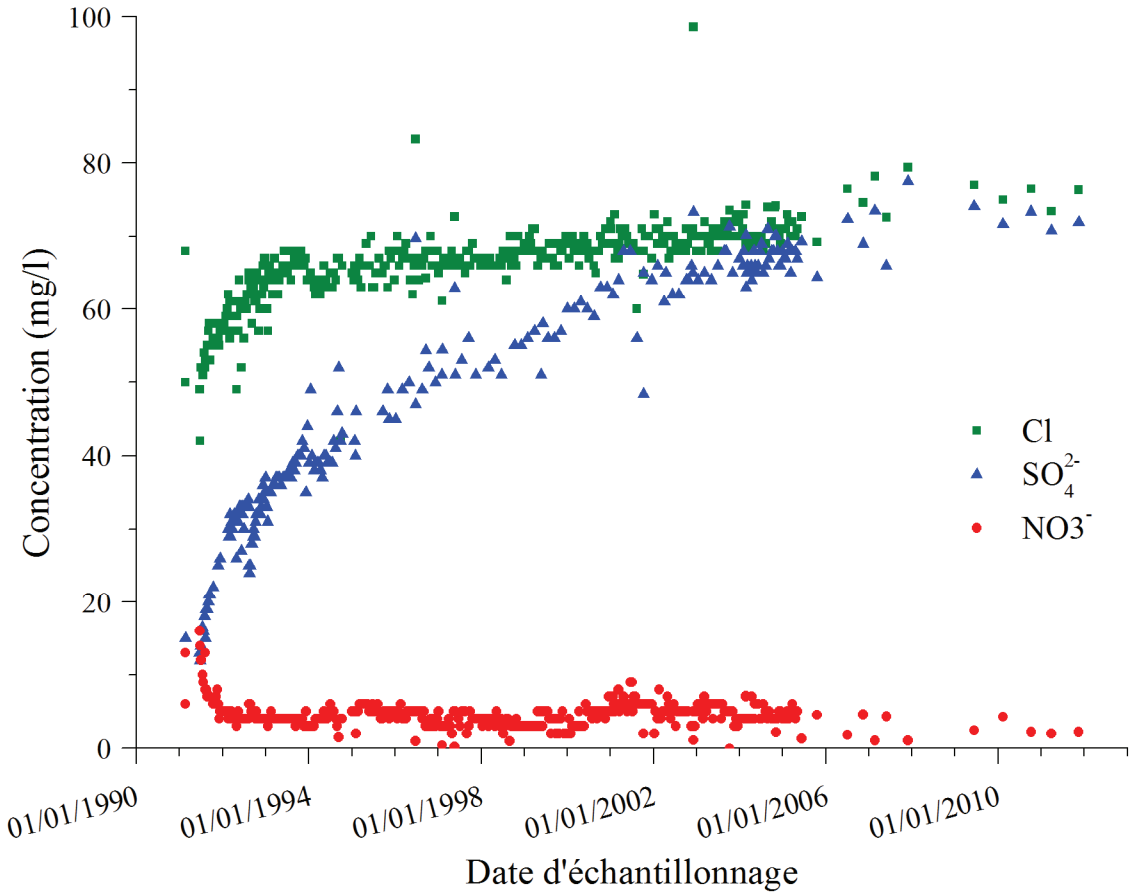


Figure 2-20: Evolution temporelle des concentrations en ions chlorures, sulfates et nitrates dans le puits de pompage, adapté de Ayraud (2005).

Basée sur la Figure 2-20, l'analyse des ions majeurs (Ca^{2+}, Mg^{2+}, Sr^{2+}, SO_4^{2-}, Na^{+}, Mn^{2+}, Cl^{-}, Br^{-} et NO_3^{-}) via la détermination des composantes principales puis l'intégration au modèle M3 (Multivariate Mixing and Mass balance) de Laaksoharju et al. (1999) a abouti à l'identification de 4 types d'eau présents sur le site dits pôles. L'origine de l'eau, notamment la distinction profond et surface, ainsi que les proportions de mélange selon ces 4 pôles (Figure 2-21) ont donc été déduits de ce travail (Laurencelle, Unpublished results). Ainsi, au puits de pompage principal « PE », 40 à 50% de l'eau pompée viendrait de circulations profondes ce qui n'est pas sans rappeler les températures anormalement élevées de certains forages.

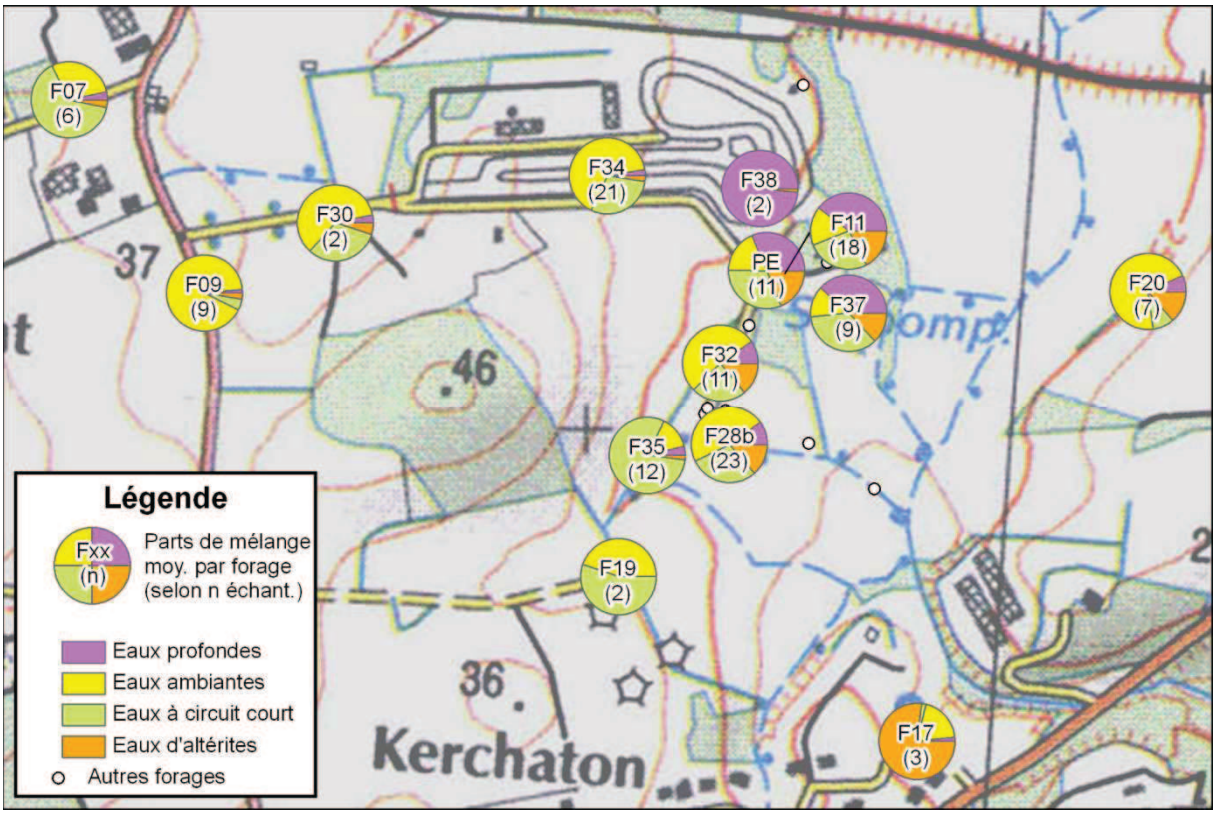


Figure 2-21: Part de mélange dans les différents piézomètres et puits de pompage du site de pompage, d'après Laurencelle (Unpublished results).

La datation des eaux à Plœmeur a débuté en 2003 : trois chlorofluorocarbones (CFC-11, CFC-12 et CFC-113) et l'hexafluorure de soufre (SF_6) ont été mesurés dans certains piézomètres. Globalement, les âges des différents traceurs tendent à croître vers le pompage ce qui est cohérent avec l'idée d'une augmentation du mélange avec des eaux anciennes due au pompage. Par contre, l'évolution temporelle des concentrations, et des âges apparents qu'on en déduit, n'est pas aussi claire d'autant que la méthode d'analyse a évolué au cours du temps. Au puits de pompage, quand l'âge en CFC-12 croît au cours du temps, celui en CFC-113 décroît et celui en CFC-11 semble stagner. Le SF_6 présente, quant à lui, des concentrations anormalement élevées, supérieures à la teneur atmosphérique.

Les différences entre traceurs peuvent être à la fois dues à des phénomènes de mélange qu'à de la réactivité. Vue la complexité de ces données, il n'est pas aisé de conclure sur les différences entre les âges apparents. L'intégration des données dans des modèles hydrogéologiques complexes doit donc permettre non seulement de caler les modèles mais de distinguer la part des processus physiques de celle des processus chimiques. L'utilisation de ces données étant un des objets de la thèse, leur étude est détaillée dans les articles des Chapitre 4 et Chapitre 5.

2.3.2.5. Rôle du pompage

La datation, l'organisation des parts de mélange (Figure 2-21), la radialité des isothermes (Figure 2-22) ou tout simplement les isopièzes concentriques (Figure 2-23) sur le site illustrent le rôle du pompage sur l'organisation des écoulements et la contribution de différents réservoirs.

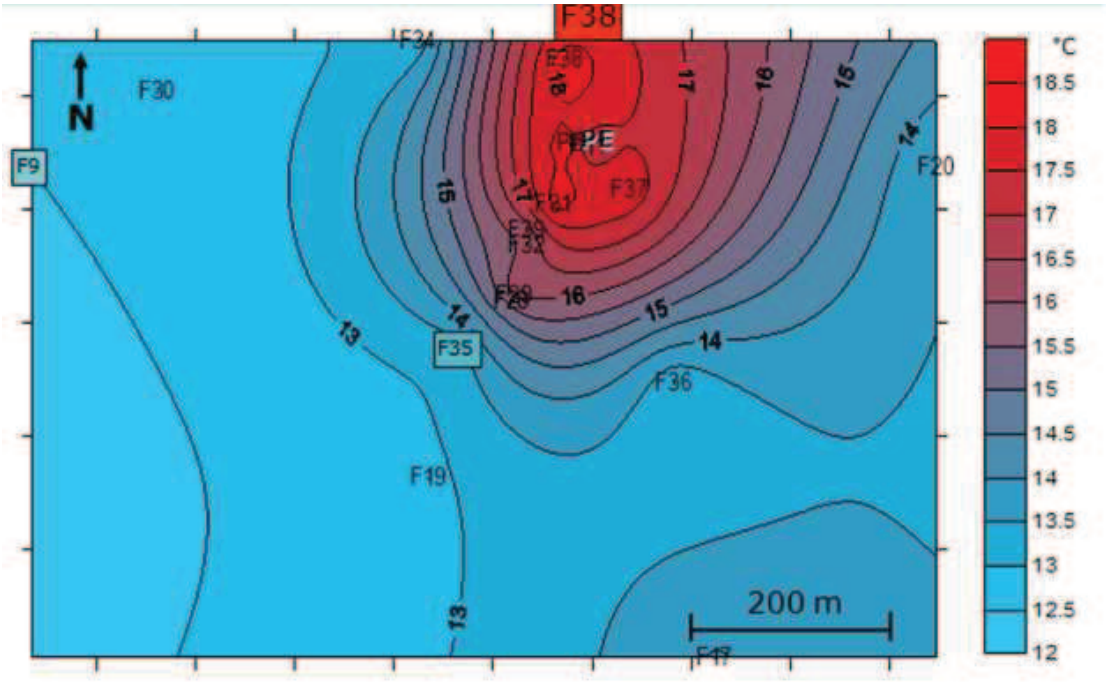


Figure 2-22: Isothermes (°C) sur le site de pompage, d'après Bour (2010). Quelques forages seulement sont représentés.

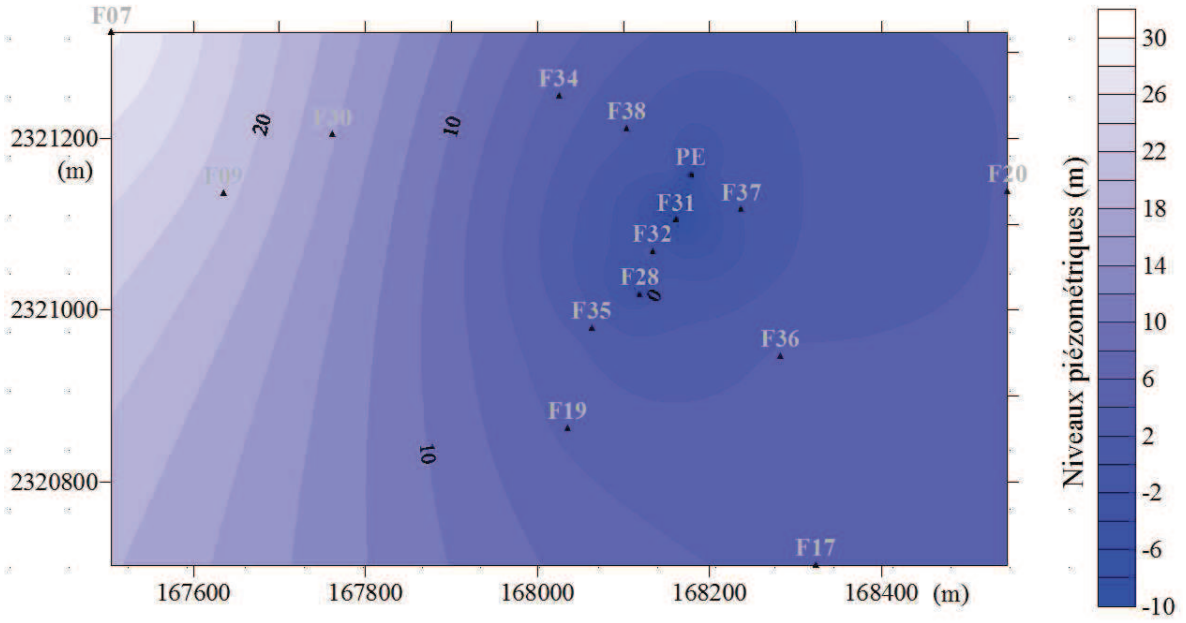


Figure 2-23: Isopièzes (m) en novembre 2006 sur le site de pompage. Quelques forages seulement sont représentés.

2.3.3. Conclusions sur le site

Malgré la quantité de données disponibles - observations géologiques (affleurements, log de lithologie), géophysique (gravimétrie, VLF, déformation), hydraulique (piézométrie, tests hydrauliques, débitmétrie en forage), chimie et datation – le fonctionnement hydrogéologique du site demeure relativement méconnu et des questions sont toujours d'actualité, parmi lesquelles :

- Quelle(s) structure(s) contrôle(nt) la ressource en eau à Plœmeur ?
- Quelles sont les différentes origines de l'eau et en quelles proportions?
    - Surface : quel est le bassin d'alimentation ? quels sont les temps de résidence de l'eau provenant de la surface?
    - Pôle profond : comment s'organisent les circulations profondes ? Quel est le type d'interaction avec ce pôle?
- Quelle est la part de mélange et de réactivité ?
- Quel est l'impact du pompage ?
    - Sur le mélange et la réactivité ?
    - Quelle évolution à prévoir sur le long terme ? Qu'en déduire concernant la protection de la ressource?

Une des limitations majeures sur le site de pompage provient de l'aspect extrêmement localisé des données – 1km^2 (Figure 2-23) pour un bassin d'alimentation d'au moins 6 km^2. Il y a un besoin évident de données à une échelle supérieure que celle du site de pompage autant que de leur intégration dans un modèle hydrogéologique, qui plus est en 3D étant donné le pompage. Nous verrons dans le Chapitre 4 l'apport des données d'âge dans ce contexte.

Chapitre 3 Recherche de structures porteuses d'une ressource en eau en contexte cristallin

3.1. Introduction

L'objectif de cette étude est d'identifier, dans les milieux cristallins, des structures porteuses d'une ressource en eau et qui constituent des alternatives aux structures classiquement considérées. En effet, l'étude de l'occurrence de la ressource en eau en contexte cristallin se concentre tout particulièrement soit sur la zone altérée soit sur les linéaments, révélateurs de structures fracturées sub-verticales généralement très transmissives. Pourtant, des études de site laissent penser que des structures à faible pente constituent elles aussi des ressources non négligeables.

Par des simulations numériques sur un modèle générique composé d'une fine structure transmissive, en pente et recouverte d'une couche moins perméable, nous analysons l'évolution de la productivité avec les quelques paramètres du système : la dimension latérale du système (locale ou régionale), le pendage et la transmissivité de la structure perméable dite fracturée, la perméabilité moindre de la structure dite matricielle.

L'article est organisé comme suit : après une introduction (section 1), nous présentons le modèle conceptuel hydrogéologique générique ainsi que le modèle numérique de résolution des équations de l'écoulement, d'abord dimensionnelles puis adimensionnalisées (section 2). Les résultats de la sensibilité de la productivité aux différents paramètres sont présentés dans la section suivante (section 3) : au préalable, une comparaison des systèmes locaux et régionaux permet de constater la variabilité de l'occurrence de la ressource en eau, notamment dans des systèmes locaux à faible pente ; ensuite, les facteurs contrôlant la ressource dans ces systèmes locaux à faible pente sont analysés ; cette analyse s'appuie sur une comparaison avec des modèles simples analytiques. La section 4 applique en premier lieu les résultats obtenus au site de Plœmeur (Bretagne) et discute en second lieu les implications en termes d'exploration et de protection de ce type de ressource nouvellement mis en lumière.

3.2. *Numerical modeling of the productivity of vertical to shallowly dipping fractured zones in crystalline rocks* (article publié)[3]

Paper published in Journal of hydrology (2013)

http://dx.doi.org/10.1016/j.jhydrol.2012.12.014

Sarah Leray[a], Jean-Raynald de Dreuzy[a, b], Olivier Bour[a] and Etienne Bresciani[a,#]

[a] Géosciences Rennes (UMR 6118 CNRS), Université de Rennes 1, Campus de Beaulieu, 35042 Rennes cedex, France

[b] IDAEA (CSIC), c/ Jordi Girona, 08034, Barcelona, Spain

[#] Now at: National Centre for Groundwater Research and Training, Flinders University, GPO Box 2100, ADELAIDE SA 5001

Key words: well yield, groundwater resources, hard-rock aquifers.

[3] Les numéros de figure et de section ainsi que leurs renvois sont propres à l'article. Seule la numérotation des pages est relative à ce manuscrit.

Journal of Hydrology xxx (2013) xxx–xxx

Contents lists available at SciVerse ScienceDirect

Journal of Hydrology

journal homepage: www.elsevier.com/locate/jhydrol

Numerical modeling of the productivity of vertical to shallowly dipping fractured zones in crystalline rocks

S. Leray [a,*], J.-R. de Dreuzy [a,b], O. Bour [a], E. Bresciani [a,1]

[a] Géosciences Rennes (UMR 6118 CNRS), Université de Rennes 1, Campus de Beaulieu, 35042 Rennes cedex, France
[b] IDAEA (CSIC), c/Jordi Girona, 08034 Barcelona, Spain

ARTICLE INFO

Article history:
Received 31 July 2012
Received in revised form 7 December 2012
Accepted 10 December 2012
Available online xxxx
This manuscript was handled by Corrado Corradini, Editor-in-Chief, with the assistance of Diana M. Allen, Associate Editor

Keywords:
Well yield
Groundwater resources
Hard-rock aquifers

SUMMARY

Groundwater resources in crystalline rock are typically associated with the weathered zone and regional sub-vertical faults that are well connected to the surface. However, some sub-horizontal and shallowly dipping fractured zones can also be highly-productive aquifers. In this paper, numerical simulations of a conceptual hydrogeological model show that the flow to such strongly transmissive fractured zones is controlled by their transmissivity or by their deepening structure. While leakage through the overlying rock units is generally the limiting factor, recharge always occurs at least close to the outcrop of the fractured zone where the overlying rock is thinner and guarantees the availability of some groundwater. At small dip angles, recharge extends spatially and the flow within the fractured zone may even become the limiting factor when the hydraulic conductivity of the overlying rock is not less than two orders of magnitude smaller than the fractured zone transmissivity. This is precisely the case of the Plœmeur aquifer (Brittany, France) located in a crystalline rock geologic setting, where groundwater in a shallowly dipping fractured zone is used as the source of water supply for a nearby city of 20,000 people. Simulation results show that the fractured zones may represent potential aquifers under a large variety of hydrogeological conditions. Aquifers in shallowly dipping structures differ strongly from those located in regional sub-vertical fault zones in terms of flow patterns, and thus supposedly in terms of management of the groundwater resource. They are more local than regional in scale, and consequently do not require regional fracture connectivity. The leakage through the overlying rock unit enhances water quality. Finally, we argue that the potential widespread occurrence of these alternative and possibly less accessible resources should promote the development of appropriate identification methods.

© 2012 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

Crystalline basement aquifers are commonly found in numerous places such as Africa, Australia, Canada, France, India, Scandinavia (Wright and Burgess, 1992). They are typically composed of a bedrock with variable densities of fractures and a partly weathered overburden. They exhibit primary porosity through the matrix as well as secondary porosity with fractures and weathered rocks. The strong variability of their hydraulic properties is a major issue for understanding and managing the potential groundwater resources. The extreme localization of flow in the most conductive and better connected fractures (Tsang and Neretnieks, 1998) results in high failure rates of productive boreholes and high depletion when pumping (Courtois et al., 2010). The strong variability of productivity is enhanced by the low storativity and the high dependence to recharge conditions. Still, in arid and semi-arid regions such as India and Africa, crystalline basement aquifers may be the only viable resource and may provide, as a deep resource, a water of better quality than that of surface systems (Singhal and Gupta, 2010; Wright and Burgess, 1992).

Identification of economically viable resources is thus a major concern in basement aquifers. Two types of structures have been identified so far as potentially bearing significant groundwater resources. The first one is the weathered zone, also called regolith (Dewandel et al., 2006; Lachassagne et al., 2011; Taylor and Howard, 2000; Wyns et al., 2004), for which productivity is typically quantified by upscaling the hydraulic conductivity and/or porosity of weathered rocks (Dewandel et al., 2012). Weathered zones are located directly below the surface and typically include saprolite above a fissured layer (Dewandel et al., 2006). Such weathered rocks may also be found at the periphery of vertical discontinuities. Weathering, however, is not a uniform process. It yields a superficial layer of variable depth and connectivity which, in the worst case for water resources, may be thin and disconnected. Moreover, depending on the climate and rock type, weathering processes are

* Corresponding author. Tel.: +33 223236699.
E-mail address: sarah.leray@univ-rennes1.fr (S. Leray).
[1] Present address: National Centre for Groundwater Research and Training, Flinders University, GPO Box 2100, Adelaide, SA 5001, Australia.

0022-1694/$ - see front matter © 2012 Elsevier B.V. All rights reserved.
http://dx.doi.org/10.1016/j.jhydrol.2012.12.014

Please cite this article in press as: Leray, S., et al. Numerical modeling of the productivity of vertical to shallowly dipping fractured zones in crystalline rocks. J. Hydrol. (2013), http://dx.doi.org/10.1016/j.jhydrol.2012.12.014

clay-producing and/or material-removing processes that either restrict or promote the existence of water resources (Singhal and Gupta, 2010). Thereby, even if weathered zones are heavily relied upon in some areas (Greenbaum, 1992; Negrel et al., 2011), they cannot be systematically considered as bearing a readily viable water resource (Taylor and Howard, 2000). Additionally, their proximity to the surface enhances their vulnerability to potential surface contaminations (Dewandel et al., 2010).

The second type of structures involves fractured zones or lineaments that mostly result from tectonics. In this case, the classical approach to groundwater resource exploration is the mapping of outcropping fractures (lineaments), which generally originate from sub-vertical discontinuities (Mayer and Sharp, 1998; Singhal and Gupta, 2010). In addition to their easy detection and accessibility as outcropping features, the good correlation of well yields with lineament-detected discontinuities justifies their common exploration (Fernandes and Rudolph, 2001; Kouamé et al., 2010; Lattman and Parizek, 1964; Naik et al., 2001; Narayana et al., 1996; Siddiqui and Parizek, 1971). Though often more productive than the weathered zone, tectonics features remain a variable resource as fractures are not systematically open and connected (Kuusela-Lahtinen et al., 2003; Larsson, 1972; Neves and Morales, 2007; Walker et al., 2001). For this reason, the relation between lineaments and subsurface permeability and/or well yields remains largely debated (Edet et al., 1998; Gleeson and Novakowski, 2009; Gustafsson, 1994; Mabee, 1999; Mabee et al., 2002, 1994; Magowe and Carr, 1999; Moore et al., 2002; Sander, 2007; Sander et al., 1997; Solomon and Quiel, 2006; Waters et al., 1990). Besides their low storativity, their sub-verticality appears as a limiting factor resulting in small catchment areas since they cannot pick up storage from the neighboring structures (Sander, 2007). Another limiting factor may come from their scale that should somehow determine their productivity.

These two types of structures are inherently different: weathered rocks are mainly horizontal while lineaments are mostly sub-vertical structures (Sander, 2007). They both show up on the surface and are relatively easy to detect, which makes them preferentially explored structures. Some field studies, however, suggest that other types of structures, such as shallowly dipping fractured zones, may be highly productive (Davison, 1985; Le Borgne et al., 2006; Liou et al., 2010; Ruelleu et al., 2010; Seaton and Burbey, 2005; White and Burbey, 2007). Shallowly dipping structures are certainly more difficult to identify (Ruelleu et al., 2010) but might host interesting additional or alternative water resources.

In this study, we aim at evaluating the potential groundwater resources in such shallowly dipping fractured zones. Using a conceptual hydrogeological model, we explore the influence of shallowly-to-steeply dipping fractured zones on aquifer flow patterns and potential well yield. With the flat weathered zone and the sub-vertical fractures as two extreme cases, we investigate the full range of dipping structures from sub-horizontal to vertical, within the same hydrogeological framework: flow remains highly channeled within a highly transmissive and well-connected fractured zone. The medium overlying the fractured zone is much less pervious but not impervious, since leakage may occur through it. Its hydraulic conductivity may typically come from diffuse disconnected fractures and partially consolidated or weathered rocks.

The simplicity of the model has been guided by the willingness to generalize results. To this end, we choose a simple and yet general model consisting of a highly permeable dipping plane within a less permeable surrounding rock. Despite its simplicity, the model cannot be handled analytically and flows have to be simulated numerically. Details about the specification of the configuration and the numerical methods are given in Section 2. Results of productivity as a function of the fractured zone structure and hydraulic parameters are given in Section 3 and compared with simpler two-dimensional and one-dimensional analytical solutions that bring additional insights. Section 4 gives an example of a shallowly dipping fractured zone of high productivity in Brittany (France) falling into the range of the identified alternative water resources in basement contexts. We finally discuss the implications in terms of exploration and protection of water resources.

2. Hydrogeological and flow models

2.1. Hydrogeological settings

The conceptual hydrogeological model (Fig. 1) is made up of a dipping fractured zone overlain by a lower permeable structure. Both structures rest upon an almost impervious substratum of constant hydraulic conductivity K_S. The issues of the fractured zone connectivity and boundaries are explored through two configurations differing from the lateral dimension of the model. In the first configuration, designated regional (Fig. 1), the dimension parallel to the fractured zone outcrop (lateral) has been made large enough so that the boundary conditions imposed on the lateral limits do not affect the resulting flow patterns. It is representative of settings for which the fractured zone connectivity and boundary conditions are not limiting factors. The second configuration, designated local (Fig. 1, section of the regional model delimited by the yellow dashed lines), displays a lateral extent limited by the discontinuity of the fractured zone or by no-flow boundaries such as hydraulic barriers or topographically-induced groundwatershed divides.

As the fractured zone is much more conductive than the overlying rock, it will be considered as an aquifer. Due to its high conductivity and its supposedly relative low thickness, flows will be mostly parallel to the fractured zone (Fig. 2) and the key hydraulic parameter is its transmissivity T_F rather than its hydraulic conductivity and its thickness separately. The overlying structure is much less conductive and will be handled as an aquitard, where flows are vertical close to the surface and orthogonal to the deeper fractured zone (Fig. 2). Its key hydraulic characteristic is its hydraulic conductivity K_M, the index "M" standing for Matrix taken as a generic term opposed to the "F" of the fractured zone. The third and main parameter of the model is the dip of the fractured zone defined as the angle α in the vertical plane between the surface and the fractured zone. When α is 0°, the fractured zone is horizontal and when α is 90°, the fractured zone is vertical. This simple model extends the two classical flat weathered zone and vertical fracture (lineament) models to a full range of dipping structures.

As we aim at analyzing the influence of the fractured structure in highly differing configurations, we let α vary between 5° and 90°, from sub-horizontal to vertical fractures, and the hydraulic properties T_F and K_M over several orders of magnitude (de Marsily, 1986). The fractured zone transmissivity T_F is selected larger than 2×10^{-4} m^2/s. For typical fractured zone thicknesses up to a few meters, the equivalent hydraulic conductivity remains in most cases much larger than the hydraulic conductivity K_M of the overlying rock limited to 10^{-6} m/s. The hydraulic conductivity of the substratum K_S is set at the very low value of 10^{-11} m/s for which it basically acts as an impervious boundary condition. The lateral dimension of the regional model is set so that boundary conditions have no effect even in the most unfavorable case, which occurs for the highest value of T_F ($T_F = 2 \times 10^{-1}$ m^2/s) as the influence area of the pumping well increases with it. It is practically equal to 1.4×10^5 m while smaller T_F values require much smaller systems. For example, if T_F were 10 times smaller ($T_F = 2 \times 10^{-2}$ m^2/s), the typical effective system size would rather be of the order of 4×10^4 m. The local model is given a lateral extent of 3.5×10^3 m, typical of small watersheds. The two other system dimensions are chosen large enough to have a minimal influence on the results. The depth of the model is set to 10^3 m and the

Please cite this article in press as: Leray, S., et al. Numerical modeling of the productivity of vertical to shallowly dipping fractured zones in crystalline rocks. J. Hydrol. (2013), http://dx.doi.org/10.1016/j.jhydrol.2012.12.014

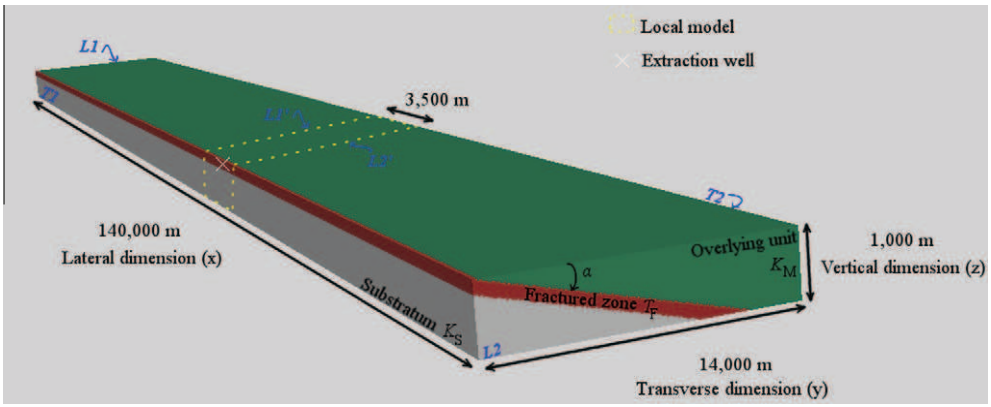


Fig. 1. Regional and local structural models with the fractured zone (red) overlain by the less pervious rock (green). The regional models have a lateral length of 140,000 m while the local models have a lateral length of 3500 m. Extraction well is set at the center of the outcropping part of the fractured zone. *L1* and *L2* are the faces orthogonal to the lateral axis *x* in regional models, *L1′* and *L2′* are the faces orthogonal to the lateral axis *x* in local models and T1 and T2 the faces orthogonal to the transverse axis *y*. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

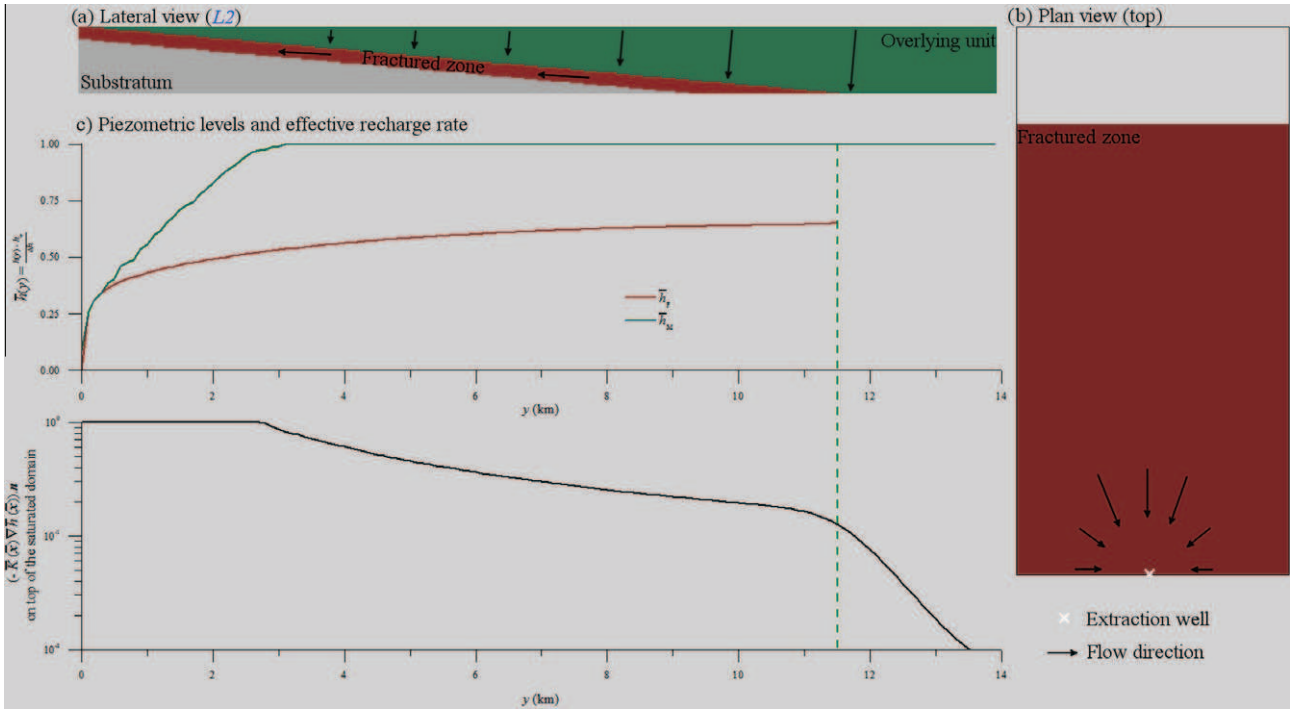


Fig. 2. Sketch of the flow lines (black arrows) in a local model with the fractured zone (red) of dimensionless transmissivity $\overline{T}_F$ equal to 10^5 dipping at α equal to 5° overlain by the less pervious rock of dimensionless hydraulic conductivity $\overline{K}_M$ equal to 1.6×10^1 (green): (a) lateral view at *L2* (Fig. 1), (b) Plan view within the fractured zone; (c) Dimensionless piezometric levels in the fractured zone (red line) and in the overlying rock (green line) and the dimensionless effective recharge rate at mid-distance between the lateral limits. The green dashed line represents the intersection of the fractured zone with the bottom of the model. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

dimension perpendicular to the fractured zone outcrop (transverse dimension) is set to 1.4×10^4 m. Beyond these limits, head gradients are negligible and flows are residual.

2.2. Driving terms and outputs

As we focus on economically viable resources and well yields, the main feature of the forcing terms (boundary conditions and sources) is a well located at the center of the outcropping fractured zone (Fig. 1). The land surface of the model is selected flat, at an elevation h_s, as we are interested in the influence of the geological structures. The piezometric level is imposed at the well at the value of h_w. This is consistent with a groundwater production constrained by extraction costs and dewatering effects. The key parameter beyond h_w and h_s is their difference Δh:

$$\Delta h = h_s - h_w \quad (1)$$

Δh is considered as one of the driving terms of flow, with the other one being the potential recharge rate R entering the system on the surface. The main modeling output is the flow in the well Q_W deduced from the simulation results. It defines the well yield and constitutes the key variable for groundwater resources estimation.

2.3. Flow model

The 3D steady-state diffusivity equation for hydraulic head $h(x)$ is solved with free surface boundary conditions. It is described by the following set of equations:

Please cite this article in press as: Leray, S., et al. Numerical modeling of the productivity of vertical to shallowly dipping fractured zones in crystalline rocks. J. Hydrol. (2013), http://dx.doi.org/10.1016/j.jhydrol.2012.12.014

$$\nabla \cdot (K(x)\nabla h(x)) = 0 \tag{2}$$

$$\left.\begin{array}{ll} K(x)\nabla h(x)\cdot \boldsymbol{n} = -Rn_3 \;\&\; h(x) = x_3 & \text{where } h < h_s \\ h = h_s & \text{anywhere else} \end{array}\right\} \text{on top of the saturated domain} \tag{3}$$

$$\nabla h(x)\cdot \boldsymbol{n} = 0 \qquad \text{on vertical and bottom limits} \tag{4}$$

$$h(x_w) = h_w \qquad \text{at the extraction well} \tag{5}$$

where $K(x)$ is the hydraulic conductivity (assumed isotropic), R is the potential recharge rate, $\boldsymbol{n}$ is the outgoing normal to the saturated domain and n_3 its vertical component, x_3 is the vertical component of the location $\boldsymbol{x}$, h_s is the constant ground surface elevation and h_w the piezometric level at the extraction well located at x_w.

Eq. (2) is solved under unconfined conditions that are imposed through the two conditions of Eq. (3) because of large variations in the saturated thickness and highly variable recharge flow on top of the saturated domain (Fig. 2c). Indeed, when the free surface level is below the ground surface level h_s, flow normal to the free surface boundary is equal to the potential recharge rate R and the head $h(x)$ is equal to the elevation at x that is x_3 (Fig. 2c). Anywhere else, the free surface level is set at the ground surface level. In the latter case, the effective recharge rate is free to change from its positive potential value R to 0. A consistent model of the free surface position is essential in predicting consistent overall recharge rates and aquifer productivity (Bredehoeft, 2002). No-flow conditions are applied to the four vertical limits and at the bottom of the domain (Eq. (4)). At the bottom of the domain as well as on the lateral faces (*L1* and *L2* in Fig. 1) and on the transverse faces (*T1* in Fig. 1) below the outcropping part of the fractured zone, the boundary conditions have no effect since the substratum already acts as an impervious boundary. As mentioned previously, the other boundary parallel to the outcropping fractured zone (*T2* in Fig. 1) is selected far enough to be of negligible influence. The only potentially important boundary conditions are those perpendicular to the fractured zone in the local configurations (*L1′* and *L2′* in Fig. 1). Note that we apply a no-flow boundary at the bottom of the model. Though deep flows are of interest especially for water quality issues, they are out of scope of this paper addressing the groundwater resources from a quantitative point of view. Eq. (2) is solved with the imposed constant head h_w at the extraction well localized in x_w which acts as the sole discharge of the system (Eq. (5)).

The system is discretized into 999,600 cells (Table 2) distributed as follows: 51 layers of 20 m along the vertical direction, 140 slices of 100 m along the transverse direction and 140 slices of 1,000 m and 50 m along the lateral dimension for the regional and local configurations, respectively. It should be noted that the fractured zone is represented by a 200-meter-thick zone whose hydraulic conductivity is set by the ratio of its transmissivity to its thickness. The fractured zone is selected thick enough to remain well-connected through the discretization on the grid and so that the latter has a minor effect in its equivalent transmissivity.

The system of equations is solved using a finite volume approach with a non-linear solver for determining the location of the free surface (Bresciani et al., 2011). The solved equations result in full head and flow field from which we compute the flow at the well Q_W.

2.4. Dimensionless expressions

We perform a simple dimensional analysis of the problem to reach generic expressions. We select reference quantities that only depend on the forcing terms R and Δh. The reference length and time are set to Δh and $\frac{\Delta h}{R}$, respectively. Dimensionless quantities will thus be expressed in terms of unit forcing quantities. The dimensionless dependant variable $\bar{x}$ is given by:

$$\bar{x} = \frac{x}{\Delta h} \tag{6}$$

The dimensionless head $\bar{h}(\bar{x})$is related to the head $h(x)$ by Eq. (7):

$$\bar{h}(\bar{x}) = \frac{h(x) - h_w}{h_s - h_w} = \frac{h(x) - h_w}{\Delta h} \tag{7}$$

$\bar{h}(\bar{x})$ varies from 0 when $h(x)$ is equal to the minimum piezometric level h_w to 1 when $h(x)$ is equal to the maximum piezometric level h_s. The 3D steady-state diffusivity equation for normalized hydraulic head $\bar{h}(\bar{x})$ is described by Eqs. (8)–(11) deriving from Eqs. (2)–(5):

$$\nabla \cdot (\overline{K}(\bar{x})\nabla \bar{h}(\bar{x})) = 0 \tag{8}$$

$$\left.\begin{array}{ll} \overline{K}(\bar{x})\nabla \bar{h}(\bar{x})\cdot \boldsymbol{n} = -n_3 \;\&\; h(\bar{x}) = \bar{x}_3 - \frac{h_w}{\Delta h} & \text{where } \bar{h} < 1 \\ \bar{h} = 1 & \text{elsewhere} \end{array}\right\} \text{on top of the saturated domain} \tag{9}$$

$$\nabla \bar{h}(\bar{x})\cdot \boldsymbol{n} = 0 \qquad \text{on vertical limits} \tag{10}$$

$$\bar{h}(\bar{x}_w) = 0 \qquad \text{at the extraction well} \tag{11}$$

where $\overline{K}(\bar{x})$ is the hydraulic conductivity normalized by the recharge rate R, $\boldsymbol{n}$ is the outgoing normal to the saturated domain and n_3 its vertical component, $\bar{x}_3$ is the dimensionless vertical component of the dimensionless location $\bar{x}$, and $\bar{x}_w$ is the dimensionless location of the extraction well.

The hydraulic conductivity K_M of the overlying unit is straightforwardly normalized by the recharge rate R leading to the dimensionless parameter $\overline{K}_M$ that expresses the characteristic leakage capacity:

$$\overline{K}_M = \frac{K_M}{R} \tag{12}$$

$\overline{K}_M$ ranges over two orders of magnitude, between 1.6 and 1.6×10^2. It corresponds to a range of K_M of [10^{-8} m/s; 10^{-6} m/s] and to a recharge rate R of 200 mm/year. The transmissivity of the dipping fractured zone T_F is normalized by the product of the recharge rate R with Δh leading to the normalized fractured zone transmissivity $\overline{T}_F$:

$$\overline{T}_F = \frac{T_F}{R\Delta h} \tag{13}$$

$\overline{T}_F$ varies over three orders of magnitude, between 10^3 and 10^6, corresponding to a range of T_F of [2×10^{-4} m^2/s; 2×10^{-1} m^2/s] and to the same recharge rate R of 200 mm/year and a depletion Δh of 30 m.

In addition to its lateral extent, the system is thus characterized by three dimensionless parameters: the dimensionless fractured zone transmissivity $\overline{T}_F$, the dimensionless hydraulic conductivity of the overlying unit $\overline{K}_M$ and the dip angle α. Table 1 shows a summary of the range of variation as well as the values of their dimensional counterpart in the case of a recharge rate R of 200 mm/year and a maximum depletion Δh of 30 m. The well yield used as the main output quantity is expressed through the dimensionless flow rate $\overline{Q}_W$:

$$\overline{Q}_W = \frac{Q_W}{R\Delta h^2} \tag{14}$$

3. Results

In this section, we present the results of a systematic study of the well yields $\overline{Q}_W$ as a function of the fractured zone structure (α), of its transmissivity ($\overline{T}_F$) and of the hydraulic conductivity of the overlying structure ($\overline{K}_M$). We particularly focus on the

Please cite this article in press as: Leray, S., et al. Numerical modeling of the productivity of vertical to shallowly dipping fractured zones in crystalline rocks. J. Hydrol. (2013), http://dx.doi.org/10.1016/j.jhydrol.2012.12.014

Table 1
Synthesis of hydraulic and structural parameters of the conceptual models and associated range of values. An example of hydraulic parameter values is given for a recharge rate R of 200 mm/year and an extraction constraint Δh of 30 m.

	Range	Example (R = 200 mm/year, Δh = 30 m)
Normalized substratum hydraulic conductivity $\overline{K}_S$	1.6×10^{-3}	$K_S = 10^{-11}$ m/s
Normalized overlying rock hydraulic conductivity $\overline{K}_M$	1.6 – 1.6×10^{2}	$K_M = 10^{-8} - 10^{-6}$ m/s
Normalized aquifer transmissivity $\overline{T}_F$	$10^{3} - 10^{6}$	$T_F = 2 \times 10^{-4} - 2 \times 10^{-1}$ m^2/s
Dipping angle α	5–90°	

Table 2
Discretization of the local and regional conceptual models. The total number of meshes is 999,600.

	Length of the domain (m)	Number of cells	Cell size (m)
Vertical direction (z)	1020	51	20
Transverse direction (y)	14,000	140	100
Lateral dimension (x)			
Local	3500	140	50
Regional	140,000		100

potentially viable groundwater resources and on the corresponding flow organizations.

3.1. Comparison of regional and local configurations

Fig. 3a and b shows dimensionless well yield maps as a function of $\overline{T}_F$ and α for regional (Fig. 3a) and local (Fig. 3b) configurations, at an overlying rock conductivity $\overline{Q}_W$ of 1.6×10^1. The map has been obtained using a triangulation method from the results of 91 simulations performed on the dense grid of nodes displayed in Fig. 3. The purpose of these figures is to present a direct estimate of the well yield as a function of a couple of dimensionless parameters.

As expected, the well yield $\overline{Q}_W$ monotonically increases both with the transmissivity of the fractured zone $\overline{T}_F$ (from left to right in Fig. 3) and from vertical to horizontal fractured zone (decrease in α from top to bottom in Fig. 3). In both cases, the presence of the fractured zone results in a higher convergence of the flow lines and in an extended well capture zone as shown by Figs. 4 and 5. These figures show the map of the dimensionless free surface height for the three configurations 4a, 4b and 4c in the regional case also located in Fig. 3a and for the three configurations 5a, 5b and 5c in the local case also located in Fig. 3b. The red line is the geographical limit at which the free surface just outcrops ($\bar{h}(\bar{x}) = 1$). It can be used as a first estimate of the capture zone of the well. The capture zone slightly spreads behind the red line on a small fringe where the recharge is less than its maximal value but still entering the system. In both the regional and local flow cases, the well yield increases from 5.75×10^3 (4a) to 7.10×10^4 (4b), 6.13×10^4 (4c) to 7.10×10^4 (4b), 5.44×10^3 (5a) to 3.69×10^4 (5b) and 1.35×10^4 (5c) to 3.69×10^4 (5b) are logically reflected by an extension of the capture zone of the well.

While both the regional and local flow configurations display qualitatively monotonic variations, the well yield can be strongly modulated by the model parameters (α, $\overline{T}_F$, lateral extension). Indeed, the iso-values of well yields represented in Fig. 3 take all possible orientations from vertical to horizontal lines. Nearly vertical iso-lines of well yields occur at small dimensionless transmissivity

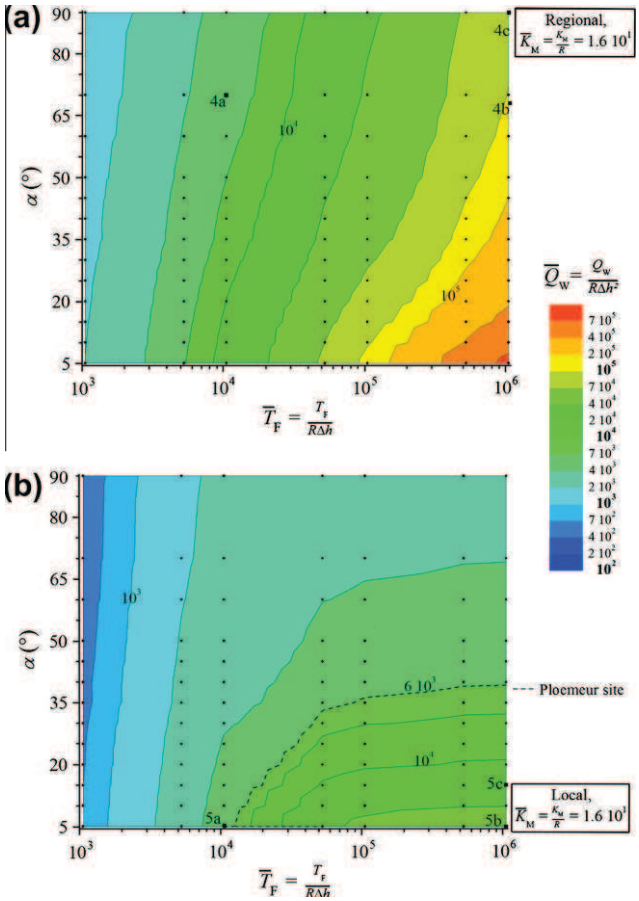


Fig. 3. Dimensionless well yield $\overline{Q}_W$ as defined by equation 14 for a dimensionless overlying rock hydraulic conductivity $\overline{K}_M$ of 1.6×10^1 in: (a) the regional system and (b) the local system. The black dashed line stands for the well yield of the Plœmeur site (Brittany, France).

values ($\overline{T}_F$ between 10^3 and 5×10^3) in both the regional and local contexts and indicate control of $\overline{Q}_W$ by the transmissivity $\overline{T}_F$ only and a relative insensitivity to the dip of the structure α. Under these conditions, the well yield is low and the capture zone of the well is limited to the outcropping part of the fractured zone. This explains why the system is almost insensitive to α. We also checked its quasi-insensitivity to $\overline{K}_M$. As the transmissivity $\overline{T}_F$ of the dipping structure increases ($\overline{T}_F$ larger than 5×10^4), local systems are affected by the close no-flow boundaries while regional systems are not. Horizontal iso-lines of well yields occurring in the local flow configuration at large dimensionless transmissivity indicate a strong control by the dip of the fractured zone and a relatively low sensitivity to its transmissivity. This shows a control of the well yield by the leakage through the overlying rock that becomes the limiting factor.

We underline that the yields ranging between 4×10^3 and 2×10^4 in some local configurations ($\overline{T}_F$ larger than 5×10^4 and α smaller than 45°) are comparable to the yields of regional sub-vertical fractured zones (α larger than 65°) of only slightly smaller transmissivity. Local shallowly dipping fractured zones can thus display similar well yields as the more classical regional sub-vertical fractured zones.

Even though the above mentioned well yields are similar, the underlying flow patterns are radically different. The capture zone of the well, in the regional configuration, is stretched laterally and narrow transversally (Fig. 4b and c). Conversely, in the local configuration, the close no-flow boundaries as well as the shallowly dipping fractured zone develop the flow transversally to the outcropping line of the fractured zone (Fig. 5a and b). Flows

Please cite this article in press as: Leray, S., et al. Numerical modeling of the productivity of vertical to shallowly dipping fractured zones in crystalline rocks. J. Hydrol. (2013), http://dx.doi.org/10.1016/j.jhydrol.2012.12.014

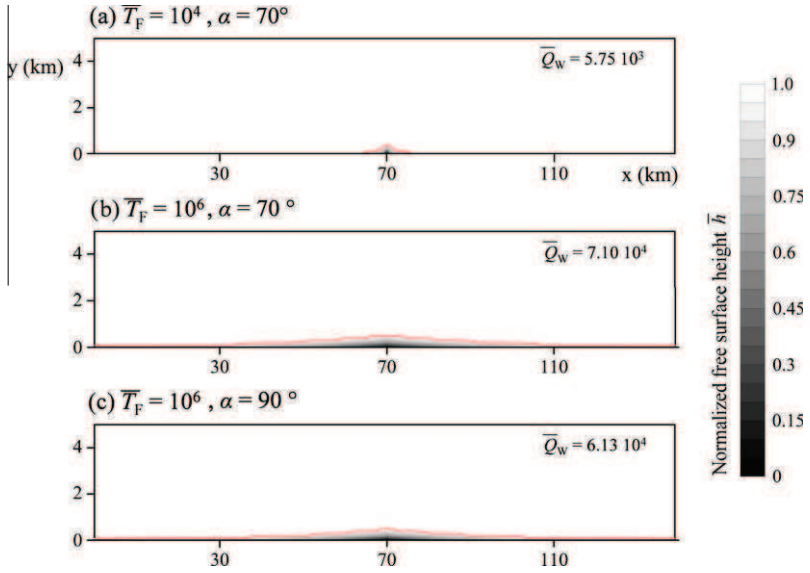


Fig. 4. Dimensionless free surface height $\bar{h}(\bar{x})$ for 3 regional systems taken at $\overline{K}_M$ of 1.6×10^1 and identified in Fig. 3a. The red line identifies the limit at which the free surface height reaches the surface ($\bar{h}(\bar{x})$ equal to 1).

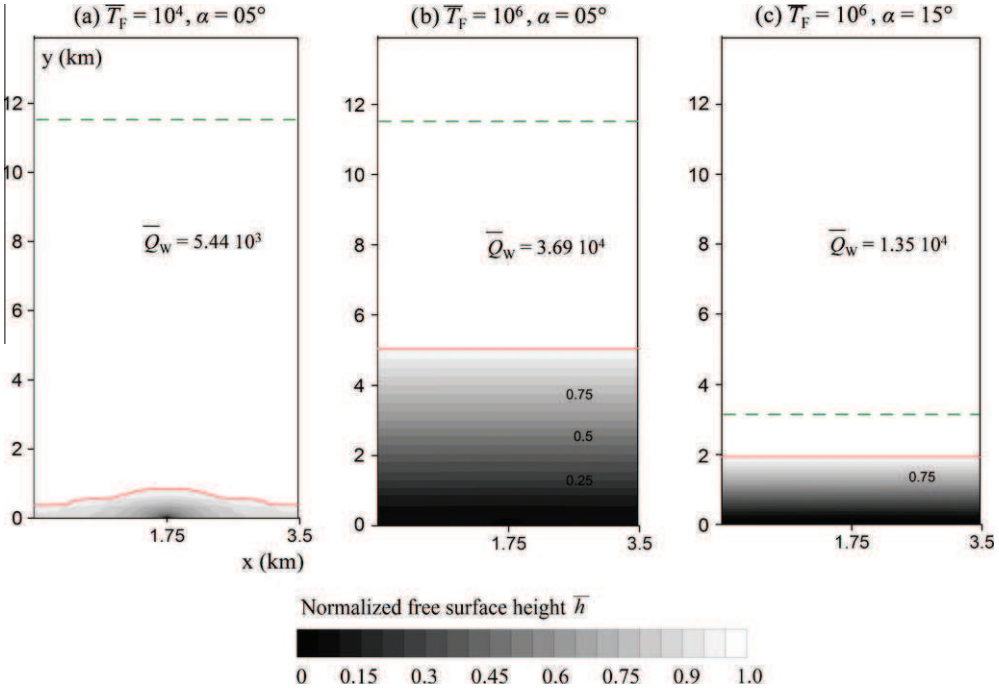


Fig. 5. Dimensionless free surface height $\bar{h}(\bar{x})$ for 3 local systems taken at $\overline{K}_M$ of 1.6×10^1 and identified in Fig. 3b. The red line identifies the limit at which the free surface height reaches the surface ($\bar{h}(\bar{x})$ equal to 1). The green dashed line identifies the location of the intersection of the fractured zone with the bottom of the domain. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

are sub-vertical between the surface and the well in the regional configurations while they are initially sub-vertical through the overlying rock and then along the shallowly dipping fractured zone in the local configuration.

We will investigate in the discussion the consequences of this result both in terms of exploration and management of resources. In the following subsection, we focus on the local shallowly dipping fractured zones and analyze more closely the controls of the well yield by the fractured zone settings and by the overlying rock unit.

3.2. Controlling factors of well yields in local shallowly dipping fractured zones

The iso-lines of well yields in the local configurations (Fig. 3b) are mainly horizontal or vertical, showing, as explained above, that they are controlled by the transmissivity $\overline{T}_F$ (vertical iso-lines) or by the dip angle α (horizontal iso-lines). In the latter case, a complementary analysis shows that the hydraulic conductivity $\overline{K}_M$ of the overlying rock is also a key controlling parameter (Fig. 6). The free surface heights in Fig. 5b and c shows that the flow

Please cite this article in press as: Leray, S., et al. Numerical modeling of the productivity of vertical to shallowly dipping fractured zones in crystalline rocks. J. Hydrol. (2013), http://dx.doi.org/10.1016/j.jhydrol.2012.12.014

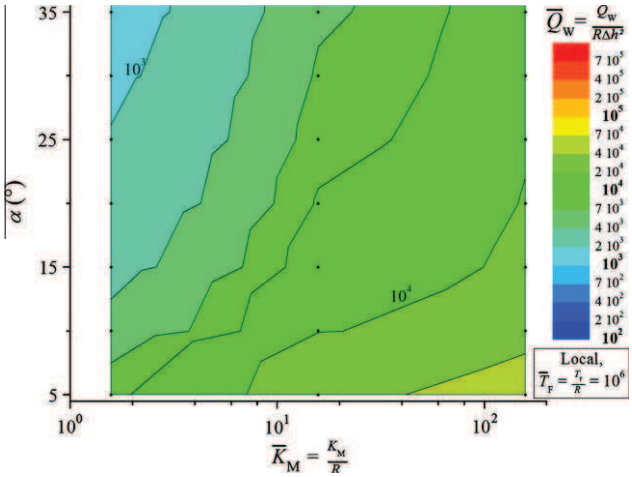


Fig. 6. Effect of $\overline{K}_M$ and α on dimensionless well yield $\overline{Q}_W$ at $\overline{T}_F$ of 10^6 for the local systems.

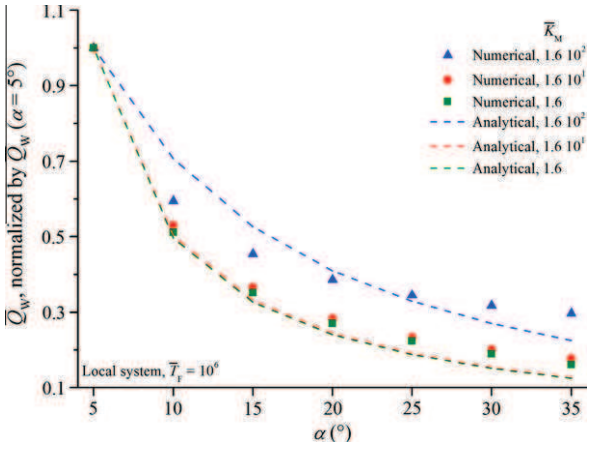


Fig. 8. Comparison of the dimensionless well yield $\overline{Q}_W$ obtained from an analytical model (Appendix A) of leakage through an overlying unit associated to drainage in a transmissive dipping unit (dashed lines) with the dimensionless well yield obtained from numerical solutions (dots) in the local system.

extension is not only restricted laterally by the boundary conditions but is also greatly developed transversally, almost uniformly. In this case, the head gradient is much larger in the overlying rock unit than in the fractured zone. This is well marked in Fig. 5b and c where the 2D maps are apparently invariant in the lateral dimension. We thus developed an analytical model in a 2D crosscut made up of a shallowly dipping fracture and an overlying rock unit identical to those of the 3D model (Fig. 7). Only the resulting well yield is scaled by the lateral dimension of the local domain x_A as if pumping occurred on the full outcropping zone rather than on a single point. The analytical solution derived in Appendix A gives the following expression of the normalized well yield:

$$\overline{Q}_W = \frac{x_A}{\Delta h}\frac{\overline{T}_F}{\overline{K}_M}\frac{\tan\alpha}{\cos\alpha}\left(-1+\sqrt{1+2\frac{\overline{K}_M^2\cos\alpha}{\overline{T}_F\tan^2\alpha}}\right) \quad (15)$$

If the well yields remain different between this 2D approximation and the full 3D simulations, they display comparable sensitivities to α (Fig. 8) as well as to parameters $\overline{T}_F$ and $\overline{K}_M$. In cases where the ratio $2\frac{\overline{K}_M^2\cos\alpha}{\overline{T}_F\tan^2\alpha}$, arbitrarily noted ρ, is much smaller than 1, i.e. when the dimensionless hydraulic conductivity $\overline{K}_M$ becomes much smaller than $\overline{T}_F$, $\sqrt{1+\rho}$ can be approximated by the first-order Taylor series $1+\frac{\rho}{2}$. Under this assumption, $\overline{Q}_W$ only depends on α and $\overline{K}_M$:

$$\overline{Q}_W \approx \frac{x_A}{\Delta h}\frac{\overline{K}_M}{\tan\alpha} \quad (16)$$

This approximation remains accurate at 99% as long as ρ is smaller than or equal to 0.3. This 2D analytical solution holds as far as flow is constrained by the lateral boundary conditions to develop transversally above the fractured zone, i.e. when $\overline{T}_F$ is larger than 5×10^4 and when α is larger than 5°, irrespective of the $\overline{K}_M$ values.

As regards the much lower $\overline{T}_F$ values (smaller than 1.7×10^3) for which the iso-lines of well yields are almost vertical (Fig. 3b), the flow is restricted close to the outcropping part of the fractured zone as noticed in Section 3.1. In that case, we approached the flow system by a 1D vertical transmissive zone of size l (equal to the

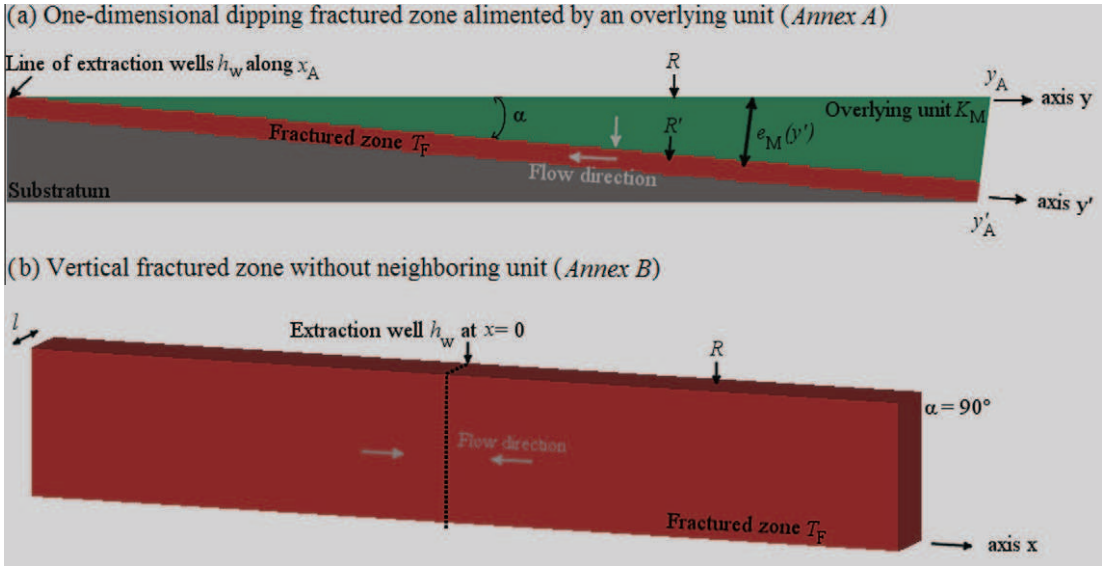


Fig. 7. Conceptual models for analytical solutions of dimensionless well yield $\overline{Q}_W$. (a) One-dimensional dipping aquifer augmented by a leaking overlying unit (Appendix A) and (b) vertical aquifer without leaking neighboring unit (Appendix B). Flow directions are indicated by grey arrows.

Please cite this article in press as: Leray, S., et al. Numerical modeling of the productivity of vertical to shallowly dipping fractured zones in crystalline rocks. J. Hydrol. (2013), http://dx.doi.org/10.1016/j.jhydrol.2012.12.014

previous width of the fractured zone) and of constant hydraulic conductivity $\overline{T}_F/l$ (Fig. 7b). The capture zone of the well – extending laterally along the fractured zone up to a characteristic distance x_A – and the dimensionless well yield $\overline{Q}_W$ are derived in Appendix B:

$$x_A = \Delta h\sqrt{8\overline{T}_F} \quad (17)$$

$$\overline{Q}_W = \frac{l}{\Delta h}\sqrt{8\overline{T}_F} \quad (18)$$

The dimensionless transmissivity $\overline{T}_F$ of 10^3 results in a well yield $\overline{Q}_W$ of 5.9×10^2 very close to the well yield of 7×10^2 obtained with the full 3D numerical simulations for the same transmissivity value (Fig. 3b).This 1D analytical model holds as far as $\overline{T}_F$ is smaller than 1.7×10^3, i.e. when the effective lateral extension x_A remains smaller than the local system size of 3500 m.

The 1D and 2D analytical solutions successively display the same properties as the 3D simulation results, i.e. the iso-lines of the well yields essentially depend either on the fractured zone transmissivity $\overline{T}_F$ for low values of $\overline{T}_F$ or on the overlying rock hydraulic conductivity $\overline{K}_M$ and on the fractured zone dip angle α for higher $\overline{T}_F$ values. For intermediate values ($\overline{T}_F$ between 1.7×10^3 and 5×10^4) and at $\overline{K}_M = 1.6 \times 10^1$, the system progressively switches from one control to the other, i.e. from the 1D to the 2D analytical solution, as observed in Fig. 3b. The transition between the regime controlled by the fractured zone transmissivity and the regime controlled by the leakage through the overlying rocks is a function of the ratio of the fractured zone transmissivity $\overline{T}_F$ to the overlying hydraulic conductivity $\overline{K}_M$. It occurs roughly when $\overline{T}_F/\overline{K}_M$ is between 100 and 1000.

4. Discussion

First we illustrate the previous results using the crystalline aquifer of Plœmeur (Brittany, France) where none of the traditional aquifer structures (weathered zone and vertical fault) can explain the outstanding well yield, close to 120 cubic meters per hour, observed over the last two decades and with a very restricted drawdown of 20 m. The Plœmeur aquifer is a typical example of groundwater resource within a shallowly dipping fractured zone. Then we extend our discussion to other preferential aquifers and finally discuss the exploration, production and protection of the alternative aquifer structures identified.

4.1. Application to the Plœmeur aquifer

The Plœmeur aquifer is located at the contact between the Plœmeur granite — a leucogranite developed during the Hercynian orogeny — and overlying micaschists (Horrenberger et al., 1972; Touchard, 1999). A few boreholes have been drilled around a lowland humid zone understood as the natural discharge of the aquifer. High well yields have been maintained over more than two decades. Water arrivals within the wells are localized between 50 and 100 m within mylonites and/or highly fractured pegmatites (Le Borgne et al., 2006; Touchard, 1999). Geological and geophysical investigations (Ruelleu et al., 2010; Touchard, 1999) suggest that this outstanding water resource comes from a kilometric-scale shallowly dipping structure observed all over the site at the interface between the Plœmeur granite and the micaschists. The detailed groundwater model developed by Leray et al. (2012) proved this assumption to be consistent with the available hydraulic and CFCs concentration data. We used the framework developed in the previous sections to rationalize the occurrence of this groundwater resource.

The dimensionless well yield of the site $\overline{Q}_W$ reaches 6×10^3 for a recharge rate R of about 200 mm/year and an average drawdown Δh of 30 m. The transmissivity of the shallowly dipping fractured zone T_F is fairly well constrained by piezometric data and long-time well tests as well as numerical modeling at the site scale (Le Borgne et al., 2006; Leray et al., 2012). It ranges between 2×10^{-3} m^2/s and 3×10^{-3} m^2/s, resulting in a dimensionless transmissivity $\overline{T}_F$ between 10^4 and 2×10^4. The dimensionless hydraulic conductivity $\overline{K}_M$ of micaschists is less constrained and is between 1.6×10^1 and 8×10^2 (Leray et al., 2012). The dip angle α varies from 30° close to the surface to nearly zero farther away at about 200–400 m deep (Ruelleu et al., 2010; Touchard, 1999). The resulting average dip angle is estimated between 10° and 15°. Parameters and observations of the Plœmeur site are synthesized in Table 3.

Table 3
Synthesis of hydraulic and structural parameters of the Plœmeur site.

	Value or range	Units
Recharge rate R	200	mm/year
Depletion Δh	30	m
Dimensionless fractured zone transmissivity $\overline{T}_F$	10^4–2×10^4	
Dimensionless micaschists hydraulic conductivity $\overline{K}_M$	1.6×10^1–8×10^2	
Mean dipping angle α	10–15	°
Dimensionless well yield $\overline{Q}_W$	6×10^3	

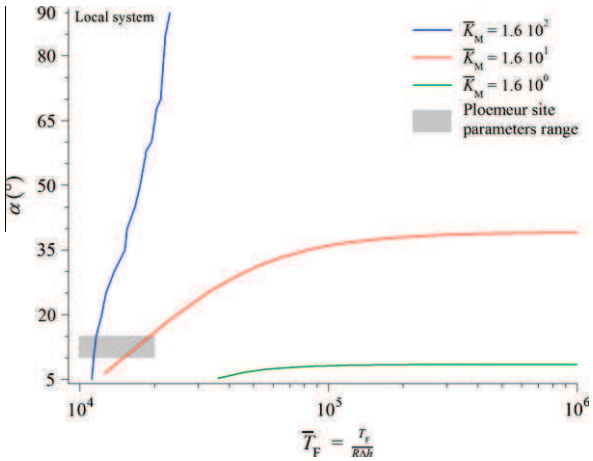


Fig. 9. Iso-lines of well yields derived for the local flow model for the dimensionless well yield reported at Plœmeur $\overline{Q}_W = 6 \times 10^3$ at three different dimensionless hydraulic conductivities $\overline{K}_M$ (see for instance Fig. 3b for $\overline{K}_M$ equal to 1.6×10^1).

The iso-lines of well yields are plotted in Fig. 9 for the dimensionless well yield reported on the Plœmeur site for the different dimensionless $\overline{K}_M$ values previously studied. The grey area in Fig. 9 corresponds to the range of possible values of the Plœmeur aquifer. First, the grey area intersects the iso-lines of well yields, showing that some of the models developed above are consistent with the data of the Plœmeur site. Second, the hydraulic conductivity of the overlying rock $\overline{K}_M$ must be high enough to provide sufficient leakage necessary for the reported well yield. $\overline{K}_M$ should range between 10^1 and 2×10^2, with the other parameters remaining in their possible ranges. Third, the Plœmeur aquifer appears to be at the limit between the two types of aforementioned controls. Either it is controlled only by the fractured zone transmissivity $\overline{T}_F$ (blue[2] curve in Fig. 9) for the higher $\overline{K}_M$ value, or it is controlled by both the fractured zone transmissivity and the leakage in the overlying rock through the dip angle α (red curve).

[2] For interpretation of color in Fig. 9, the reader is referred to the web version of this article.

Please cite this article in press as: Leray, S., et al. Numerical modeling of the productivity of vertical to shallowly dipping fractured zones in crystalline rocks. J. Hydrol. (2013), http://dx.doi.org/10.1016/j.jhydrol.2012.12.014

4.2. Application to fractured aquifers

The extensive previous simulations give a framework for a wide variety of geological settings. Besides, they show that significant well yields can be obtained in a large variety of cases. The dashed line in Fig. 3b underlines the well yield obtained in the Plœmeur site. A large range of fracture structures can lead to similar productivities when following the dashed lines. Higher productivities can also show up when varying the angle α, the transmissivity $\overline{T}_F$ and the overlying rock hydraulic conductivity $\overline{K}_M$. It should be noted that productivity does not drop critically at larger dip angles α so 50° dipping structures may still be interesting groundwater resources. This conclusion is of course modulated by the value of $\overline{K}_M$.

Because all results have been presented using dimensionless expressions, they can be used regardless of the values of the forcing terms R and Δh. The drawdown Δh remains within the low range of a few tens of meters because of energy costs. Variations of the recharge rate R may vary from place to place but may be easily estimated and remain limited in the kind of small watershed considered here. Dimensionless parameters are then much more sensitive to the variability and/or uncertainty of hydraulic properties. The wide range of conditions tested ensure the possible use of the results and methodology for a large range of natural settings, including crystalline basement aquifers encountered in various places such as Australia, India or France.

Moreover, this type of analysis can be used straightforwardly to predict the effect of recharge and the evolutions of pumping rates generally required for the study of climate change impacts. A decrease in the potential recharge rate will increase the dimensionless hydraulic parameters $\overline{T}_F$ and $\overline{K}_M$. The increase in the dimensionless well yield induced by moving on the iso-well yield maps (such as the maps of Fig. 3) will depend on the type of control previously introduced. For instance, for a configuration initially at 5a in Fig. 3b, the iso-lines of well yields are sub-vertical and the effect of a change in $\overline{T}_F$ is maximal. A 25% increase in $\overline{K}_M$ coming from a 20% decrease of the potential recharge rate will only slightly modify the dimensionless well yield while the corresponding 25% increase in $\overline{T}_F$ will result in an 11% increase in the dimensionless well yield. The resulting dimensional well yield will decrease only by roughly 12%. These variations fundamentally come from the non-linearity of the system. For a configuration close to 5c or 5b, however, the iso-lines of well yields are sub-horizontal and the effect of a change in $\overline{T}_F$ is minimal. A 25% increase in $\overline{T}_F$ does not change the dimensionless well yield. As said above, a 25% increase in $\overline{K}_M$ will only slightly change the dimensionless well yield which will finally decrease by about 25%, directly resulting from the decrease in the recharge rate.

The analysis of Section 3 can also be used to constrain the relationship between the aquifer parameters under given recharge and production conditions. Identification of the relevant control type (fractured zone transmissivity or leakage through the overlying rocks) may even lower the number of relevant parameters. Conversely, when knowing some parameters at a given site, Fig. 3 gives a rough estimate of its long-term productivity.

4.3. Groundwater resources exploration, exploitation and protection

Compared to the more traditional resources associated with the weathered zone or with some regional sub-vertical faults well connected to the surface, these alternative resources in shallowly dipping fractured zones are different in terms of exploration, exploitation and protection.

First, they are more local than regional and, as a result, do not require regional fracture connectivity like sub-vertical faults, as shown by comparison of the local and regional systems in Section 3. To ensure similar well yields, flows are rather regional than local for the sub-vertical fracture systems. If some regional-scale fracture connectivity may be expected in some crystalline rocks, effective connectivity for flow is expected to be much more limited in space because of several mechanical and hydraulic constraints (Davy et al., 2010; Edet et al., 1998; Gleeson and Novakowski, 2009; Gustafsson, 1994; Kouamé et al., 2010; Mabee, 1999; Mabee et al., 2002, 1994; Magowe and Carr, 1999; Moore et al., 2002; Sander, 2007; Sander et al., 1997; Solomon and Quiel, 2006; Waters et al., 1990).

Consequences are also important in terms of exploration. One of the main benefits of the sub-vertical fractures is that they are outcropping as lineaments and generally identifiable from remotely sensed data (Kouamé et al., 2010; Sander, 2007). It is not necessarily the case for the shallowly dipping structures. Alternative indicators of possible groundwater resources should be developed. From a hydrogeological point of view, the shallowly dipping structures are more likely to display confined properties than more superficial resources. From a geological point of view, lithological discordances and contacts may be preferential fractured zones. If water flow does not necessarily show up in geophysical data, the previously mentioned geological discontinuities could be traced and imaged (Ruelleu et al., 2010). From a geochemical point of view, selected environmental tracers could be used as an indirect *a posteriori* evaluation of the nature of the resource (local or regional). For instance, chlorofluorocarbons (CFCs) and SF_6 can easily decipher the smaller residence times between a few years and a few decades (Leray et al., 2012). We expect the deeper resources to have a larger residence time because of the leakage through the overlying rock units. Other hydrogeological indicators can be used for *a posteriori* evaluations like long-time drawdown tendencies. Convergence of the drawdown to a finite limit may be an indicator of connection to a sustainable recharge like a large-scale leakage (de Marsily, 1986).

The knowledge of the local or regional nature of flow is finally critical in terms of groundwater management. Because the shallowly dipping fractured zone captures the overlying recharge through the overlying rock at a smaller distance to the well, producing them will induce smaller drawdowns and more sustainable resources. Similarly, the more remote connection to the surface is a guarantee for less vulnerability to high frequency variations of the recharge occurring in some dry-year sequences. At the other end, these aquifers are not fossil waters. They are ultimately fed by

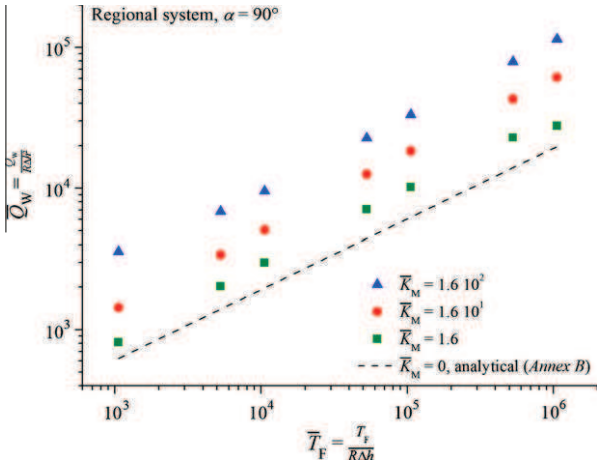


Fig. 10. Comparison of the dimensionless well yield $\overline{Q}_W$ obtained from an analytical model (Appendix B) of flow through a vertical fractured zone with no neighboring rock (black dashed line) with the dimensionless well yield obtained from numerical solutions (colored dots) at three different dimensionless hydraulic conductivities $\overline{K}_M$ of the neighboring leaking unit in the regional system.

Please cite this article in press as: Leray, S., et al. Numerical modeling of the productivity of vertical to shallowly dipping fractured zones in crystalline rocks. J. Hydrol. (2013), http://dx.doi.org/10.1016/j.jhydrol.2012.12.014

recharge over a longer flow cycle, which may be sped up and enhanced by sustainable production (Bredehoeft, 2002). The aquifer capacity should then be evaluated dynamically rather than in the sole terms of initial recharge and discharge.

The type of aquifer structure has a critical impact on management and protection issues. Slower flows through a leakage zone enhance water quality by increasing the residence times and filtration capacity. The capture zone of the well is also critically conditioned by the aquifer structure –regional for the sub-vertical fractures and more local for the shallowly dipping structures – which will lead to different protection policies and distinctive production strategies. As regards sub-vertical structures, flows are controlled by the fractured zone transmissivity ($\overline{T}_F$).

Wells drilled along the fractured zone outcrop are believed to counterbalance the effect of low $\overline{T}_F$ corresponding to localization of flow close to extraction wells and to promote transverse leakage through the neighboring less pervious units. Fig. 10 shows that a significant amount of flow comes from neighboring leaking structures under moderate to high $\overline{K}_M$ conditions. In the opposite case of shallowly dipping structures, flows are controlled by leakage through the overlying rock unit ($\overline{K}_M$ and α). In the latter cases, a single extraction well performs as well as a linear distribution of wells along the outcrop of the fractured zone as drawdown is minimum within the fractured zone and maximal through the overlying rock units.

If the differences between sub-vertical and shallowly dipping structures are globally similar to those of confined/unconfined aquifers, the evaluation of the aquifer resources should account for the specific structure, connectivity and relation to the surface of the fractured zone.

5. Conclusion

We identified fractured zone structures in hard-rock areas that are alternatives to the two classically used water bearing structures, i.e. the weathered zone and sub-vertical transmissive features identified via lineament mapping. Numerical simulations on a simple 3D conceptual model, composed of a dipping transmissive structure overlain by a lower permeable rock, show that well yields of local shallowly dipping fractured zones may be as high as those of sub-vertical regional fractures. These shallowly dipping structures have properties that are very different from the sub-vertical structures. While flow remains restricted along the regional sub-vertical transmissive features, leakage through the confining unit overlying the shallowly dipping structures may be significant even in case of large differences between the hydraulic conductivities of the fractured zone and overlying rocks. The controlling parameters are also fairly different: in case of local shallowly dipping structures, the limiting factor is generally the leakage through the overlying rock unit. As regards sub-vertical fractures, the limiting factor is the transmissivity of the fractured zone. The potential occurrence of alternative groundwater resources is illustrated and confirmed by the outstanding productivity of the Plœmeur aquifer (Brittany, France) that falls within the framework of a local shallowly dipping fractured zone. The extensive numerical study shows that groundwater resources may occur in a large variety of fractured zone settings and can be used as a first estimate of the productivity within a large variety of geological settings.

Acknowledgments

Funding was provided by the French National Research Agency ANR through the H2MNO4 project for the development of parallel simulation methods (ANR-11-MN). Research and monitoring on the Plœmeur site are funded by the Environmental research Observatory H+ (Network of hydrogeological sites) and by the European Interreg IV project Climawat. J.-R. de Dreuzy acknowledges the European Union for its additional funding through the IEF Marie-Curie fellowship (PIEF-GA-2009-251710). The article has benefited from the insightful reviews of Tom Gleeson and Thomas Burbey.

Appendix A. Flow through a one-dimensional dipping aquifer augmented by a leaking overlying unit

We consider one-dimensional flow along axis y' in a semi-confined dipping structure overlain by a leaking lower permeable unit (Fig. 8a). The transmissivity T_F of the dipping structure is constant as well as its width x_A.

Head is set to h_w for y' equal to 0 in order to represent a well. The induced flow rate Q_W is computed as the product of the recharge rate on the surface R, assumed constant, with the surface $x_A\, y_A$:

$$Q_W = R x_A y_{A'} \tag{A.1}$$

where x_A and y_A are the lateral and the transversal extensions of the system on surface, respectively. Applying mass conservation principle, flow rate can also be expressed by the product of leakage R' at the top of the dipping structure, approximated constant, with the surface of the interface between the fractured zone and the overlying rock unit:

$$Q_W = R' x_A y'_A \tag{A.2}$$

where y'_A is the transverse length of the interface. As flow lines are assumed orthogonal to the top of the dipping structure, the transverse limit of the capture zone at the top of the dipping structure y'_A is the product of y_A with the cosine of the dip angle α. The flow R' at the top of the dipping structure is then expressed by:

$$R' = \frac{R y_A}{y'_A} = \frac{R}{\cos\alpha} \tag{A.3}$$

We assume that there is no variation of the flow along the lateral direction and that the Dupuits-Forchheimer assumption is valid, so that the flow is one-dimensional along the transverse direction y'. The steady-state diffusivity equation for hydraulic head $h(y')$ in the dipping structure is then described by the following set of equations:

$$\nabla^2 h(y') = -\frac{R'}{T_F} = -\frac{R}{T_F \cos\alpha} \tag{A.4}$$

$$h(y' = 0) = h_w \tag{A.5}$$

$$\nabla h(y' = y'_A) = 0 \tag{A.6}$$

Eqs. (A.5) and (A.6) are the sink term representing the extraction well and the boundary conditions at the transverse limit of the capture zone y'_A, respectively. Integrating Eq. (A.4), under the boundary conditions (A.5) and (A.6), leads to:

$$\nabla h(y') = -\frac{R}{T_F \cos\alpha} y' + \frac{Q_W}{x_A T_F}, \tag{A.7}$$

$$h(y') = -\frac{R}{2T_F \cos\alpha} y'^2 + \frac{Q_W}{x_A T_F} y' + h_w \tag{A.8}$$

Flow through the leaking structure of constant hydraulic conductivity K_M, noted $q(y')$ and assumed constant and equal to R', can be expressed as:

$$q(y') = K_M \frac{h(y') - h_M(y)}{e_M(y')} = -R' \tag{A.9}$$

with $h_M(y)$ the head in the leaking structure at location y, i.e. the free surface level, $e_M(y')$ the thickness of the leaking structure at location y'. Eq. (A.9) can be transformed into:

Please cite this article in press as: Leray, S., et al. Numerical modeling of the productivity of vertical to shallowly dipping fractured zones in crystalline rocks. J. Hydrol. (2013), http://dx.doi.org/10.1016/j.jhydrol.2012.12.014

$$h(y') = h_M(y) - \frac{R' e_M(y')}{K_M} = h_M(y) - \frac{R \tan\alpha}{K_M \cos\alpha} y' \quad (A.10)$$

Whatever the location y' in the aquifer, Eqs. (A.8) and (A.10) can be combined to ultimately constrain the induced flow rate Q_W:

$$h_w - \frac{R}{2T_F \cos\alpha} y'^2 + \frac{Q_W}{x_A T_F} y' = h_M(y) - \frac{R \tan\alpha}{K_M \cos\alpha} y' \quad (A.11)$$

At location y'_A, Eq. (A.11) reduces to:

$$h_w - \frac{R}{2T_F \cos\alpha} y_A'^2 + \frac{Q_W}{x_A T_F} y'_A = h_M(y_A) - \frac{R \tan\alpha}{K_M \cos\alpha} y'_A \quad (A.12)$$

Assuming that far from the sink term, the free surface level can be approximated by ground surface level h_s (in reference to Section 2.2) and using Eqs. (A.2) and (A.3) to express y'_A, we write:

$$h_w - \frac{R}{2T_F \cos\alpha} \left(\frac{Q_W}{x_A R} \cos\alpha\right)^2 + \frac{Q_W}{x_A T_F} \left(\frac{Q_W}{x_A R} \cos\alpha\right) = h_s - \frac{R \tan\alpha}{K_M \cos\alpha} \left(\frac{Q_W}{x_A R} \cos\alpha\right) \quad (A.13)$$

that simplifies to

$$Q_W^2 + Q_W \left(\frac{2T_F R x_A \tan\alpha}{K_M \cos\alpha}\right) - \frac{2T_F R x_A^2 \Delta h}{\cos\alpha} = 0 \quad (A.14)$$

with Δh equal to $h_s - h_w$, as detailed in Section 2.2. Using γ as a characteristic flow rate ($L^3\,T^{-1}$):

$$\gamma = \frac{T_F R x_A \tan\alpha}{K_M \cos\alpha} \quad (A.15)$$

Eq. (A.14) leads to the polynomial equation of the second degree:

$$Q_W^2 + 2\gamma Q_W - 2\gamma \frac{x_A K_M \Delta h}{\tan\alpha} = 0 \quad (A.16)$$

The equation has a single positive solution given by:

$$Q_W = \gamma \left(-1 + \sqrt{1 + \frac{2K_M x_A \Delta h}{\tan\alpha} \frac{1}{\gamma}}\right). \quad (A.17)$$

Applying the same normalization process as in Section 2.4 and the expression of γ of (A.15) results in:

$$\overline{Q}_W = \frac{x_A}{\Delta h} \frac{\overline{T}_F}{\overline{K}_M} \frac{\tan\alpha}{\cos\alpha} \left(-1 + \sqrt{1 + 2\frac{\overline{K}_M^2 \cos\alpha}{\overline{T}_F \tan^2\alpha}}\right) \quad (A.18)$$

Appendix B. Purely vertical aquifer without leaking neighboring unit

We consider a vertical fractured zone (α equal to 90°) of constant transmissivity T_F without neighboring low permeable unit (K_M is zero). The lateral dimension of the fractured zone is supposed to be large enough so that boundary conditions do not play any role in the flow organization. Transverse extension of the fractured zone is noted l. We suppose that there is no variation of flow along the transverse direction since this dimension is negligible compared to the lateral one and that the Dupuits-Forchheimer assumption is valid, so that the flow is one-dimensional along the lateral direction, noted x.

In a confined one-dimensional (along x) aquifer of constant transmissivity T_F augmented by constant recharge R, the steady-state diffusivity equation for hydraulic head $h(x)$ is:

$$\nabla^2 h(x) = -\frac{R}{T_F} \quad (B.1)$$

$$h(x = 0) = h_w \quad (B.2)$$

$$\nabla h\left(x = \frac{x_A}{2}\right) = \nabla h\left(x = -\frac{x_A}{2}\right) = 0. \quad (B.3)$$

Eqs. (B.2) and (B.3) are the sink term representing an extraction well and the boundary conditions on both sides $-\frac{x_A}{2}$ and $\frac{x_A}{2}$ with x_A the lateral width of the capture zone, respectively. Integrating (B.1), under the boundary conditions (B.2) and (B.3), results in:

$$\begin{cases} \nabla h(x) = +\frac{R}{T_F}\left(|x| + \frac{x_A}{2}\right) & \text{if } x < 0 \\ \nabla h(x) = -\frac{R}{T_F}\left(|x| + \frac{x_A}{2}\right) & \text{if } x > 0 \end{cases} \quad (B.4)$$

$$h(x) = h_w - \frac{R}{2T_F}(x^2 - x_A|x|) \quad (B.5)$$

As expected, the head and the norm of the velocity field, proportional to the head gradient norm, are symmetric in x.

As our objective is to determine the maximum flow rate at the extraction well, we impose that the piezometric level at the limits of the capture zone is equal to the ground surface level h_S so as to create the maximum possible head difference, noted Δh as in Section 2.2. The result is as follows:

$$h\left(-\frac{x_A}{2}\right) = h\left(\frac{x_A}{2}\right) = h_s = h_w - \frac{R}{2T_F}\left(\frac{x_A^2}{4} - x_A \frac{x_A}{2}\right) \quad (B.6)$$

$$h_s - h_w = \Delta h = \frac{R}{2T_F}\left(\frac{x_A^2}{4}\right) \quad (B.7)$$

$$x_A = \sqrt{\frac{8T_F \Delta h}{R}} \quad (B.8)$$

As flow rate at the extraction well Q_W is the integral of the recharge rate all over the capture zone:

$$Q_W = l \int_{-\frac{x_A}{2}}^{+\frac{x_A}{2}} R dx = R l x_A = l\sqrt{8T_F R \Delta h} \quad (B.9)$$

Applying the same normalization process as in Section 2.4 results in:

$$x_A = \Delta h \sqrt{8\overline{T}_F} \quad (B.10)$$

$$\overline{Q}_W = \frac{Q_W}{R\Delta h^2} = \frac{l}{\Delta h}\sqrt{8\overline{T}_F} \quad (B.11)$$

References

Bredehoeft, J.D., 2002. The water budget myth revisited: why hydrologists model. Groundwater 40 (4), 340–345.

Bresciani, E., Davy, P., de Dreuzy, J.-R., 2011. A finite volume approach with local adaptation scheme for the simulation of free surface flow in porous media. Int. J. Numer. Anal. Meth. Geomech. 36 (13), 1574–1591. http://dx.doi.org/10.1002/nag.1065.

Courtois, N., Lachassagne, P., Wyns, R., Blanchin, R., Bougaïré, F.D., Somé, S., Tapsoba, A., 2010. Large-scale mapping of hard-rock aquifer properties applied to Burkina Faso. Groundwater 48 (2), 269–283. http://dx.doi.org/10.1111/j.1745-6584.2009.00620.x.

Davison, C.C., 1985. Far-field hydrogeological monitoring at the site Canada's Underground Research Laboratory. In: Côme, B., Johnston, P., Müller, A. (Eds.), Design and instrumentation of In Situ Experiments in Underground Laboratories for Radioactive Waste Disposal. A.A. Balkema, Rotterdam, pp. 142–156.

Davy, P., Le Goc, R., Darcel, C., Bour, O., de Dreuzy, J.R., Munier, R., 2010. A likely universal model of fracture scaling and its consequence for crustal hydromechanics. J. Geophys. Rev. 115 (B10411), doi:10.1029/2009JB007043.

Please cite this article in press as: Leray, S., et al. Numerical modeling of the productivity of vertical to shallowly dipping fractured zones in crystalline rocks. J. Hydrol. (2013), http://dx.doi.org/10.1016/j.jhydrol.2012.12.014

de Marsily, G., 1986. Quantitative hydrogeology: Groundwater Hydrology for Engineers. Academic Press, New York, 440 pp.

Dewandel, B., Lachassagne, P., Wyns, R., Maréchal, J.C., Krishnamurthy, N.S., 2006. A generalized 3-D geological and hydrogeological conceptual model of granite aquifers controlled by single or multiphase weathering. J. Hydrol. 330, 260–284. http://dx.doi.org/10.1016/j.jhydrol.2006.03.026.

Dewandel, B., Perrin, J., Ahmed, S., Aulong, S., Hrkal, Z., Lachassagne, P., Samad, M., Massuel, S., 2010. Development of a tool for managing groundwater resources in semi-arid hard rock regions: application to a rural watershed in South India. Hydrol. Process. 24 (19), 2784–2797. http://dx.doi.org/10.1002/hyp.7696.

Dewandel, B., Maréchal, J.C., Bour, O., Ladouche, B., Ahmed, S., Chandra, S., Pauwels, H., 2012. Upscaling and regionalizing hydraulic conductivity and effective porosity at watershed scale in deeply weathered crystalline aquifers. J. Hydrol. 416–417, 83–97. http://dx.doi.org/10.1016/j.jhydrol.2011.11.038.

Edet, A.E., Okereke, C.S., Teme, S.C., Esu, E.O., 1998. Application of remote-sensing data to groundwater exploration: a case study of the Cross River State, southeastern Nigeria. Hydrogeol. J. 6 (3), 394–404. http://dx.doi.org/10.1007/s100400050162.

Fernandes, A.J., Rudolph, D.L., 2001. The influence of Cenozoic tectonics on the groundwater-production capacity of fractured zones: a case study in Sao Paulo, Brazil. Hydrogeol. J. 9, 151–167.

Gleeson, T., Novakowski, K., 2009. Identifying watershed-scale barriers to groundwater flow: Lineaments in the Canadian Shield. Geol. Soc. Am. Bull. 121 (3–4), 333–347. http://dx.doi.org/10.1130/B26241.1.

Greenbaum, D., 1992. Structural influences on the occurence of groundwater in SE Zimbabwe. In: Wright, E.P., Burgess, E.G. (Eds.), Hydrogeology of Crystalline Basement Aquifers in Africa. Geological Society of America, London, pp. 77–85.

Gustafsson, P., 1994. SPOT satellite data for exploration of fractured aquifers in a semi-arid area in southeastern Botswana. Appl. Hydrogeol. 2 (2), 9–18. http://dx.doi.org/10.1007/s100400050246.

Horrenberger, J.C., Morzadec, M.T., Cogné, J., 1972. Lorient (383), Carte géologique de la France à 1/50 000. BRGM, Orléans, pp. Geological Map.

Kouamé, K.F., Lasm, T., De Dreuzy, J.R., Akaffou, A.G., Bour, O., Davy, P., 2010. Contribution d'un modèle hydrogéologique stochastique à fractures discrètes à l'étude des aquifères fracturés du socle Archéen de Touba (Nord-Ouest de la Côte d'Ivoire). Revue des Sciences de l'Eau 23 (1), 41–56.

Kuusela-Lahtinen, A., Niemi, A., Luukkonen, A., 2003. Flow dimension as an indicator of hydraulic behavior in site characterization of fractured rock. Groundwater 41 (3), 333–341.

Lachassagne, P., Wyns, R., Dewandel, B., 2011. The fracture permeability of hard rock aquifers is due neither to tectonics, nor to uploading, but to weathering processes. Terra Nova 23, 145–161. http://dx.doi.org/10.1111/j.1365-3121.2011.00998.x.

Larsson, I., 1972. Ground water in granite rocks and tectonic models. Nord. Hydrol. 3, 111–129.

Lattman, L.H., Parizek, R.R., 1964. Relationship between fracture traces and the occurrence of ground water in carbonate rocks. J. Hydrol. 2 (2), 73–91. http://dx.doi.org/10.1016/0022-1694(64)90019-8.

Le Borgne, T., Bour, O., Paillet, J.-L., Caudal, J.-P., 2006. 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.

Leray, S., de Dreuzy, J.R., Bour, O., Labasque, T., Aquilina, L., 2012. Contribution of age data to the characterization of complex aquifers. J. Hydrol. 464–465, 54–68. http://dx.doi.org/10.1016/j.jhydrol.2012.06.052.

Liou, T.S., Lee, Y.H., Chiang, L.W., Lin, W., Guo, T.R., Chen, W.S., Chien, J.M., 2010. Alternative water resources in granitic rock: a case study from Kinmen Island, Taiwan. Environ. Earth Sci. 59 (5), 1033–1046. http://dx.doi.org/10.1007/s12665-009-0095-4.

Mabee, S.B., 1999. Factors influencing well productivities in glaciated metamorphic rocks. Groundwater 37 (1), 88–97. http://dx.doi.org/10.1111/j.1745-6584.1999.tb00961.x.

Mabee, S.B., Hardcastle, K.C., Wise, D.U., 1994. A method of collecting and analyzing lineaments for regional-scale fractured-bedrock aquifer studies. Groundwater 32 (6), 884–894. http://dx.doi.org/10.1111/j.1745-6584.1994.tb00928.x.

Mabee, S.B., Curry, P.J., Hardcastle, K.C., 2002. Correlation of lineaments to ground water inflows in a bedrock tunnel. Groundwater 40 (1), 37–43. http://dx.doi.org/10.1111/j.1745-6584.2002.tb02489.x.

Magowe, M., Carr, J.R., 1999. Relationship between lineaments and ground water occurrence in Western Botswana. Groundwater 37 (2), 282–286. http://dx.doi.org/10.1111/j.1745-6584.1999.tb00985.x.

Mayer, J.R., Sharp, J.M.J., 1998. Fracture control of regional ground-water flow in a carbonate aquifer in a semi-arid region. Geol. Soc. Am. Bull. 110 (2), 269–283, doi: 10.1130/0016-7606(1998) 110<0269:FCORGW>2.3.CO;2.

Moore, R.B., Schwarz, G.E., Clark, S.F.J., Walsh, G.J., Degnan, J.R. (Eds.), 2002. Factors related to well yield in the fractured-bedrock aquifer of New Hampshire. U.S. Geological Survey Professional Paper 1660, 51 pp.

Naik, P.K., Awasthi, A.K., Anand, A.V.S.S., Mohan, P.C., 2001. Hydrogeologic framework of the Deccan terrain of the Koyna River basin, India. Hydrogeol. J. 9 (3), 243–264. http://dx.doi.org/10.1007/s100400100123.

Narayana, G.S., Lakshmaiak, N., Goud, P.V.P., 1996. Hydrogeomorphological study based on remote sensing of Mulug Taluk, Warangal district, Andhra Pradesh, India. Hydrol. Sci. J. – J. des Sci. Hydrol. 41 (2), 137–151. http://dx.doi.org/10.1080/02626669609491488.

Negrel, P., Pauwels, H., Dewandel, B., Gandolfi, J.M., Mascre, C., Ahmed, S., 2011. Understanding groundwater systems and their functioning through the study of stable water isotopes in a hard-rock aquifer (Maheshwaram watershed, India). J. Hydrol. 397 (1–2), 55–70. http://dx.doi.org/10.1016/j.jhydrol.2010.11.033.

Neves, M.A., Morales, N., 2007. Structural control over well productivity in the Jundiaí River catchment, Southeastern Brazil. Anais da Academia Brasileira de Ciências 79 (2), 307–320.

Ruelleu, S., Moreau, F., Bour, O., Gapais, D., Martelet, G., 2010. Impact of gently dipping discontinuities on basement aquifer recharge: an example from Plœmeur (Brittany, France). J. Appl. Geophys. 70 (2), 161–168. http://dx.doi.org/10.1016/j.jappgeo.2009.12.007.

Sander, P., 2007. Lineaments in groundwater exploration: a review of applications and limitations. Hydrogeol. J. 15, 71–74. http://dx.doi.org/10.1007/s10040-006-0138-9.

Sander, P., Minor, T.B., Chesley, M.M., 1997. Ground-water exploration based on lineament analysis and reproducibility tests. Groundwater 35 (5), 888–894. http://dx.doi.org/10.1111/j.1745-6584.1997.tb00157.x.

Seaton, W.J., Burbey, T.J., 2005. Influence of ancient thrust faults on the hydrogeology of the Blue Ridge Province. Groundwater 43 (3), 301–313. http://dx.doi.org/10.1111/j.1745-6584.2005.0026.x.

Siddiqui, S.H., Parizek, R.R., 1971. Hydrogeologic factors influencing well yields in folded and faulted carbonate rocks in central pennsylvania. Water Resour. Res. 7 (5), 1295–1312.

Singhal, B.B.S., Gupta, R.P., 2010. Applied hydrogeology of fractured rocks, second ed. Kluwer Academic Publishers (Springer) Dordrecht, Netherlands, pp. 428.

Solomon, S., Quiel, F., 2006. Groundwater study using remote sensing and geographic information systems (GIS) in the central highlands of Eritrea. Hydrogeol. J. 14 (5), 729–741. http://dx.doi.org/10.1007/s10040-005-0477-y.

Taylor, R., Howard, K., 2000. A tectono-geomorphic model of the hydrogeology of deeply weathered crystalline rocks: evidence from Uganda. Hydrogeol. J. 8, 279–294.

Touchard, F., 1999. Caractérisation hydrogéologique d aquifère en socle fracturé: Site de Plœmeur (Morbihan). PhD Thesis, University of Rennes 1, France, 343 pp.

Tsang, C.-F., Neretnieks, I., 1998. Flow channeling in heterogeneous fractured rocks. Rev. Geophys. 36 (2), 275–298. http://dx.doi.org/10.1029/97RG03319.

Walker, D.D., Gylling, B., Ström, A., Selroos, J.O., 2001. Hydrogeologic studies for nuclear-waste disposal in Sweden. Hydrogeol. J. 9, 419–431. http://dx.doi.org/10.1007/s100400100156.

Waters, P., Greenbaum, D., Smart, P.L., 1990. Applications of remote sensing to groundwater hydrology. Remote Sensing Rev. 4 (2). http://dx.doi.org/10.1080/02757259009532107.

White, B.A., Burbey, T.J., 2007. Evidence for structurally controlled recharge in the Blue Ridge Province, Virginia, USA. Hydrogeol. J. 15, 929–943. http://dx.doi.org/10.1007/s10040-006-0150-0.

Wright, E.P., Burgess, W.G., 1992. The hydrogeology of crystalline basement aquifers in Africa. Geological Society Special Publication no. 66. The Geological Society, London, 262 pp.

Wyns, R., Baltassat, J.M., Lachassagne, P., Legchenko, A., Vairon, J., Mathieu, F., 2004. Bulletin de la Société Géologique de France. Application of SNMR soundings for groundwater reserves mapping in weathered basement rocks (Brittany, France), vol. 175(1), pp. 21–34.

Please cite this article in press as: Leray, S., et al. Numerical modeling of the productivity of vertical to shallowly dipping fractured zones in crystalline rocks. J. Hydrol. (2013), http://dx.doi.org/10.1016/j.jhydrol.2012.12.014

3.3. Conclusions

Nous avons mis en évidence l'existence d'autres ressources en eau dans les milieux cristallins, confirmant ainsi certaines observations de site. La ressource en eau dans ces milieux peut ainsi prendre place dans une large palette de structures allant de la couche altérée aux fractures sub-verticales à de larges échelles, en passant par des fractures sub-horizontales à des échelles plus modestes. Les résultats produits sont basés sur une analyse de la productivité du milieu *via* des simulations numériques de l'écoulement dans un modèle conceptuel 3D simple, nonobstant générique. Ce modèle est composé d'une structure transmissive en pente recouverte d'une structure moins perméable.

Les structures transmissives sub-horizontales locales ainsi mises en évidence ont des propriétés diamétralement opposées aux mêmes structures sub-verticales régionales. En effet, là où l'écoulement est contenu à proximité et le long des fractures sub-verticales, il est plus développé dans les structures sub-horizontales locales et caractérisé par un écoulement dans la structure environnante peu perméable, même dans les cas où le contraste de perméabilité entre les structures est important. Egalement, les paramètres contrôlant l'occurrence de la ressource dans les structures sub-verticales régionales et sub-horizontales locales sont distincts : si dans les premières, le facteur limitant est la transmissivité de la zone fracturée, dans les secondes, le contrôle est plus complexe et la ressource est généralement limitée par l'écoulement dans la couche moins perméable. La diversité de l'occurrence de la ressource dans ces milieux hétérogènes cristallins implique la même diversité dans les techniques d'exploration, d'exploitation et de protection.

Les résultats apportés ont été appliqués avec succès au site de Plœmeur, étonnamment productif, apportant ainsi des éléments de réponse pour le fonctionnement hydrogéologique du site.

Chapitre 4 Apport des données d'âge pour la caractérisation des structures complexes très hétérogènes

4.1. Introduction

L'objectif de cette étude est de déterminer l'apport des données d'âge pour la caractérisation des milieux hétérogènes complexes avec comme interrogation transversale la spécificité de ces données dont l'acquisition est potentiellement difficile et coûteuse. Les données d'âge étant le résultat d'une convolution entre la chronique d'entrée et la distribution des temps de résidence, cette dernière sera particulièrement analysée. Classiquement, la forme de la distribution des temps de résidence est supposée connue : des modèles d'écoulement relativement simples sont ainsi appliqués aux sites étudiés. De ces modèles calés sur les données d'âge, on déduit un temps caractéristique, typiquement la moyenne des temps de résidence, voire certains paramètres du système comme la recharge. Pourtant, l'application de ces modèles est limitée à des systèmes relativement homogènes et l'utilisation de modèles conceptuels pour l'écoulement et le transport paraît douteuse dans les milieux plus complexes.

La modélisation numérique du flux et du transport au sein de structures géologiques et hydrogéologiques complexes doit permettre d'apporter des éléments de réponse sur l'apport des données d'âge dans la définition de modèles conceptuels complexes. En d'autres termes, quelle est la sensibilité des données d'âge et des autres données (piézométrie, tests hydrauliques, observations générales, hydrologie, géophysique) aux paramètres du système, hydrodynamiques et structuraux, et ainsi, quels paramètres contraindre par l'utilisation conjointe de ces données?

L'utilisation de ces modèles pour la prédiction est aussi discutée, le dessein étant ici l'analyse de la distribution des temps de résidence et la pertinence du choix des modèles. Tout particulièrement, nous comparons les distributions des temps de résidence numériques à des modèles de mélange de type exponentiel. La modélisation de l'aquifère de Plœmeur où des données d'âge en CFC et SF_6 sont disponibles permet d'étudier le lien qui existe entre les paramètres du système et les données. La particularité de cette étude réside aussi dans le fait que les données sont considérées au point de décharge - ici le puits de pompage – ce qui est cohérent avec les observations faites sur la disponibilité habituelle des données.

L'article est organisé comme suit : après une introduction (section 1) et une partie théorique (section 2) portant sur l'état des connaissances vis-à-vis de l'information contenue dans les données d'âge et des modèles classiques, sont présentés le site de Plœmeur et les données utilisées dans les modèles numériques (section 3). Une partie dédiée aux modèles hydrogéologiques, d'écoulement et de transport (section 4) présente les différents choix liés à la modélisation : discrétisation, conditions aux limites, méthodes numériques… Les résultats de la calibration manuelle des modèles numériques hétérogènes sur les données de piézométrie et d'âge sont ensuite présentés successivement (section 5) : après une analyse de sensibilité à certains paramètres, les résultats de la calibration manuelle en eux-mêmes sont présentés avant de conclure sur l'information contenue dans cette donnée. La partie discussion (section 6) se consacre à l'analyse de la sensibilité de la donnée d'âge à la méthode de modélisation du transport, analytique ou numérique, et de l'impact du choix du modèle sur la prédiction.

4.2. *Contribution of age data to the characterization of complex aquifers* (article publié)[4]

Paper published in Journal of hydrology 464-465 (2012) 5-68

http://dx.doi.org/10.1016/j.jhydrol.2012.06.052

Sarah Leray[a], Jean-Raynald de Dreuzy[a, b], Olivier Bour[a], Thierry Labasque[a] and Luc Aquilina[a]

[a] Géosciences Rennes (UMR 6118 CNRS), Université de Rennes 1, Campus de Beaulieu, 35042 Rennes cedex, France

[b] IDAEA (CSIC), c/ Jordi Girona, 08034, Barcelona, Spain

[4] Les numéros de figure et de section ainsi que leurs renvois sont propres à l'article. Seule la numérotation des pages est relative à ce manuscrit.

Journal of Hydrology 464–465 (2012) 54–68

Contents lists available at SciVerse ScienceDirect

Journal of Hydrology

journal homepage: www.elsevier.com/locate/jhydrol

Contribution of age data to the characterization of complex aquifers

S. Leray [a,*], J.-R. de Dreuzy [a,b], O. Bour [a], T. Labasque [a], L. Aquilina [a]

[a] Géosciences Rennes (UMR 6118 CNRS), Université de Rennes 1, Campus de Beaulieu, 35042 Rennes Cedex, France
[b] IDAEA (CSIC), c/Jordi Girona, 08034 Barcelona, Spain

ARTICLE INFO

Article history:
Received 9 March 2012
Received in revised form 15 June 2012
Accepted 22 June 2012
Available online 16 July 2012
This manuscript was handled by Peter K. Kitanidis, Editor-in-Chief, with the assistance of Renduo Zhang, Associate Editor

Keywords:
Groundwater age
Residence time distribution
Environmental tracers
Chlorofluorocarbons
Heterogeneous aquifers
Conceptual models

SUMMARY

Environmental tracers have been extensively used to get characteristic groundwater velocities. When sampled in discharge zones, we show that they can also be efficiently used to get more integrative information on aquifer structure, which is especially valuable in complex geological settings like hard-rock contexts. Used in combination with generally available hydraulic data, they give useful prediction of the residence time distribution. Our analysis is illustrated on the produced crystalline aquifer of Plœmeur (Brittany, France) formed at a dipping contact zone between granites and micaschists. Although constrained on the same hydraulic head and CFC-12 data sampled at the produced well, full steady-state hydrogeological models and simpler exponential-like models yield predictions of the renewal rate and of the cumulative residence time that may differ by a factor 2. Differences come predominantly from the km-scale geological structures and topographical features that cannot be resolved by statistical models and are nonetheless essential within the characteristic dating range of the CFCs (0–70 years). Our analysis highlights the interest of combining hydraulic and age information for the prediction of residence time distributions within full hydrogeological models, and the capacity of identifying global hydrogeological structures from point-like data.

© 2012 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

Environmental tracer concentrations measured in groundwater are informative on global circulations within natural aquifers (Cook and Herczeg, 2000; Kazemi et al., 2005). They are extensively used to get valuable information on characteristic transit times or residence times. The transit time refers to the integrated time along a unique flow line while the mean residence time rather corresponds to the mean time of all flow lines of the overall volume. Whatever the terminology, these two opposite concepts of integration along a flow line or within a volume loosely map respectively the classical piston-flow and exponential models (Begemann and Libby, 1957; Eriksson, 1958; Kaufman and Libby, 1954). Piston-flow and exponential models characterize natural circulations between the recharge area and the sampling zone. They have been widely used for getting immediate information on natural circulations (Cook and Herczeg, 2000; Kazemi et al., 2005).

If it is intuitive that groundwater ages contain global information, it is also intuitive that they should be sensitive to the aquifer structure and hydraulic properties and could be used for calibrating hydrogeological models (Ginn et al., 2009; Goode, 1996; Varni and Carrera, 1998). Fundamentally, calibration capacity raises the issue of the sensitivity of groundwater ages to the aquifer properties and boundary conditions particularly in heterogeneous systems where neither the variability of properties nor their spatial distribution are well-characterized (Zinn and Konikow, 2007). In other terms, we are looking at the type of information effectively contained in groundwater ages. As groundwater ages characterize the aquifer globally, they should also be combined to more descriptive information like those available in geological and hydraulic data.

Formally, the interpretation of groundwater ages in terms of aquifer parameters is an inverse problem in which the observables are the tracer ages and the parameters are the hydraulic conductivities and porosities. Available hydraulic information is used as additional observables for the hydraulic head and as constraints for specifying a regularization term for the conductivities (Carrera et al., 2005). Simulating groundwater ages would require the use of the equation of advective and dispersive transport modified to account for an aging term (Ginn et al., 2009; Goode, 1996; Varni and Carrera, 1998). This methodology has been developed for interpreting simultaneously tracer tests and hydraulic heads (Franssen et al., 2003; Moore and Doherty, 2005). It cannot however be straightforwardly extended to environmental tracer concentrations for the two following reasons. First, tracer tests remain local with a well located source while environmental tracers enter the aquifer through wide recharge areas that are rarely known. Second, tracer tests are generally performed with a dense grid of observation points (Englert et al., 2009), while environmental tracer

* Corresponding author. Tel.: +33 223236699.
E-mail address: sarah.leray@univ-rennes1.fr (S. Leray).

0022-1694/$ - see front matter © 2012 Elsevier B.V. All rights reserved.
http://dx.doi.org/10.1016/j.jhydrol.2012.06.052

concentrations are commonly available close to the discharge zones of the aquifer whether they are pumping stations or natural discharges.

When data are concentrated within the discharge zones of the aquifer, we propose a simplified calibration methodology using jointly hydraulic head and groundwater ages in the spirit of a parsimonious characterization of the aquifer properties (Hill and Tiedeman, 2007). We set up and illustrate this methodology on a natural aquifer (Plœmeur, France) located in crystalline rocks. While calibrating, our objective is to understand the relations between the hydraulic properties and the aquifer structure on one side and the hydraulic head and groundwater age on the other side. Those relations highlight both information contained in the groundwater age data and the way to use them.

After recalling in Section 2 the available results on the use of environmental tracer concentrations per se, i.e. without any additional head data, we present the site of Plœmeur that will be used as a demonstrative example (Section 3) and the numerical methods used to model it (Section 4). Sensitivity analysis and manual calibration of hydraulic head data and groundwater ages are reported and discussed in Sections 5 and 6.

2. Use of environmental tracers for constraining aquifer properties

A conservative tracer not undergoing mixing would have its concentration transported unmodified in the medium. Providing that its atmospheric concentration is a monotonic function of time, its concentration at a given position of the aquifer directly indicates the transit time t_P from the recharge position x_0 to the sampled position x_D. It is precisely what is implied in the transformation of tracer concentrations into groundwater ages. It is also the framework of the piston-flow model according to which concentrations are advected without any diffusion or dispersion along a single flow line (Begemann and Libby, 1957). In steady-state conditions, the transit time t_P can straightforwardly be expressed in terms of physical properties:

$$t_P = \int_{x_0}^{x_D} \frac{\varphi(l)}{q(l)} dl, \tag{1}$$

where $\varphi(l)$ and $q(l)$ are the porosity and the flux at the curvilinear position l along the flow line. The residence time distribution $p(t)$ at the sampling zone is restricted to a Dirac function:

$$p(t) = \delta(t - t_P). \tag{2}$$

If the velocity along the flow line is constant, and noted R in reference to the recharge rate often inferred using this model, then the transit time t_P is determined by:

$$t_P = \frac{\varphi L}{R}, \tag{3}$$

with L the length of the flow line. The piston-flow model has been widely used in hydrogeology (Burton et al., 2002; Koh et al., 2007, 2006; Plummer et al., 2001; Solomon et al., 2010). It is strictly valid only when cumulative mixing with different concentration values along the flow line and in the sampling zone is limited enough so that information carried by the tracer concentrations travels unaltered. If these assumptions may be respected upstream where flow lines diverge, they will likely fail downstream and especially at the discharge zones of the aquifer where flow lines strongly converge.

Another model has been proposed based on the assumption of full mixing either within the volume sampled by the flow lines converging to the discharge location or at the discharge location itself. In this case, the residence time distribution is no longer a Dirac and the mean residence time t_E is directly given by the aquifer volume divided by the recharge flow. Simply resulting from the complete mixing assumption as in reactor and blender theory (Danckwerts, 1953; Kaufman and Libby, 1954), the residence time distribution follows an exponential function:

$$p(t) = \frac{1}{t_E} e^{-\frac{t}{t_E}}, \tag{4}$$

leading to the well-known exponential model (Eriksson, 1958; Kaufman and Libby, 1954). Beyond this initial comparison to a well-mixed reactor, the exponential model has been formally derived for homogeneous aquifers under uniform recharge (Gelhar and Wilson, 1974; Lerner and Papatolios, 1993). Under the additional assumption of convergent flows to a single well, the mean residence time is equal to the aquifer porosity φ times the aquifer thickness H divided by the recharge rate per surface area, R (Haitjema, 1995):

$$t_E = \frac{\varphi H}{R}. \tag{5}$$

Multiplying numerator and denominator of this ratio by the contributing surface of the aquifer given by the radius of influence of the well, the mean residence time resumes to the volume of the aquifer divided by the recharge flow. The demonstration recalled in Appendix A is instructive as it shows why neither the mean residence time nor the residence time distribution depend on the flow rate pumped at the well (Haitjema, 1995). In steady-state, two different pumping rates give the same residence time distribution as increasing the flow rate has the opposite effect of enlarging the contributing area and speeding up the circulations. Eq. (A16) shows that both effects exactly compensate in the formulation of the residence time distribution.

The previous discussion highlights the different effects of mixing in the piston-flow and exponential models. Mixing is a curse to piston-flow models as it alters information carried by the concentration. The sampling methodology and characteristic size become then key controlling parameters (Bethke and Johnson, 2002; Goode, 1996; Haggerty and Gorelick, 1995; Varni and Carrera, 1998; Weissmann et al., 2002). Mixing is however not a problem for the exponential models as only global aquifer properties are concerned. It might even be an advantage by enlarging the sampled volume.

Although based on different assumptions, the piston-flow and exponential models lead respectively to the transit time and the mean residence time given by Eqs. (3) and (5). These expressions are similar in the sense that they both depend on a structural aquifer parameter and on a seepage velocity, consistently with a simple dimensional analysis. The structural aquifer parameter is the distance to the recharge area in the piston-flow model and the aquifer thickness in the exponential model. The seepage velocity is local to the flow line in the piston-flow model and global to the aquifer in the exponential model. This shows that the choice between the end-member piston-flow and exponential models is dictated by the upstream or downstream position of the sampling zone. When the sampling zone is located upstream where flow lines are diverging, the piston-flow model will be the most relevant of these two simplified models. Downstream, where flow lines converge, the exponential model is more appropriate.

Environmental tracer concentrations as well as hydraulic data are generally located downstream where groundwater either outcrops or is exploited. In such cases, the more appropriate approach of the two is provided by the exponential model. Several studies have questioned its potential use in more complex hydrogeological settings and especially when introducing either more complex aquifer structure or hydraulic heterogeneities. Concerning the effect of aquifer structure, Etcheverry (2001) studied analytically the case of a 2D homogeneous aquifer with a flat topography, a

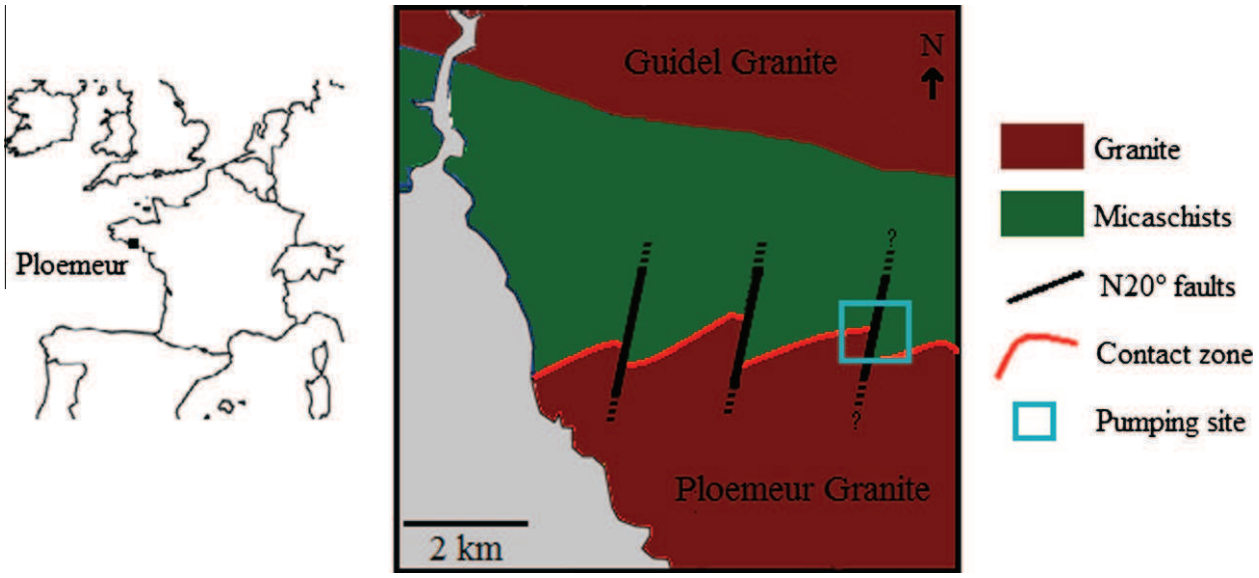


Fig. 1. Left: situation map of the Plœmeur site. Right: schematic geological context of the Plœmeur site, adapted from Ruelleu et al. (2010). The contact zone (in red) between the intruding granite and the overlying micaschists dips 30° North at surface. The deformation in the Ploemeur granite strongly increases close to the contact zone. Locally, the contact zone is affected by North 20° normal faults.

sloping substratum and a uniform recharge rate. With the aquifer thickness varying linearly from b_0 upstream to b_L downstream at the discharge zone and under the assumption of Dupuits–Forchheimer, the distribution of residence time is given by:

$$p(t) = \frac{R}{\varphi(b_L - b_0)} \frac{X}{1+X}, \tag{6}$$

where R is the recharge, φ is the porosity and X is given by the solution of:

$$Xe^X = \frac{b_L - b_0}{b_0} e^{\frac{-Rt}{\varphi b_0} + \frac{b_L - b_0}{b_0}}. \tag{7}$$

The derivation of the residence time distribution (Eqs. (6) and (7)) is presented in Appendix B. For b_0 tending to b_L, the aquifer thickness is constant and the exponential model is recovered. In other cases, the residence time distribution deviates from the exponential model. For an aquifer thicker upstream ($b_0 > b_L$), the shorter circulation paths downstream let the probability of the shorter residence times increase. Alternatively, for an aquifer thicker downstream ($b_0 < b_L$), velocity becomes smaller downstream and the residence time distribution is shifted to larger values.

Concerning heterogeneities, Luther and Haitjema (1998) showed that the exponential model remains valid when porosity φ, recharge rate R and aquifer thickness H vary in a piecewise constant fashion as long as the ratio $\frac{\varphi H}{R}$ remains uniform throughout the aquifer. It is also valid for limited random heterogeneities of the aquifer parameters. However, for a stratified aquifer with transmissivities distributed over less than one order of magnitude and large enough strata, the residence time distribution significantly deviates from the exponential distribution (Luther and Haitjema, 1998). The residence time distribution appears thus to be sensitive to the aquifer structure as well as to hydraulic heterogeneities in layered cases. In the following sections of this article, we will study the effect of both the aquifer structure and the hydraulic heterogeneity.

By modifying significantly the residence time distribution, heterogeneity may strongly influence the choice of the most relevant framework. While the recharge rate has been commonly calibrated using environmental tracers in shallow homogeneous media (Busenberg and Plummer, 1992; Cook and Solomon, 1995; Robertson and Cherry, 1989), the method fails in fractured porous media because of the sharp increase of residence times due to the diffusion of tracer into the matrix (Cook et al., 2005; Neretnieks, 1981). Framing it in the context of aquifer and aquitard instead of fracture and matrix, Haggerty and Gorelick (1995) and then Bethke and Johnson (2002) showed that the mean residence time is a function of the whole volume of the aquifer and aquitard and not of the hydraulic properties of both the aquifer and the aquitard. This debate also highlights that tracer age information, as an approximation of the residence time distribution and of the mean residence time, cannot solely calibrate both the recharge rate and the aquifer volume. It is also clear that only one equation (Eq. (3) in the case of a piston-flow and Eq. (5) in the case of an exponential model) cannot fix two parameters. Environmental tracers should thus be used jointly with other data to obtain both structural and hydraulic aquifer properties as will be investigated in Section 5.

Table 1
Synthesis of observations at the Plœmeur site and associated range of values. All vertical positions are expressed in meters above sea level.

	Range	Units
Large scale transmissivity T_{eq} (Le Borgne et al., 2006)	$2.5 \times 10^{-3} \pm 5 \times 10^{-4}$	m^2/s
Potential recharge R (1960–2008)	200	mm/year
Pumping rate Q_W	3.32×10^{-2}	m^3/s
Mean water level in the pumping well h_{Wo}	-2.5 ± 2.5	m
CFC-12 age at the pumping well	30 ± 2	Years
CFC-113 age at the pumping well	26 ± 2	Years
CFC-11 age at the pumping well	45 ± 2	Years
SF_6 age at the pumping well	Contaminated	

3. Hydrogeological setting

The Plœmeur aquifer is a hard-rock aquifer located on the south coast of Brittany near the city of Lorient (France) (Fig. 1)[1]. This surprisingly productive hard-rock aquifer is exploited at a rate of 1.1

[1] For interpretation of color in Figs. 1,2,4–6, and 8–11, the reader is referred to the web version of this article.

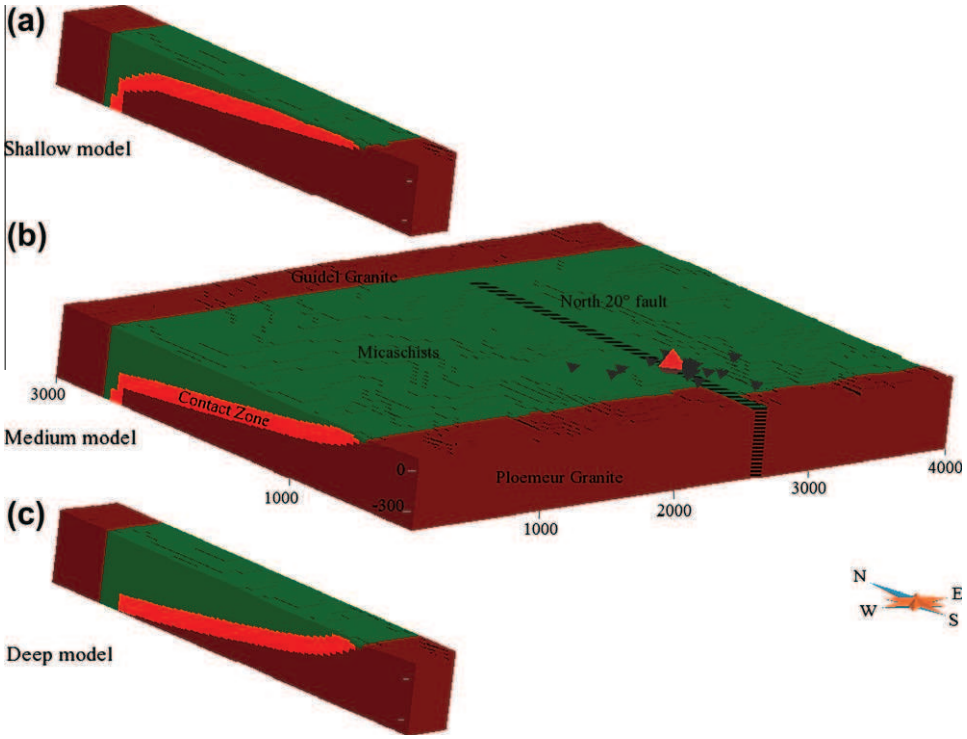


Fig. 2. (a) Slice of the shallow conceptual model of Plœmeur; (b) complete 3D diagram of the hydrogeological conceptual model. The North 20° dextral normal fault is underlined by black stripes. It almost reaches the Guidel granite in the North and penetrates the Plœmeur Granite in the South. The black symbols identify piezometers while the red triangle locates the pumping well; (c) slice of the deep conceptual model of Plœmeur. As a convention, all vertical positions are given in meters above sea level. Positions are negative below the sea level and positive above.

million cubic meters per year since 1991. It provides fresh water for the nearby Plœmeur town counting around 20,000 inhabitants and offers an alternative of good quality to the available surface water contaminated by nitrate (Tarits et al., 2006). This outstanding aquifer is monitored by the Environmental Research Observatory H+ (http://hplus.ore.fr/), which ensures hydrological, hydrochemical and geophysical monitoring since 2002. The hydrogeological data are available in the database of the Environmental Research Observatory H+ (de Dreuzy et al., 2006). The data used for this study are synthesized in Table 1. Tracer age data originate from a broader range of hydro-geochemical survey in hard-rock aquifers (Ayraud et al., 2008). Except for a gravimetric survey and the regional geological map, most of the data including hydraulic tests, piezometry, geophysics, geochemistry and groundwater dating that are located in the hydrological basin are concentrated around the pumping installation (Fig. 2) (Le Borgne et al., 2004, 2006). The dense grid of wells drilled locally both for groundwater exploration and site characterization does not directly disclose the global circulation picture as it is often the case in exploited groundwater resources. We successively present the general geological structure and the available hydrogeological data.

3.1. Geological structure

The pumping site is located at the intersection of two main discontinuities (Fig. 1). The first one is the contact zone between the Plœmeur granite—a leucogranite developed during the Hercynian orogeny—and the overlying micaschists (Horrenberger et al., 1972; Touchard, 1999). The second one is a fifty meters wide fault zone steeply dipping and striking North 20 (Touchard, 1999). Productive boreholes are always either intersecting the contact zone or this striking North 20° fault zone. Other boreholes are either non productive or poorly connected to the pumping zone. Weathered rocks around the pumping site remain very shallow with a thickness always smaller than 30 m.

The contact zone identified as the main aquifer structure (Le Borgne et al., 2006; Ruelleu et al., 2010; Touchard, 1999) corresponds to the roof of the Ploemeur syn-tectonic granite where deformation increases. Cores and drill cuttings show that this zone is relatively thick and characterized by the superposition of micaschist enclaves with granitic dykes and pegmatites. Lithologies encountered in this ensemble are very variable with a high degree of fracturing and the presence of mylonites. The thickness of the contact, partly characterized by well logs and drilling reports, is evaluated at some tens of meters reaching more than one hundred of meters at some points.

One of the main unknowns of the setting is the profile of the contact zone. Outcrops and borehole observations show that the contact dips moderately to the north around 30° at least around the pumping station where boreholes have been drilled. Inversion of gravimetric data suggests a decrease of the dipping angle of the contact zone and a stabilization between 200 m and 400 m at 2 km from the Plœmeur granite before dipping quasi vertically (Ruelleu et al., 2010). This contact zone is supposed to be the main permeable structure that drains the whole aquifer (Ruelleu et al., 2010).

3.2. Hydraulic properties and recharge estimates

Air lift flows measured during borehole drilling in 1991 first evidenced the existence of four main hydrogeological units: the granite, the micaschists, the contact zone and a North 20° fault zone. All boreholes drilled in the granites were found unproductive. Sparsely fractured, the micaschists appear more permeable but are still poorly productive. In fact, the only productive boreholes were found along the contact zone and along the North 20° fault

(Touchard, 1999), with some larger productivity in the contact zone. Further, Le Borgne et al. (2006) interpreted a series of flow experiments to characterize transmissivities at different time scales, including long-term hydraulic tests that reveal a well defined site transmissivity of 2.5×10^{-3} m/s at the kilometer scale (Table 1). The North 20° fault is less transmissive than the contact zone by a factor of around 2 (Table 1).

Porosity was analyzed on well cores by the triple-weight method (Belghoul, 2007) and by the helium pycnometer method (Boschero, unpublished) resulting in values in the intervals [2%, 4%] and [3%, 6%] respectively (Table 2). Lower values were found in general for non-weathered granite samples while larger values were obtained for weathered micaschists. Note that some porosity at the macroscopic scale may be also due to the existence of numerous fractures also evidenced by borehole TV imaging.

Mean annual precipitations amount to 850 mm per year according to MeteoFrance measurements between 1960 and 2008. We estimated evapotranspiration using Thornthwaite water balance (Thornthwaite, 1948) to a mean value of 500 mm per year. Effective precipitations are then expected to amount to 350 mm per year. Seepage on the site is evidenced by a disconnected river, whose flow rate measured by a gauging station corresponds to an estimated overall runoff of 150 mm per year. Potential recharge rate is consequently set at a value of 200 mm per year (Table 1) consistently with previous studies (Carn, 1990; Touchard, 1999). Without any additional information, we assume in the following the potential recharge to be uniform over the site. Note that these annual pumping and recharge rates require the supplying surface to be at least 5.5 square kilometers. We thus expect a strong impact of the pumping in this heterogeneous crystalline aquifer.

The pumping site has been originally located very close to a wet land. Pumping rapidly dried out the wet land. After an initial drop due to the start of pumping in 1991, groundwater levels have stabilized since 1997 at a level of a few meters below sea level in the vicinity of the three pumping wells located within a few tens of meters (Table 1). Around the pumping wells, the piezometric levels rapidly increase to a few meters above sea level but remains largely below ground surface all over the pumping site. The range of h_W (between 0 and −5 m) takes into account the differences between the wells and the measurement uncertainties. As a convention, all vertical positions are given in meters above sea level. Positions are negative below sea level and positive above.

3.3. Tracer age

CFC-11, CFC-12, CFC-113 and SF_6 have been measured since 2003 in more than 20 piezometers on the pumping site. Their concentrations are presented in terms of apparent ages of tracers (Eq. (19)). Globally, tracer ages in Plœmeur site increase to the pumping well because of tracer "aging" along flow lines and because pumping enhances the mixing with deeper waters. Tracer ages however do not exhibit marked evolutions with time.

Data analysis shows that SF_6 gives quasi systematically much lower ages than chlorofluorocarbons all over the site. At the pumping well, SF_6 concentrations are even higher than modern atmospheric concentrations (Table 1) demonstrating the occurrence of geogenic production, as already observed on other sites in granitic contexts (Busenberg and Plummer, 2000; Koh et al., 2007). CFC-12 and CFC-113 give similar ages, respectively 30 years and 26 years (Table 1). CFC-11 age of 45 years is higher than CFC-12 and CFC-113 ages (Table 1). Uncertainty of tracer age values comes from both analytical and sampling uncertainties of concentration measurement and is approximated to a maximum of 2 years. Differences between ages may originate from reactivity and production processes as well as from the mixing induced by the hydrodynamic dispersion and the sampling conditions at the pumping station. This point will be addressed in Section 5.2.1.

Table 2
Synthesis of parameters of the conceptual models and associated range of values. All vertical positions are expressed in meters above sea level.

	Range	Units
Hydraulic conductivities K		
Granites K_G	$<10^{-11}$	m/s
Micaschists K_{MS}	10^{-7}–5×10^{-6}	m/s
Transmissivities T		
Contact zone T_{CZ}	10^{-5}–10^{-1}	m^2/s
Ratio of T_{CZ} to North 20° fault transmissivity T_{F20}	2	–
Porosity φ		
Triple weight method (Belghoul, 2007)	2–4	%
Helium pycnometer method (Boschero, unpublished)	3–6	%
System structure		
Mean thickness H_{tot} (Ruelleu et al., 2010)	178–282	m

4. Hydrogeological, flow and transport models

4.1. Hydrogeological model

The conceptual hydrogeological model is composed of the two transmissive structures, the contact zone and the North 20° fault, to which are added the Plœmeur and Guidel granites and the overlying micaschists (Fig. 2). Because of their relative scarcity and the absence of quantitative observations, weathered rocks have been given the hydraulic properties of the underlying micaschists. To account for the structural uncertainty about the contact zone, we have built three structural models (shallow, medium, deep) differing by the profile of the contact zone and thus by the mean thickness of the aquifer (Table 3 and Fig. 2). For the sake of comparison, we use two reference homogeneous models with the same uniform hydraulic conductivity for the contact zone, fault zone and micaschists. The two homogeneous models differ from the shape of their substratum either flat or dipping to the north and are referred to as flat and dipping homogeneous models. The flat homogeneous model is characterized by a constant thickness, a homogeneous recharge and a homogeneous porosity throughout the domain. Under the additional assumption of full mixing at the sampling well, the residence time distribution and the mean residence time are given by the exponential model (Eqs. (A17) and (A18)). The dipping model is conceptually close to the model of Etcheverry (2001) (Eqs. (6) and (7)).

According to site observations, the hydraulic conductivity of micaschists K_{MS} is estimated in the interval $[10^{-7}$ m/s, 5×10^{-6} m/s]. Long-term hydraulic tests provide a hydraulic transmissivity at the kilometer scale. At this point, we cannot associate this value to the main transmissive structure, the contact zone. The transmissivity of this structure, T_{CZ}, is then explored between 10^{-5} m^2/s and 10^{-1} m^2/s. However, results of Section 5.1 show that T_{CZ} should be larger than 2×10^{-3} m^2/s to prevent dewatering of the pump. Transmissivity of the North 20° fault T_{F20} is estimated as half of that of the contact zone transmissivity T_{CZ}. Because they appear to be highly impervious, hydraulic conductivity of the granites K_G is set at a low value of 10^{-11} m/s. Without any additional information on its variability, porosity is assumed homogeneous within the interval [2%, 6%]. All hydraulic properties are recalled in Table 2.

The size of the modeled domain has been set to 460 m in the vertical direction, 4000 m in the West–East direction and 3000 m in the South–North direction (Fig. 2). The domain has been chosen

Table 3
Structural characteristics of the conceptual models. Mean thickness H_{tot} is obtained from the bottom of the contact zone to the mean elevation of soil and encompasses contact zone constant thickness and micaschists variable thickness.

		Acronym	Model type	Mean thickness H_{tot} (m)
Homogeneous models	With flat substratum	HomoFlat	Analytical	178
	With dipping substratum	HomoDipping	Numerical	178
Heterogeneous models	With dipping substratum	Shallow	Numerical	178
		Medium	Numerical	229
		Deep	Numerical	282

large enough to encompass the closest groundwater divides so that the West and East boundary conditions are of limited impact. On the South and North limits, the almost impervious granites constitute no-flow boundary conditions.

The regular mesh generated has been checked to respect the connectivity of the identified hydrogeological structures. Discretization consists in 115 cells of 4 m along the vertical direction, 80 cells of 50 m in the West–East direction and 60 cells of 50 m in the South–North direction. The total number of cells reaches 552,000. The contact zone is modeled by a layer of fixed thickness (100 m) with a permeability directly derived from the targeted transmissivity. The three pumping wells are located in the same mesh cell and pumping is thus concentrated at the center of the cell.

4.2. Flow model

The 3D diffusivity equation for hydraulic head $h(\boldsymbol{x})$ with free surface boundary conditions is solved at steady-state:

$$\nabla \cdot (K(\boldsymbol{x})\nabla h(\boldsymbol{x})) = Q_W \delta(\boldsymbol{x}_W), \tag{8}$$

$$\begin{cases} K\nabla h(\boldsymbol{x}) \cdot n = -R \;\&\; h(\boldsymbol{x}) = z \text{ where } h < z_{ground} \\ h = z_{ground} \qquad\qquad \text{elsewhere} \end{cases}, \tag{9}$$

$$\nabla h(\boldsymbol{x}) \cdot \boldsymbol{n} = 0 \quad \text{on} \Gamma_{west} \text{ and } \Gamma_{east}, \tag{10}$$

$$h(\boldsymbol{x}) = z_{ground} - z_0 \quad \text{on } \Gamma_{north} \text{ and } \Gamma_{south}, \tag{11}$$

where $K(\boldsymbol{x})$ is the hydraulic conductivity, Q_W is the pumping rate located at x_w and referenced in Table 1, Γ_{west}, Γ_{east}, Γ_{north}, Γ_{south}, are respectively the West, East, North and South sides of the domain, $\boldsymbol{n}$ is the outgoing normal to the saturated domain, R is the potential recharge rate, z_0 is a reference height and z_{ground} is the ground surface elevation.

Eq. (8) is solved in unconfined conditions since seepage conditions are *a priori* not known. Both conditions from Eq. (9) are imposed at the free surface boundary to satisfy unconfined conditions. When the free surface level is below the ground surface level z_{ground}, flow normal to the free surface boundary equals the potential recharge rate R; elsewhere, the free surface level is set at the ground surface level and recharge rate continuously evolves from negative values in the discharge zone to potential recharge rate R. Eq. (8) is solved with the sink term Q_W of 3.36×10^{-2} m^3/s at the pumping station x_w that corresponds to the million cubic meters extracted every year at Ploemeur site. No-flow conditions are applied on the West and East boundaries (Eq. (10)) since the domain is large enough to encompass watershed divides. Imposed heads, set at depth z_0 (5 m below the ground surface level), are applied to the South and the North boundaries (Eq. (11)). Imposed head values do not play any role because the granites of very low permeability impose effectively no flow conditions. This way of imposing boundary conditions ensures the existence of at least one Dirichlet condition that keeps the subsequent linear system defined (Beaudoin et al., 2006). The system of equations is solved using a computationally effective finite volume approach with a local adaptation scheme (Bresciani et al., 2011).

4.3. Transport model

Environmental tracers are transported by advection, dispersion and diffusion processes. Advection–dispersion equation is solved in backward time (Neupauer and Wilson, 1999, 2001), as backward-time methods are more adapted to identify recharge areas and residence time distribution at a pumping well:

$$\begin{aligned} &-\frac{\partial \varphi \psi^*(\boldsymbol{x},t)}{\partial t} + \nabla.(\varphi \overline{\overline{D}} \nabla \psi^*(\boldsymbol{x},t)) + \nabla.(\varphi \boldsymbol{v}(\boldsymbol{x})\psi^*(\boldsymbol{x},t)) \\ &+ \delta(x_D)\delta(t) \\ &= 0, \end{aligned} \tag{12}$$

$$\psi^*(\boldsymbol{x}, t = 0) = 0, \tag{13}$$

$$\psi^*(\boldsymbol{x}, t) = 0 \text{ on } \Gamma_1, \tag{14}$$

$$(\overline{\overline{D}} \nabla \psi^*(\boldsymbol{x}, t) + \boldsymbol{v}\psi^*(\boldsymbol{x}, t)) \cdot \boldsymbol{n} = 0 \text{ on } \Gamma_2, \tag{15}$$

$$(\overline{\overline{D}} \nabla \psi^*(\boldsymbol{x}, t)) \cdot \boldsymbol{n} = 0 \text{ on } \Gamma_3, \tag{16}$$

with $\psi*(\boldsymbol{x}, t)$ the adjoint-state at a position $\boldsymbol{x}$ and a backward time t, $\boldsymbol{x}_D$ the detection point (here, the pumping well), $\boldsymbol{v}(\boldsymbol{x})$ the Darcy's velocity and φ the effective porosity. Eq. (12) is the adjoint of the advection–dispersion equation. Here we neglect local dispersion and diffusion ($\overline{\overline{D}} = 0$) as we expect much smaller effect on tracer age compared to the mixing occurring at the pumping station (LaBolle and Fogg, 2001). Eq. (13) is the initial condition in backward time. Eqs. (14)–(16) are the boundary conditions that correspond respectively to a first-type boundary (Γ_1), a second-type boundary (Γ_2) and a third-type boundary (Γ_3) of the forward equation. The travel time probability $p(\boldsymbol{x}_D, \boldsymbol{x}, t)$ is the probability that a parcel of water detected at $\boldsymbol{x}_D$ was located at any source location $\boldsymbol{x}$ at backward time t. As sampling is performed at a pumping well, it is related to the flux of the adjoint-state:

$$p(\boldsymbol{x}_D, \boldsymbol{x}, t) = |v(x)|A(x)\varphi\psi^*(\boldsymbol{x}, t), \tag{17}$$

with $|v(\boldsymbol{x})|$ the magnitude of flow at position $\boldsymbol{x}$ and $A(\boldsymbol{x})$ the flow area. The travel time probability unit is the inverse of time. The adjoint-state unit is the inverse of volume. For convenience, we write the backward time probability $p(\boldsymbol{x}_D, \boldsymbol{x}, t)$ in the simpler form $p(t)$.

$p(t)$ is the distribution of residence time of water that travels from any location at the surface to the pumping well. Mean concentration C_D at the detection zone is then determined by the convolution of $p(t)$ with the atmospheric chronicle C_{in} $(t_D–t)$ (Kreft and Zuber, 1978; Maloszewski and Zuber, 1982):

$$C_D = \int_0^\infty C_{in}(t_D - t)p(t)dt. \tag{18}$$

Fig. 3 shows the time evolution of C_{in} for CFC-11, CFC-12, CFC-113 and SF_6 in the Northern Hemisphere atmosphere (IAEA, 2006). CFCs

exhibit an increasing atmospheric concentration since the late 1940s that stabilizes at mid-1990s. SF_6 is monotonically increasing since the late 1950s.

Apparent age A of the tracer at the location x_D and time t_D is then obtained from the difference between the detection time and the time at which concentration C_D equals atmospheric concentration:

$$A = t_D - C_{in}^{-1}(C_D). \quad (19)$$

Eqs. (18) and (19) raise three questionings. First, the age A obtained from a tracer is a transformation of the concentration measured at the sampling point. It is sensitive to the full distribution of residence times and not only to the mean residence time (often also called groundwater age). Moreover, while it is sensitive to the mean residence time, there is no reason for them to be close together. The tracer age is thus also called apparent age, in reference to the bias that comes from the atmospheric chronicle. Tracer age is not linked to simple quantities resulting from the transport equations, except for an unstable ideal tracer for which the concentration is the Laplace transform of the distribution of groundwater age, with the Laplace variable equal to the decay rate of the tracer (Massoudieh and Ginn, 2011). Second, the atmospheric chronicle acts as a weighting function for the residence time distribution (Eq. (18)). Thereby, we expect differences between tracers ages that are due to the full slope of their atmospheric chronicles within the range of residence times. Third, uniqueness issues may emerge from the translation of the mean concentration to the apparent age (Eq. (19)) because of the flattening of the atmospheric chronicle of CFCs in recent years (Fig. 3). As for convoluting the residence time distribution with the atmospheric chronicle (Eq. (18)), there is no uniqueness issue. In the particular case of Ploemeur aquifer, since the apparent ages measured at the site (Section 3.3) are higher than 20 years, we are not affected by the flat sections when transforming the mean concentration into the apparent age. However, we agree that for apparent ages lower than 15–20 years, uncertainty increases as a result of the flattening of the atmospheric chronicle and then uniqueness becomes debatable.

To solve the transport equation, we used a particle tracking approach adapted to the unconfined conditions (de Dreuzy et al., 2007; Kinzelbach, 1988). We injected particles proportionally to flow at the detection zone and tracked them to the aquifer free surface. The number of injected particles N ($5\ 10^6$) is determined through a convergence test of the first and second concentration moments. The particle residence times t_i give the residence time distribution and the associated atmospheric concentrations $C(t_i)$ necessary to compute the convolution product discretized from Eq. (18) and resulting in C_D:

$$C_D = \frac{\sum_{i=1}^{N} C(t_i)}{N}. \quad (20)$$

Flow and transport simulations through free surface conditions were carried out using the H2OLAB platform (Bresciani et al., 2011; Erhel et al., 2008, 2009).

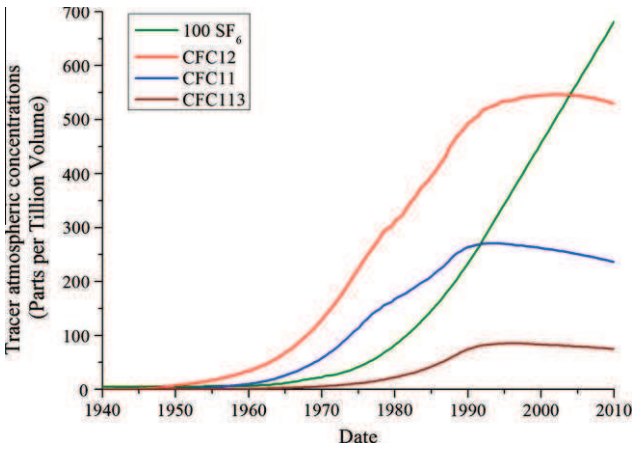


Fig. 3. Atmospheric concentrations of CFC-11, CFC-12, CFC-113 and 100. SF_6 for the Northern Hemisphere atmosphere (IAEA, 2006).

5. Results

We perform the manual calibration of the aquifer properties to the available head and tracer age data at the pumping location by systematically determining the sensitivity of head and tracer age to the aquifer structure, hydraulic conductivities and porosities. We follow the same methodology in three steps for head and age data in Sections 5.1 and 5.2. We first perform the sensitivity analysis, second use it to calibrate aquifer parameters and third deduce the information content of the type of data. We have chosen this exhaustive type of parameter study in order to get extensive insights on the information contained in head and tracer age. An automatic calibration method would have led to highly accurate but partial results. We note that the exhaustive sampling is only possible because of the very limited number of parameters (T_{CZ}, K_{MS}, H_{tot} and φ). The similarity in the organization of Sections 5.1 and 5.2 will be solely interrupted by a preliminary analysis of the dispersion of ages among the different CFCs and SF_6 (Section 5.2.1) designed to determine a well-defined target for calibration.

5.1. Head data

In this section, we seek for a calibration of the mean head h_W at the pumping well from the contact zone transmissivity T_{CZ}, the micaschists conductivity K_{MS} and the aquitard thickness H_{tot}. We perform the manual calibration by deriving systematically h_W as a function of T_{CZ} and K_{MS} from the flow simulations described in Section 4.1.

5.1.1. Sensitivity analysis of the head at the well (h_W) to the aquifer parameters T_{CZ}, K_{MS} and H_{tot}

Whatever the values of T_{CZ} and K_{MS} in their possible range (Table 2), the water table of the aquifer is mostly below the topography and only outcrops in the lowest topographical zones (Fig. 4). The supplying area of the pumping well is limited by the almost impervious North and South granites. Within these limits, the overall absence of seepage in the central zone shows that recharge is fixed at its potential value (200 mm) and that it is solely controlled by surface processes and not by geological features. Discharge of the aquifer occurs through the pumping station and the lowest topographical zones corresponding to rivers. Steady-state simulations show that rivers are rather alimented by groundwater than groundwater recharged by rivers. As observed on the site, seepage no longer occurs in the pumping zone, formerly a wet land dried out by the long term pumping.

Water level at the pumping station h_W is at the lowest in the site showing, as expected, that the pumping station has become the main discharge feature of the whole aquifer (Fig. 5). To a large extent, it displays a much greater sensitivity to the transmissivity of the contact zone T_{CZ} than to the conductivity of the micaschists K_{MS} (Fig. 6). Close to the observed piezometric level, iso-values of the piezometric level are close to horizontal lines and a variation of h_W of 2.5 m corresponds either to a variation of T_{CZ} by 20% or to a variation of K_{MS} by almost 2 orders of magnitude.

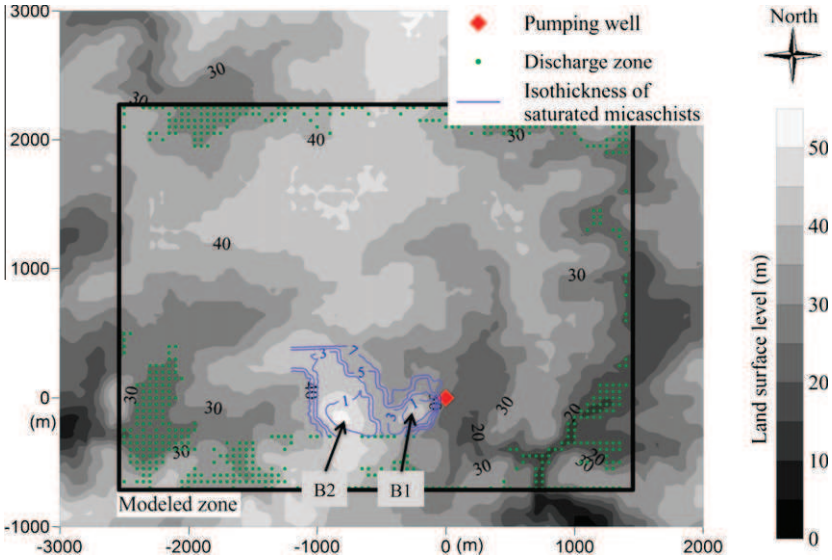


Fig. 4. Discharge zones overlaid on the topography of the modeled zone. Green dots are located at the center of the mesh cells where discharge occurs. The thick black frame identifies the limits of the modeled zone and the red lozenge is located at the pumping station. Topography is given in meters above sea level. Marks B1 and B2 identify two local topographical hills that translate to two local minima in the thickness of the saturated micaschists.

Table 4 confirms that the calibrated value of the contact zone transmissivity T_{CZ} is relatively insensitive to the overlying micaschists conductivity K_{MS}.

Table 4 also shows that when varying the micaschists thickness, T_{CZ} is hardly modified whatever the order of magnitude of K_{MS}.

5.1.2. Manual calibration of aquifer parameters on h_W

h_W is thus only highly sensitive to T_{CZ}. In fact, Fig. 6 is a log-lin contour map in $T_{CZ} - h_W$ showing that a very small variation of T_{CZ} strongly alters h_W. Conversely, uncertainties on the observed piezometric level induced by well artifacts such as skin effects will have a minimal impact on calibration. T_{CZ} is determined very accurately for the different aquifer structural models and remains within a narrow range $[1.9 \times 10^{-3}\ m^2/s,\ 3 \times 10^{-3}\ m^2/s]$ (Table 4 and Fig. 6) that closely matches the equivalent site transmissivity T_{eq} obtained by Le Borgne et al. (2006) (Table 1). The close ranges of T_{CZ} and T_{eq} reinforce the consistency of the model with the site observations and confirm the hydrogeological features disclosed by the flow model.

5.1.3. Information content of h_w

Within the range of micaschists hydraulic conductivity K_{MS} considered and whatever their thickness directly impacting H_{tot}, flows in the supplying area of the well are thus determined by the transmissivity of the contact zone T_{CZ} (Fig. 6) and recharge is on overall controlled by surface and near-surface processes rather than by geological features. Among the various implications of these results, we argue that recharge and its uncertainty can be at best calibrated by surface and near-surface observations. On the modeling side, recharge can be taken at its potential value and T_{CZ} at its calibrated value (Table 1). This demonstrates that the piezometric level at the pumping station does neither depend on K_{MS} nor on the overlying micaschists thickness. We expect however a stronger influence of the micaschists on tracer ages.

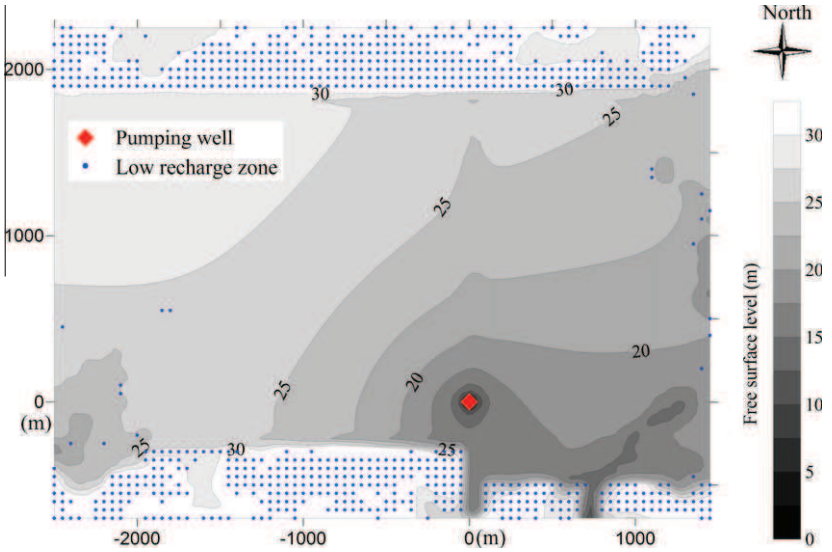


Fig. 5. Free surface level in the modeled zone (Fig. 4). Above Guidel and Plœmeur granites, the free surface level of the aquifer reaches soil surface and recharge rate is smaller than its potential value. Blue dots are located at the center of the mesh cells where low recharge rates occur. The red lozenge is located at the pumping station.

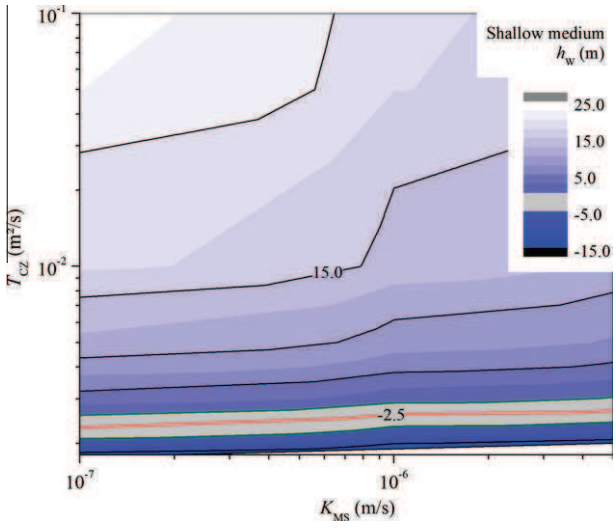


Fig. 6. Iso-piezometric levels as function of contact zone transmissivity T_{CZ} and micaschists hydraulic conductivity K_{MS} for the shallow model. The red and green lines identify the mean head observed in Plœmeur and its associated variability. Black lines are regularly spaced by 5 m.

Table 4
Calibration of bulk transmissivity T for the homogeneous models and of the contact zone transmissivity T_{CZ} for the heterogeneous models. Calibration is achieved by fitting head value at the pumping station to h_{Wo}. Here, h_{Wo} is set at −5 masl—the lower limit of its acceptable range. Calibration of T_{eq} in case of HomoFlat model is achieved using Eq. (A7).

		Aquifer transmissivity (10^{-3} m²/s)		
Homogeneous models T	HomoFlat	1.7		
	HomoDipping	3		
Heterogeneous models T_{CZ}		K_{MS} (m/s)		
		10^{-7}	10^{-6}	5×10^{-6}
	Shallow	2.05	2.27	2.39
	Medium	1.92	2.08	2.17
	Deep	2.15	2.19	2.2

5.2. Tracer age data

Given that the transmissivity of the contact zone is fully specified by the piezometric level measured at the pumping station, tracers ages measured at the same location will be used to calibrate some of the remaining parameters (the micaschists hydraulic conductivity, the porosity and the structure of the aquifer). Using the simulation methods described in Section 4.3, we seek for the relation between these parameters and the ages as determined by CFCs and SF_6 tracers. As in the previous section, we use this sensitivity analysis (Section 5.2.2) to calibrate aquifer parameters (Section 5.2.3) and deduce the information content of tracers ages (Section 5.2.3).

Even if CFCs concentrations are the effectively measured quantities, all results are displayed in terms of tracer ages rather than in concentrations to ensure a better readability. It is just a convenience for an illustrative purpose which does not imply in any way the use of piston-flow distribution (Eq. (2)). We also underline that age is not a uniquely defined quantity as there are as many ages as tracers. Thus, we first compare the ages obtained from the different CFCs and SF_6 to determine whether the CFCs and SF_6 contain redundant or different information.

5.2.1. Dispersion of CFCs and SF_6 ages

Tracer ages do not only depend on the time range of tracer presence in the atmosphere but also on their atmospheric chronicles (Fig. 3 and Eq. (18)). Thereby, ages measured by the different CFCs and SF_6 might not be equal. The two questions consequently raised are: how much do the tracer ages obtained from the CFCs and SF_6 differ and is it possible to get more than just one piece of information from the possible age dispersion?

Fig. 7 displays the tracer age derived from the concentrations in CFC-113, CFC-11 and SF_6 against CFC-12 age for all heterogeneous models of Table 3. These results can fundamentally be related to the atmospheric chronicles of the CFCs and SF_6 (Fig. 3 and Eq. (18)). CFC-11 and CFC-12 ages should be similar and close to CFC-113 ages for young waters (mean recharge date after 1990) because of the similar trends of their atmospheric chronicles. Beyond analytic limitations, CFC-113 and SF_6 ages should be similar for older waters (mean recharge date before 1975). SF_6 ages should always be smaller than CFCs.

The case of Plœmeur for which CFC-12 age is around 30 years (Table 1) corresponds to a CFC-11 age of 31 years, a CFC-113 age of 24 years and a SF_6 age of 20 years (Fig. 7). The measured CFC-113 age of 26 years closely matches the model prediction, meaning that ages determined by CFC-12 and CFC-113 are not equal but are still consistent with observations when accounting for physical transport processes and sampling conditions. However, CFC-11 and SF_6 are inconsistent with the observations whatever the values of the parameters. Regarding SF_6, it is clear that a geogenic production of SF_6 from the neighboring granites is responsible for the observed discrepancies (Aquilina et al., 2011; Busenberg and Plummer, 2000). Observed differences between CFC-11 and CFC-12 should rather be explained by possible degradation of CFC-11 under anaerobic conditions (Ayraud et al., 2008; Cook et al., 1995). Equality of ages derived from the different CFCs (CFC-11, CFC-12 and CFC-113) and SF_6 should not be taken as an indicator of absence of chemical alteration especially in discharge zones, where differences also stem from hydrodynamic mixing. Differences in ages do however not mean more information. Additional information should rather be linked to sufficient dispersion of ages for a given CFC-12 age, what is obviously not the case on the site of Ploemeur (Fig. 7). As the different tracers only give redundant information, manual calibration is solely performed on CFC-12 ages. The large time span of tracer ages [17 years, 45 years] obtained from CFC-12 shows enough sensitivity to the model parameters (K_{MS}, φ and H_{tot}) to proceed with model calibration.

5.2.2. Sensitivity analysis of the CFC-12 age at the well to the aquifer parameters K_{MS}, φ and H_{tot}

As a preprocessing step to calibration, we determine successively the CFC-12 age on the heterogeneous models calibrated for

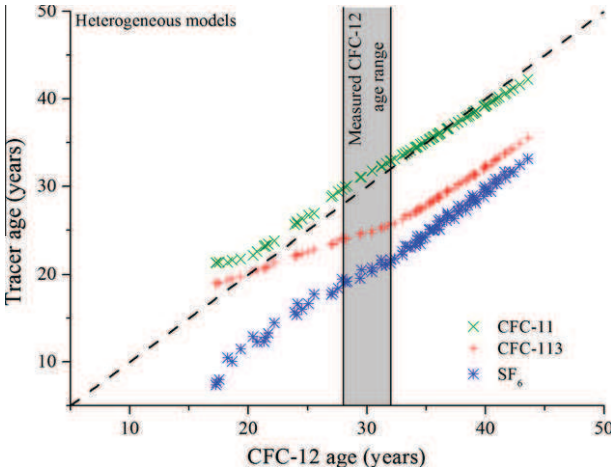


Fig. 7. CFC-11, CFC-113 and SF_6 ages versus CFC-12 age for all heterogeneous models of Table 3.

the piezometry at the pumping station as a function of the model parameters K_{MS}, φ and H_{tot}. While tested over almost two orders of magnitude, the micaschists conductivity does not have a significant impact on CFC-12 ages (Table 5, middle column). For porosity φ within the expected range of values [2%, 6%] and for K_{MS} ranging from 10^{-7} m/s to 5×10^{-6} m/s, the variation of the CFC-12 age remains smaller than 3 years. As for flow, age is relatively insensitive to K_{MS} because recharge and leakage through micaschists is mainly controlled by surface and near-surface processes. Accounting for a constant uniform recharge as derived from the hydraulic analysis of Section 5.1, we focus on the dependence of CFC-12 age with φ and H_{tot}. CFC-12 age is not straightforwardly linked to φ and H_{tot} (Fig. 8), because of the non linear chronicle of the atmospheric CFC-12 concentration as well as because of the more complex circulations structure (Table 5). Besides, φ and H_{tot} affect differently tracer age as explained by their different residence time distribution (Fig. 9). When increasing at constant depth (green to red curve in Fig. 9), effective porosity broadens the residence time distribution (e.g. peaks becomes larger) without modifying the main features of the distribution nor their relative importance. On the contrary, increasing the active thickness of the aquifer at constant porosity (green to blue curve in Fig. 9) shifts the distribution to larger residence times and changes the importance of features relative to others. Logically, both φ and H_{tot} let the CFC-12 age vary sufficiently to go on with the calibration started on the head at the pumping station (Section 5.1).

5.2.3. Manual calibration of aquifer parameters on CFC-12 age

We use the previous sensitivity analysis to calibrate the model of Plœmeur on CFC-12 age. Filtering out the recharge discussed and determined in Section 5.1, the CFC-12 age at the pumping station is a function of porosity φ and characteristic thickness H_{tot} (Fig. 8). The red line stands for the CFC-12 age of 30 years measured at the pumping station and expresses the relation between φ and H_{tot} at fixed CFC-12 age. The solution space is restricted to the grey band of Fig. 8 around a mean relation between φ and H_{tot}. We note that a shallow model is unlikely as it would require a porosity of around 6% deemed fairly improbable for the rock type of Ploemeur (Section 3.2). As already reported, this analysis is only marginally modified when varying K_{MS} (Table 5).

5.2.4. Information content of CFC-12 age

As sampling is performed at the main discharge location of the aquifer, tracer age is informative of global aquifer properties integrative of both the recharge conditions and the aquifer structure. Recharge having been previously constrained by the analysis of the head at the well, tracer age can be more efficiently used for qualifying the integrated aquifer volume. In the case of a complex aquifer like Ploemeur with a dipping substratum, the aquifer volume depends as much on the average porosity as on the varying thickness of the aquifer, a type of structural information that is generally overlooked in more classical flat sedimentary aquifers. Structural information provided by environmental tracers is complementary to other potential geophysical information that is more focused on geological features and cannot be straightforwardly transposed into hydrogeological features (Ruelleu et al., 2010).

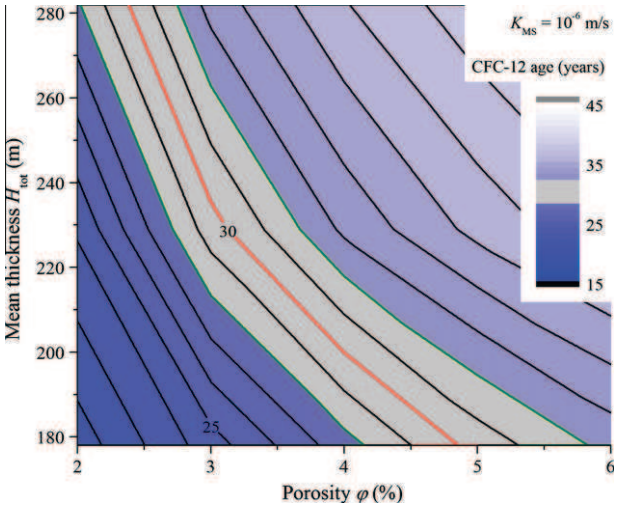


Fig. 8. Iso-CFC-12 ages as function of porosity φ and mean aquifer thickness H_{tot} for $K_{MS} = 10^{-6}$ m/s. The red and green lines identify the mean age observed in Plœmeur and its uncertainty. Lines are regularly spaced by one year.

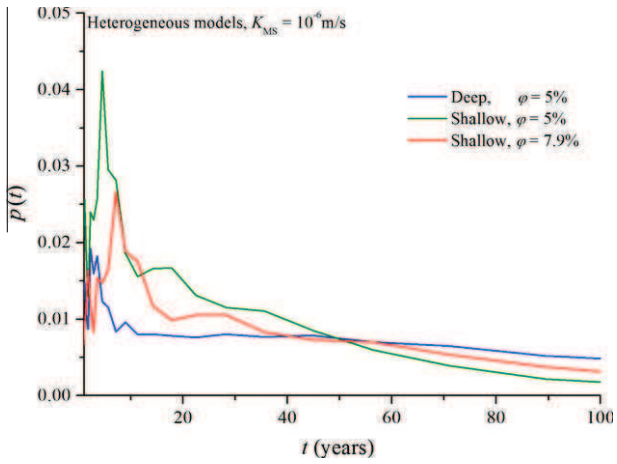


Fig. 9. Compared effect of porosity φ and structure, represented by the mean aquifer thickness H_{tot}, on the residence time distribution $p(t)$. The model of reference (blue curve) is the shallow model at $\varphi = 5\%$. It should be compared to the other shallow model at a porosity larger by a factor of 1.6 (red model) and to the deep model at the same porosity (green model). The deep model is 1.6 times deeper than the shallow model. The porosity case of 7.9%, larger than the expected maximum value, is used to underline the role of the parameters on the form of the residence time distribution.

6. Discussion

We explore the interest of using more realistic hydrogeological models for the prediction of residence time distributions. We first

Table 5
Comparison of transport characteristics for porosity of 5% and for each model. The mean residence time is computed over all particles.

		Mean residence time (years)			CFC-12 ages (years)		
Homogeneous models	HomoFlat	44			32		
	HomoDipping	801			27		
Heterogeneous models		K_{MS} (m/s)			K_{MS} (m/s)		
		10^{-7}	10^{-6}	5×10^{-6}	10^{-7}	10^{-6}	5×10^{-6}
	Shallow	210	125	70	31	30	29
	Medium	490	200	220	36	35	34
	Deep	6800	540	190	39	38	36

build homogeneous models calibrated on the head and tracer age data and then compare their predictions with those of the previous heterogeneous models. In this section, we explore a slightly larger range for porosity to broaden the debate on the conceptual models.

6.1. Calibration of different conceptual models

All analyzed models so far were heterogeneous in terms of hydraulic conductivity with a higher conductivity in the contact zone. As we have just seen that the CFC-12 age is mostly sensitive to geometrical parameters (porosity, total thickness) beyond the recharge, we investigate its dependency towards the hydraulic conductivity heterogeneity and the structure of the volume. We compare the CFC-12 ages obtained for different φ and K_{MS} in the heterogeneous case to those of the dipping and flat homogeneous models (Fig. 10). We recall that all numerical models have been separately calibrated to fit the measured head at the pumping station (Table 4). In the dipping homogeneous case, the sole parameter is the equivalent hydraulic conductivity that prevails both in the contact zone, in the fault and in the micaschists, related to the aquifer transmissivity T by mean thickness H_{tot} (Table 4). The difference between CFC-12 ages is negligible at small porosity ($\varphi = 1\%$) and progressively increases to more than 5 years for $\varphi \geqslant 5\%$. The comparison of the dipping and flat homogeneous models (green curve and blue dots curve of Fig. 10) also shows that the structure of the aquifer volume has a non negligible effect at least when porosity is not too small ($\varphi \geqslant 3\%$). The two effects of hydraulic conductivity heterogeneity and volume structure counterbalance so that CFC-12 ages from the flat homogeneous and dipping heterogeneous models are very close together. It shows that two quite different aquifer models may give close CFC-12 ages.

Considering only calibration on the CFC-12 age, the simple flat model performs as well as the complex dipping heterogeneous model. In this case, the complex aquifer structure of the heterogeneous model cannot be justified by just finding a consistent model with hydraulic head and CFC-12 age at the pumping station. We however show in the following section that the calibrated models yield significantly different residence time distributions.

6.2. Use of calibrated models for prediction

While getting additional information on aquifer properties is the primary objective of this study, the ultimate goal is to determine the interest of building a full aquifer model compared to the simpler probabilistic approach of deriving the residence time distribution from the age data (Cornaton and Perrochet, 2006). This simple alternative is especially attractive as it does not require any advanced knowledge on the aquifer system (Cornaton and Perrochet, 2007). More than the worth of the tracer age data in terms of model calibration, we now address the issue of the worth of the tracer age data in terms of prediction when used alone or within an aquifer model (Ginn, 2007; Troldborg et al., 2007).

To this end, we compare the prediction of residence time distribution obtained from the flat homogeneous model, from the dipping homogeneous model of Etcheverry (2001) (Eqs. (6) and (7)) and from one of the plausible heterogeneous model (shallow model, $K_{MS} = 10^{-6}$ m/s and $\varphi = 5\%$). All models have been calibrated to the same CFC-12 age. As we have seen in Section 4, it does not mean that they have the same mean residence time, but it constrains the convolution (Eq. (18)) to yield the same resulting tracer age. Even under this constraint, the residence time distributions $p(t)$ are significantly different (Fig. 11a). The exponential and Etcheverry dipping models (dashed blue and green curves) both diverge from the heterogeneous model (red line and disks). The dipping homogeneous model favors the smaller residence times like the heterogeneous model because of the dip of the contact zone

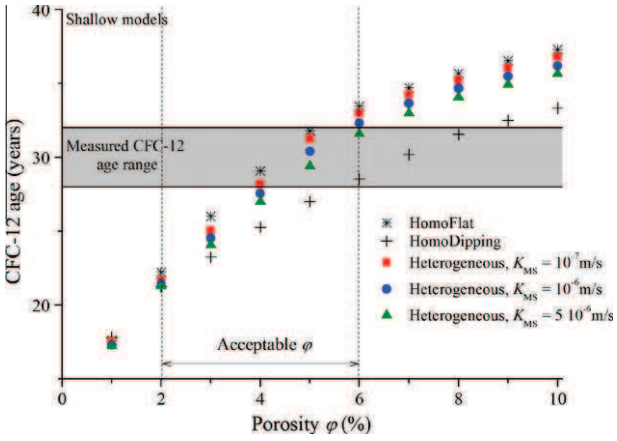


Fig. 10. CFC-12 ages produced by the different shallow models: flat homogeneous, dipping homogeneous and dipping heterogeneous with variable micaschists conductivity K_{MS} and porosity φ.

well represented. It however misses the right shape of the early time distribution because it cannot account for the local topographical and geological configurations that are of importance for residence times lower than 20 years. Overestimating the early-times probability, it mechanistically underestimates the larger times probability. The flat homogeneous model also misses the early part of the distribution by underestimating it, rather than overestimating it for the dipping homogeneous model. The relatively better agreement at later residence times comes from the compensation mechanisms already mentioned in Section 5.2.3. Heterogeneity and structure have counterbalancing effects in the specific case handled here. In the case of flat layered models, discrepancies are in fact much larger (Luther and Haitjema, 1998). Therefore, the similarity between the complex model (red disks and line) and the flat homogeneous model (exponential model, dashed blue line in Fig. 11a) occurs by chance and should not be generalized. We thus discard it in the following analysis.

As just discussed, the comparison of the distributions underlines the importance of local configurations for the early-time distribution (residence times smaller than 20 years). A closer analysis of the spatial distribution of the residence times from the aquifer recharge to the pumping station (Fig. 12) shows that the peaks of the distribution at 1, 4.75 and 20 years come respectively from local structures for the first two peaks (marked B1 for 1-year peak and B2 for 4.75-year peak on (Fig. 4)) and from the North 20° fault zone for the peak at 20 years. The local structures B1 and B2 correlate with local topographical hills (Fig. 4) that translate to local hills in the bottom of the weathered rocks deriving from the assumption of a uniform thickness of the weathered rocks. This results in a thinner saturated weathered rocks thickness and in comparatively faster transport through the weathered rocks.

Discrepancies between the simple exponential and dipping models come from local geological structures and topographical configurations. In terms of predictive capability, the impact of local features is shown on the cumulative residence time distribution that to some extent controls the natural degradation rate. The dipping homogeneous model overestimates by a factor of 2 the probability of residence times smaller than 10 years (46% compared to 27%, dashed line in Fig. 11b). Overestimation remains large at 20 years (60% compared to 42%) and is progressively vanishing at times much longer than the calibrated tracer age. Even more striking, the time of renewal of 50% of the produced water (horizontal line in Fig. 11b) is doubled (10 years in the dipping model and 20 years in the complex aquifer model). Even if the models are constrained by the same age, they give quite different predictions. If simplistic models do not appear inadequate for model calibration,

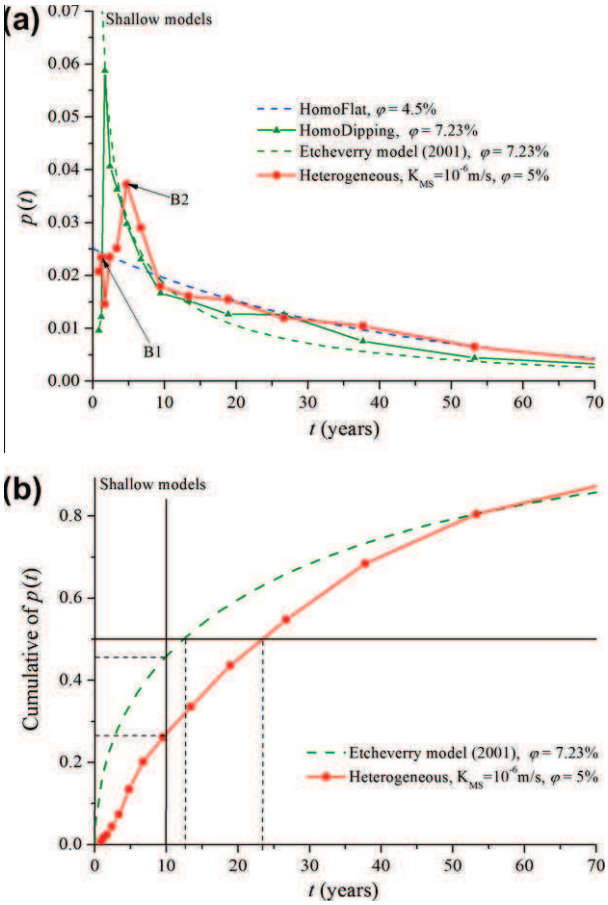


Fig. 11. (a) Probability density $p(t)$ and (b) cumulative distribution of residence time at fixed CFC-12 age. Marks B1 and B2 identify two probability increases that come from two local depressions of the thickness of the saturated micaschists (Figs. 4 and 12).

they show their limit for the use of calibrated models in terms of prediction as they constitute oversimplified representation of flow conditions and time scale.

7. Conclusions

We have analyzed information contained in tracer age data when used with hydraulic head data in realistic settings where data are concentrated next to a produced well. This analysis is illustrated on a complex aquifer in crystalline rocks (Plœmeur) formed at a dipping contact zone between granites and micaschists and produced in its outcropping part. The underlying granites define the aquifer substratum while the overlying micaschists constitute an aquitard through which leakage recharges the aquifer. Taken next to and at the pumping station, environmental tracer concentrations result from a broad sampling of the aquifer circulations and give global information involving the aquifer average recharge rate, porosity and structure. Calibration of a hydrogeological model on hydraulic head at the pumping station constrains the aquifer transmissivity and the recharge at its potential value. Recharge being determined by surface and near-surface processes, tracer ages qualify the global volume of the aquifer, a complex product of its porosity and structure. While tracer ages have been widely used for calibrating characteristic velocity, they can also be used to get valuable information on aquifer structure especially in complex geological settings like hard-rock contexts when porosity can be approached by other methods. The comparison of the full heterogeneous model to simpler exponential or dipping homogeneous models (Etcheverry, 2001) calibrated by the same age data shows significant discrepancies in the residence time distribution. Although constrained on the same age, models give predictions of the rate of renewal and the cumulative residence time that may differ by a factor 2. Divergences occur more for residence times smaller than 30 years. They come mainly from differences in the treatment of geological structures and topographical features close to the produced well that cannot be accounted for by a simple

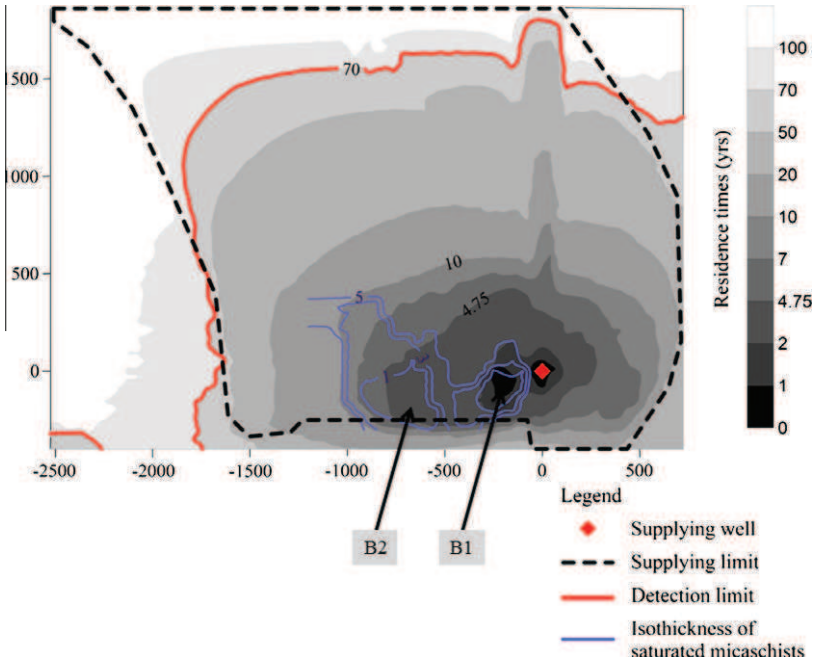


Fig. 12. Spatial residence time distribution in the shallow model, for a porosity φ of 5% and micaschists hydraulic conductivity K_{MS} of 10^{-6} m/s. Detection limit is the limit on times beyond which the CFC-12 atmospheric concentrations are null: in this case, 73% of times are detected by CFC-12. The supplying limit characterizes the portion of space where recharge supplies the pumping well. Length unit is meter. B1 and B2 identify isochrone surfaces issued by local depressions of the thickness of the saturated micaschists (Fig. 4).

statistical model and are nonetheless essential for the characteristic time range of the CFCs (0–70 years). On this time range, transient effects may also intervene on the residence time distribution and accounting for them is a direct perspective of this work.

Acknowledgments

Funding was provided by the French National Research Agency ANR through the MOHINI project (ANR-07-VULN-008) and the MICAS project for the development of parallel simulation methods (ANR-07-CIS7-004). The Plœmeur site monitoring is funded by the Environmental research Observatory H+ (Network of hydrogeological sites). J.-R. de Dreuzy acknowledges the European Union for its additional funding through the IEF Marie-Curie fellowship (PIEF-GA-2009-251710). The article has benefited from fruitful reviews and discussions with Tim Ginn and Roseanna Neupauer.

Appendix A. Derivation of $p(t)$ in a semi-confined aquifer alimented by constant recharge

Through radial symmetry and Dupuits–Forchheimer assumptions (vertical flow is negligible and the gradient of head is small compared to the saturated thickness H even with a sink-source term), we can write the diffusivity equation of head $h(r)$ along radius r in a semi-confined aquifer alimented by a constant recharge R:

$$T\left(\frac{\partial^2 h(r)}{\partial r^2}+\frac{1}{r}\frac{\partial h(r)}{\partial r}\right)=-R, \tag{A1}$$

with T the transmissivity.Eq. (A1) can also be written as follows under pumping conditions:

$$\frac{1}{r}\frac{\partial(r\frac{\partial h}{\partial r})}{\partial r}=-\frac{R}{T}, \tag{A2}$$

$$\left(r\frac{\partial h}{\partial r}\right)_{r\to 0}=\frac{Q_W}{2\pi T}, \tag{A3}$$

$$h(r=R_A)=h_A. \tag{A4}$$

With Q_W the pumping rate at radius $r=0$ and h_A a fixed-head at the radius of influence R_A of the pumping well. Given that recharge rate R is considered constant throughout the domain, R_A can be related to the pumping rate Q_W through the following equation:

$$Q_W=\pi R R_A^2. \tag{A5}$$

Using the boundary conditions described above for determining the constants of integration of Eq. (A2), the velocity and head fields are obtained throughout the domain:.

$$v(r)=-K\frac{\partial h}{\partial r}=-\frac{R}{2H}\frac{(R_A^2-r^2)}{r}, \tag{A6}$$

$$h(r)=h_A+\frac{R}{2T}\left(\frac{(R_A^2-r^2)}{2}+R_A^2\ln\left(\frac{r}{R_A}\right)\right). \tag{A7}$$

We derive the residence time $t(r)$ from velocity field using Eq. (A6).

$$t(r)=\int_0^r\frac{\varphi}{v(r)}dr. \tag{A8}$$

With constant porosity φ, constant thickness H and constant recharge rate R, Eq. (A8) is transformed into Eq. (A9):

$$t(r)=-\frac{\varphi H}{R}\int_0^r\frac{2r}{R_A^2-r^2}dr, \tag{A9}$$

$t(r)$ is finally given by:

$$t(r)=-\frac{\varphi H}{R}\ln\frac{(R_A^2-r^2)}{R_A^2}. \tag{A10}$$

We also derive $r(t)$ and $\frac{dr}{dt}$:

$$r(t)=R_A\sqrt{1-\exp\left(-\frac{Rt}{\varphi H}\right)}, \tag{A11}$$

$$\frac{dr}{dt}=\frac{R_A^2}{2}\frac{R}{\varphi H}\frac{1}{r(t)}\exp\left(-\frac{Rt}{\varphi H}\right). \tag{A12}$$

Through radial symmetry assumption, we write Eq. (A13).

$$p(t)=p(r)\frac{dr}{dt}. \tag{A13}$$

The probability $p(r)$ is the ratio of the recharge flow at radius r, noted $q(r)$, on the total recharge flow:

$$p(r)=\frac{q(r)}{\int_0^{R_A}q(r)dr}=\frac{2\pi rR}{\int_0^{R_A}2\pi rRdr}=\frac{2\pi rR}{\pi RR_A^2}=\frac{2\pi rR}{Q_W}. \tag{A14}$$

Substituting $p(r)$ in the Eq. (A13) by the ratio of Eq. (A14), we obtain:

$$p(t)=\frac{2\pi rR}{Q_W}\frac{dr}{dt}=\frac{2}{R_A^2}r(t)\frac{dr}{dt}. \tag{A15}$$

The no-influence of the pumping rate is clear as the radius of influence R_A disappears in the expression of $p(t)$ given by:

$$p(t)=\frac{2}{R_A^2}\frac{R_A^2}{2}\frac{R}{\varphi H}\exp\left(-\frac{Rt}{\varphi H}\right)=\frac{R}{\varphi H}\exp\left(-\frac{Rt}{\varphi H}\right). \tag{A16}$$

Finally, the residence time distribution $p(t)$ has always the following form, with the exception that recharge rate R and ratio $\frac{\varphi H}{R}$ remain constant all over the groundwatershed and that the aquifer is locally homogeneous (no stratification):

$$p(t)=\frac{R}{\varphi H}\exp\left(-\frac{R}{\varphi H}t\right)=\frac{1}{\tau}\exp\left(-\frac{t}{\tau}\right), \tag{A17}$$

and the mean residence time is expressed as follows:

$$\bar{t}=\int_0^\infty tp(t)dt=\frac{\varphi H}{R}=\tau. \tag{A18}$$

Appendix B. Derivation of $p(t)$ in a semi-confined aquifer with a linearly variable thickness

The derivation of the residence time distribution for a semi-confined homogeneous aquifer with constant porosity but linearly variable thickness has been formalized by David Etcheverry in his thesis (2001). Thereby, the following part is entirely based on his thesis manuscript, particularly on Section 4.2.1 from page 43 to page 48 and annex 3 from page 109 to page 111. Notations have been made consistent with our paper and details about derivation have been added. When necessary, references to original equations are presented.

Let's consider one dimensional flow, along x, in a homogeneous aquifer whose thickness is a function of position x and varies linearly from b_0 at $x=0$ to b_L at $x=L$. Thickness $b(x)$ is the only variable parameter as porosity φ, permeability and recharge rate R are set constant. $b(x)$ is expressed as follows (analogous to Eq. (A16), page 109):

$$b(x)=b_0+\frac{x(b_L-b_0)}{L}. \tag{B1}$$

Through Dupuits–Forchheimer assumptions, flow is horizontal and a function of position x. It is noted $F(x)$ (analogous to Eq. (A17), page 109):

$$F(x) = Rx. \tag{B2}$$

Flow increases from 0 at $x = 0$ to RL at $x = L$, the discharge location of the aquifer. Velocity $v(x)$, which is related to flow by thickness $b(x)$, is described by the following Eq. (analogous to Eq. (A18), page 110):

$$v(x) = \frac{F(x)}{b(x)} = \frac{Rx}{b_0 + \frac{x(b_L - b_0)}{L}}. \tag{B3}$$

The residence time from a recharge location x to the discharge location L, noted $t(x)$, is the integrative of the inverse of pore velocity:

$$t(x) = \int_x^L \frac{\varphi}{v(x)} dx = \frac{\varphi}{R} \int_x^L \frac{b_0 + \frac{x(b_L - b_0)}{L}}{x} dx, \tag{B4}$$

$$t(x) = \frac{\varphi}{R}\left(b_0 ln\frac{L}{x} + \frac{b_L - b_0}{L}(L - x)\right). \tag{B5}$$

Transforming the equation (analogous to Eq. (A19), page 110), we want to derive $x(t)$.

$$t(x) = \frac{\varphi b_0}{R}\left(ln\frac{L}{x} + \frac{b_L - b_0}{b_0}\left(1 - \frac{x}{L}\right)\right), \tag{B6}$$

$$e^{-\frac{Rt(x)}{\varphi b_0} + \frac{b_L - b_0}{b_0}} = \frac{x}{L} e^{\frac{b_L - b_0}{b_0}\frac{x}{L}}, \tag{B7}$$

$$\frac{b_L - b_0}{b_0} e^{-\frac{Rt(x)}{\varphi b_0} + \frac{b_L - b_0}{b_0}} = \left(\frac{b_L - b_0}{b_0}\frac{x}{L}\right) e^{\left(\frac{b_L - b_0}{b_0}\frac{x}{L}\right)}, \tag{B8}$$

$$\frac{b_L - b_0}{b_0} e^{-\frac{Rt(x)}{\varphi b_0} + \frac{b_L - b_0}{b_0}} = Ye^Y, \tag{B9}$$

with $Y = \frac{b_L - b_0}{b_0}\frac{x}{L}$.

Among the infinite complex solutions, we note $LambertW(f(t))$ the unique real solution of the Eq. (B9) which is besides the only physical solution with:

$$f(t) = \frac{b_L - b_0}{b_0} e^{-\frac{Rt(x)}{\varphi b_0} + \frac{b_L - b_0}{b_0}}. \tag{B10}$$

With analogy to Eq. (A.21) of Etcheverry's thesis (2001), the solution $x(t)$ is thus:

$$x(t) = \frac{Lb_0}{b_L - b_0} LambertW(f(t)). \tag{B11}$$

The derivative of $x(t)$ with t is a function of the derivative of $LambertW(f(t))$ with t which is given by:

$$\frac{dLambertW(f(t))}{dt} = \frac{dLambertW(f(t))}{df}\frac{df(t)}{dt}. \tag{B12}$$

The derivative of $LambertW(f(t))$ with $f(t)$ is known to be:

$$\frac{dLambertW(f(t))}{df} = \frac{LambertW(f(t))}{1 + LambertW(f(t))}\frac{1}{f(t)}. \tag{B13}$$

And the derivative of $f(t)$ with t is:

$$\frac{df(t)}{df} = -\frac{R}{\varphi b_0} f(t). \tag{B14}$$

Therefore, the derivative of $LambertW(f(t))$ with t is simply:

$$\frac{dLambertW(f(t))}{dt} = -\frac{R}{\varphi b_0}\frac{LambertW(f(t))}{1 + LambertW(f(t))}, \tag{B15}$$

and the derivative of $x(t)$ with t is then:

$$\frac{dx(t)}{dt} = \frac{-RL}{\varphi(b_L - b_0)}\frac{LambertW(f(t))}{1 + LambertW(f(t))}. \tag{B16}$$

The cumulative distribution of recharge position noted $P(x)$ is given by flow; it is the integration of recharge between $x(t)$ and L, normalized by total flow $F(L)$ (see Eq. (A22), page 110):

$$P(x) = \frac{F(L) - F(x)}{F(L)} = \frac{R(L - x)}{RL} = 1 - \frac{x}{L}. \tag{B17}$$

The recharge position distribution is then the derivative of its cumulative distribution:

$$p(x) = -\frac{1}{L}. \tag{B18}$$

Given that

$$p(t) = p(x)\frac{dx}{dt}, \tag{B19}$$

the residence time distribution for a one-dimensional semi-confined aquifer alimented by a constant recharge rate R, with constant porosity φ and a thickness varying linearly from b_0 to b_L, is described by Eq. (B20).

$$p(t) = -\frac{1}{L}\frac{dx}{dt} = \frac{R}{\varphi(b_L - b_0)}\frac{LambertW\left(\frac{b_L - b_0}{b_0} e^{-\frac{Rt(x)}{\varphi b_0} + \frac{b_L - b_0}{b_0}}\right)}{1 + LambertW\left(\frac{b_L - b_0}{b_0} e^{-\frac{Rt(x)}{\varphi b_0} + \frac{b_L - b_0}{b_0}}\right)}. \tag{B20}$$

The final Eq. (57) is equivalent to Eq. (51) of Etcheverry's thesis (2001), page 44.

References

Aquilina, L., De Montety, V., Labasque, T., Molénat, J., Ruiz, L., Ayraud-Vergnaud, V., Fourré, E., 2011. CFC and SF6 concentrations in shallow groundwater: implications for groundwater age determination. In: Birkle, P., Torres Alvarado, I.S. (Eds.), Water-Rock Interaction XIII, Proc. 13th Internat. Conf. Water Rock Interaction, Guanajuato Mexico. Taylor and Francis Group, London, pp. 51–54.

Ayraud, V., Aquilina, L., Labasque, T., Pauwels, H., Molenat, J., Pierson-Wickmann, A.-C., Durand, V., Bour, O., Tarits, C., Le Corre, P., Fourre, E., Merot, P., Davy, P., 2008. Compartmentalization of physical and chemical properties in hard-rock aquifers deduced from chemical and groundwater age analyses. Appl. Geochem. 23 (9), 2686–2707. http://dx.doi.org/10.1016/j.apgeochem.2008.06.001.

Beaudoin, A., Erhel, J., de Dreuzy, J.-R., 2006. A Comparison between a Direct and A Multigrid Sparse Linear Solvers for Highly Heterogeneous Flux Computations, Eccomas Conference on CFD. Egmond aan Zee, The Netherlands.

Begemann, F., Libby, W.F., 1957. Continental water balance, ground water inventory and storage times, surface ocean mixing rates and world-wide water circulation patterns from cosmic-ray and bomb tritium. Geochim. Cosmochim. Acta 12 (4), 277–296. http://dx.doi.org/10.1016/0016-7037(57)90040-6.

Belghoul, A., 2007. Caractérisation pétrophysique et hydrodynamique du socle cristallin. Ph.D. Thesis, University of Montpellier II, France, 266 pp.

Bethke, C.M., Johnson, T.M., 2002. Paradox of groundwater age: correction. Geology 30 (4), 385–388. http://dx.doi.org/10.1130/0091-7613(2002)030<0386:POGAC>2.0.CO;2.

Boschero, V., unpublished. Echantillonnage, mesures et interprétation de mini-carottes pour la caractérisation du forage SC39 du site de pompage de Ploemeur. Master Thesis, University of Brighton, England, 22 pp.

Bresciani, E., Davy, P., de Dreuzy, J.-R., 2011. A finite volume approach with local adaptation scheme for the simulation of free surface flow in porous media. Int. J. Numer. Anal. Meth. Geomech. http://dx.doi.org/10.1002/nag.1065.

Burton, W.C., Plummer, L.N., Busenberg, E., Lindsey, B.D., Gburek, W.J., 2002. Influence of fracture anisotropy on ground water ages and chemistry, Vakkey and Ridge Province, Pennsylvania. Groundwater 40 (3), 242–257. http://dx.doi.org/10.1111/j.1745-6584.2002.tb02652.x.

Busenberg, E., Plummer, L.N., 1992. Use of chlorofluorocarbons (CCl_3F and CCl_2F_2) as hydrologic tracers and age-dating tools - The alluvium and terrace system of Central Oklahoma. Water Resour. Res. 28 (9), 2257–2283. http://dx.doi.org/10.1029/92WR01263.

Busenberg, E., Plummer, L.N., 2000. Dating young groundwater with sulfur hexafluoride: natural and anthropogenic sources of sulfur hexafluoride. Water Resour. Res. 36 (10), 3011–3030. http://dx.doi.org/10.1029/2000WR900151.

Carn, A., 1990. Mise en valeur des ressources en eau souterraine du socle breton. Département du Morbihan (35), BRGM, Rennes.
Carrera, J., Alcolea, A., Medina, A., Hidalgo, J., Slooten, L.J., 2005. Inverse problem in hydrogeology. Hydrogeol. J. 13 (1), 206–222. http://dx.doi.org/10.1007/s10040-004-0404-7.
Cook, P.G., Herczeg, A.L., 2000. Environmental Tracers in Subsurface Hydrology. Kluwer Academic Publishers, Boston, 529 pp.
Cook, P.G., Love, A.J., Robinson, N.I., Simmons, C.T., 2005. Groundwater ages in fractured rock aquifers. J. Hydrol. 308 (1–4), 284–301. http://dx.doi.org/10.1016/j.jhydrol.2004.11.005.
Cook, P.G., Solomon, D.K., 1995. Transport of atmospheric trace gases to the water table - Implications for groundwater dating with chlorofluorocarbons and krypton-85. Water Resour. Res. 31 (2), 263–270. http://dx.doi.org/10.1029/94WR02232.
Cook, P.G., Solomon, D.K., Plummer, L.N., Busenberg, E., Schiff, S.L., 1995. Chlorofluorocarbons as tracers of groundwater transport processes in a shallow, silty sand aquifer. Water Resour. Res. 31 (3), 425–434. http://dx.doi.org/10.1029/94WR02528.
Cornaton, F., Perrochet, P., 2006. Groundwater age, life expectancy and transit time distributions in advective-dispersive systems: 1. Generalized reservoir theory. Adv. Water Resour. 29 (9), 1267–1291. http://dx.doi.org/10.1016/j.advwatres.2005.10.009.
Cornaton, F., Perrochet, P., 2007. Reply to "Comment on groundwater age, life expectancy, and transit time distributions in advective-dispersive systems: 1. Generalized reservoir theory" by Timothy R. Ginn. Adv. Water Resour. 30 (4), 1058–1059. http://dx.doi.org/10.1016/j.advwatres.2006.09.006.
Danckwerts, P.V., 1953. Continuous flow systems – distribution of residence times. Chem. Eng. Sci. 2 (1), 1–13. http://dx.doi.org/10.1016/0009-2509(53)80001-1.
de Dreuzy, J.-R., Beaudoin, A., Erhel, J., 2007. Asymptotic dispersion in 2D heterogeneous porous media determined by parallel numerical simulations. Water Resour. Res. 43 (10). http://dx.doi.org/10.1029/2006WR005394.
de Dreuzy, J.-R., Bodin, J., Le Grand, H., Davy, P., Boulanger, D., Battais, A., Bour, O., Gouze, P., Porel, G., 2006. General database for ground water site information. Groundwater 44 (5), 743–748, doi:0.1111/j.1745-6584.2006.00220.x.
Englert, A., Hubbard, S.S., Williams, K.H., Li, L., Steefel, C.I., 2009. Feedbacks between hydrological heterogeneity and bioremediation induced biogeochemical transformations. Environ. Sci. Technol. 43 (14), 5197–5204. http://dx.doi.org/10.1021/es803367n.
Erhel, J., de Dreuzy, J.-R., Bresciani, E., 2008. Multi-parametric intensive stochastic simulations for hydrogeology on a computational grid. In: Tromeur-Dervout, D., Brenner, G., Emerson, D., Erhel, J. (Eds.), Parallel Computational Fluid Dynamics, Lecture Notes in Computational Science and Engineering. Springer, pp. 389–397.
Erhel, J., de Dreuzy, J.R., Beaudoin, A., Bresciani, E., Tromeur-Dervout, D., 2009. A parallel scientific software for heterogeneous hydrogeoloy. In: Tuncer, I.H., Gulcat, U., Emerson, D.R., Matsuno, K. (Eds.), Parallel Computational Fluid Dynamics 2007. Springer, Lecture Notes in Computational Science and Engineering, pp. 39–48.
Eriksson, E., 1958. The possible use of tritium for estimating groundwater storage. Tellus 10 (4), 472–476.
Etcheverry, D., 2001. Une approche déterministe des distributions des temps de transit de l'eau souterraine par la théorie des réservoirs. PhD Thesis, University of Neuchâtel, Switzerland, 118 pp. <http://doc.rero.ch/lm.php?url=1000,40,4,20050413130217-SL/2_these_EtcheverryD.pdf>.
Franssen, H.-J.H., Gomez-Hernandez, J., Sahuquillo, A., 2003. Coupled inverse modelling of groundwater flow and mass transport and the worth of concentration data. J. Hydrol. 281 (4), 281–295. http://dx.doi.org/10.1016/S0022-1694(03)00191-4.
Gelhar, L.W., Wilson, J.L., 1974. Ground-water quality modeling. Groundwater 12 (6), 399–408.
Ginn, T.R., 2007. Comment on "Groundwater age, life expectancy, and transit time distributions in advective-dispersive systems: 1. Generalized reservoir theory" by F. Cornaton and P. Perrochet. Adv. Water Resour. 30 (4), 1056–1057. http://dx.doi.org/10.1016/j.advwatres.2006.09.005.
Ginn, T.R., Haeri, H., Massoudieh, A., Foglia, L., 2009. Notes on groundwater age in forward and inverse modeling. Transp. Porous Med. 79 (1), 117–134. http://dx.doi.org/10.1007/s11242-009-9406-1.
Goode, D.J., 1996. Direct simulation of groundwater age. Water Resour. Res. 32 (2), 289–296.
Haggerty, R., Gorelick, S.M., 1995. Multiple-rate mass transfer for modeling diffusion and surface reactions in media with pore-scale heterogeneity. Water Resour. Res. 31 (10), 2383–2400.
Haitjema, H.M., 1995. On the residence time distribution in idealized groundwatesheds. J. Hydrol. 172 (1–4), 127–146. http://dx.doi.org/10.1016/0022-1694(95)02732-5.
Hill, M.C., Tiedeman, C.R., 2007. Effective Groundawter Model Calibration: With analysis of Data, Sensitivities, Predictions, and Uncertainty. John Wiley and sons, New York, 480 pp.
Horrenberger, J.C., Morzadec, M.T., Cogné, J., 1972. Lorient (383), Carte géologique de la France à 1/50 000. BRGM, Orléans, pp. Geological Map.
IAEA, 2006. Use of Chlorofluorocarbons in Hydrology: a Guidebook. International Atomic Energy Agency, Vienna, 277 pp.
Kaufman, S., Libby, W.F., 1954. The natural distribution of tritium. Phys. Rev. 93 (6), 1337–1344. http://dx.doi.org/10.1103/PhysRev.93.1337.
Kazemi, G.A., Lehr, J.H., Perrochet, P., 2005. Groundwater Age. John Wiley and sons, Inc., Hoboken, NJ, USA, 325 pp.
Kinzelbach, W., 1988. The random-walk method in pollutant transport simulation. In: Custodio, E., Gurgui, A., Lobo Ferreira, J.P. (Eds.), Groundwater Flow and Quality Modelling. NATO ASI, Dordrecht, New York, pp. 227–246.
Koh, D.-C., Plummer, L.N., Busenberg, E., Kim, Y.-J., 2007. Evidence for terrigenic SF_6 in groundwater from basaltic aquifers, Jeju Island, Korea: implications for groundwater dating. J. Hydrol. 339 (1–2), 93–104. http://dx.doi.org/10.1016/j.jhydrol.2007.03.011.
Koh, D.-C., Plummer, L.N., Solomon, D.K., Busenberg, E., Kim, Y.-J., Chang, H.-W., 2006. Application of environmental tracers to mixing, evolution, and nitrate contamination of ground water in Jeju Island, Korea. J. Hydrol. 327 (1–2), 258–275. http://dx.doi.org/10.1016/j.jhydrol.2005.11.021.
Kreft, A., Zuber, A., 1978. Physical meaning of dispersion equation and its solution for different initial and boundary conditions. Chem. Eng. Sci. 33 (11), 1471–1480. http://dx.doi.org/10.1016/0009-2509(78)85196-3.
LaBolle, E.M., Fogg, G.E., 2001. Role of molecular diffusion in contaminant migration and recovery in an alluvial aquifer system. Transp. Porous Media 42 (1–2), 155–179. http://dx.doi.org/10.1023/A:1006772716244.
Le Borgne, T., Bour, O., de Dreuzy, J.-R., Davy, P., Touchard, F., 2004. Equivalent mean flow models for fractured aquifers: Insights from a pumping tests scaling interpretation. Water Resour. Res. 40 (3). http://dx.doi.org/10.1029/2003WR002436.
Le Borgne, T., Bour, O., Paillet, J., Caudal, J., 2006. 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.
Lerner, D.N., Papatolios, K.T., 1993. A simple analytical approach for predicting nitrate concentrations in pumped ground-water. Groundwater 31 (3), 370–375. http://dx.doi.org/10.1111/j.1745-6584.1993.tb01837.x.
Luther, K.H., Haitjema, H.M., 1998. Numerical experiments on the residence time distributions of heterogeneous groundwatersheds. J. Hydrol. 207 (1–2), 1–17. http://dx.doi.org/10.1016/S0022-1694(98)00112-7.
Maloszewski, P., Zuber, A., 1982. Determining the turnover time of groundwater systems with the aid of environmental tracers, 1. Models and their applicability. J. Hydrol. 57 (3–4), 207–231.
Massoudieh, A., Ginn, T.R., 2011. The theoretical relation between unstable solutes and groundwater age. Water Resour. Res. 47, W10523. http://dx.doi.org/10.1029/2010WR10039.
Moore, C., Doherty, J., 2005. Role of the calibration process in reducing model predictive error. Water Resour. Res. 41 (5). http://dx.doi.org/10.1029/2004WR003501.
Neretnieks, I., 1981. Age dating of groundwater in fissured rock – influence of water volume in micropores. Water Resour. Res. 17 (2), 421–422. http://dx.doi.org/10.1029/WR017i002p00421.
Neupauer, R.M., Wilson, J.L., 1999. Adjoint method for obtaining backward-in-time location and travel time probabilities of a conservative groundwater contaminant. Water Resour. Res. 35 (11), 3389–3398. http://dx.doi.org/10.1029/1999WR900190.
Neupauer, R.M., Wilson, J.L., 2001. Adjoint-derived location and travel time probabilities for a multidimensional groundwater system. Water Resour. Res. 37 (6), 1657–1668. http://dx.doi.org/10.1029/2000WR900388.
Plummer, L.N., Busenberg, E., Böhlke, J.K., Nelms, D.L., Michel, R.L., Schlosser, P., 2001. Groundwater residence times in Shenandoah National Park, Blue Ridge Mountains, Virginia USA: a multi-tracer approach. Chem. Geol. 179 (1–4), 93–111. http://dx.doi.org/10.1016/S0009-2541(01)00317-5.
Robertson, W.D., Cherry, J.A., 1989. Tritium as an indicator of recharge and dispersion in a groundwater system in Central Ontario. Water Resour. Res. 25 (6), 1097–1109. http://dx.doi.org/10.1029/WR025i006p01097.
Ruelleu, S., Moreau, F., Bour, O., Gapais, D., Martelet, G., 2010. Impact of gently dipping discontinuities on basement aquifer recharge: an example from Ploemeur (Brittany, France). J. Appl. Geophys. 70 (2), 161–168. http://dx.doi.org/10.1016/j.jappgeo.2009.12.007.
Solomon, D.K., Genereux, D.P., Plummer, L.N., Busenberg, E., 2010. Testing mixing models of old and young groundwater in a tropical lowland rain forest with environmental tracers. Water Resour. Res. 46 (W04518). http://dx.doi.org/10.1029/2009WR008341.
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. http://dx.doi.org/10.1016/j.apgeochem.2005.09.004.
Thornthwaite, C.W., 1948. An approach toward a rational classification of climate. Geophys. Rev. 38 (1), 55–94.
Touchard, F., 1999. Caractérisation hydrogéologique d'un aquifère en socle fracturé: Site de Ploemeur (Morbihan). Ph.D. Thesis, University of Rennes 1, France, 343 pp.
Troldborg, L., Refsgaard, J.C., Jensen, K.H., Engesgaard, P., 2007. The importance of alternative conceptual models for simulation of concentrations in a multi-aquifer system. Hydrogeol. J. 15 (5), 843–860. http://dx.doi.org/10.1007/s10040-007-0192-y.
Varni, M., Carrera, J., 1998. Simulation of groundwater age distributions. Water Resour. Res. 34 (12), 3271–3281.
Weissmann, G.S., Zhang, Y., LaBolle, E.M., Fogg, G.E., 2002. Dispersion of groundwater age in an alluvial aquifer system. Water Resour. Res. 38 (10). http://dx.doi.org/10.1029/2001wr000907.
Zinn, B.A., Konikow, L.F., 2007. Potential effects of regional pumpage on groundwater age distribution. Water Resour. Res. 43 (6). http://dx.doi.org/10.1029/2006WR004865.

4.3. Résultats complémentaires

4.3.1. Acquisition du temps dans chaque structure

Les isochrones dans la zone de contact très transmissive (Figure 4-1a) sont quasiment radiaux : on voit clairement l'effet du pompage. Ceux dans les micaschistes (Figure 4-1b) sont linéaires sur une grande partie du domaine ce qu'on peut attribuer à l'augmentation de l'épaisseur des micaschistes vers le Nord. Plus que la forme des isochrones, ce sont leurs ordres de grandeur qui sont surprenants. En effet, les temps de trajet dans la zone de contact (Figure 4-1a) ne sont pas négligeables comparés à ceux passés dans les micaschistes (Figure 4-1b) alors qu'on se serait intuitivement attendu au contraire. La symétrie par rapport à 1 de la distribution de fréquence des ratios de temps de trajet dans les deux structures (Figure 4-2) montre leur équivalence en termes d'acquisition du temps de résidence.

Bien que n'ayant que très peu d'effet sur les âges CFC, la perméabilité des micaschistes affecte la moyenne des temps de résidence (Table 5 de l'article) donc la distribution. La Figure 4-3 montre que la zone d'alimentation est modulée par la perméabilité des micaschistes. Lorsque celle-ci augmente, la zone d'alimentation se déplace vers les zones de fortes topographies (ouest du domaine). En fait, la perméabilité des micaschistes module la distribution du volume alimentant le pompage même si le volume en lui-même - qui est une fonction complexe de la surface et de l'épaisseur - est assez contraint par la recharge R et le débit de pompage Q_W. Cette observation entre en contradiction avec le travail de Bethke et Johnson (2002). Dans un contexte aquifère-aquitard en 2D, les auteurs affirmaient que le temps de résidence moyen n'était pas fonction de la perméabilité de l'aquitard mais seulement de son volume. Nous montrons ici que cette affirmation ne s'applique plus dans un système plus réaliste c'est-à-dire en 3D et avec une relation plus complexe avec les conditions aux limites et des contraintes telles que la topographie.

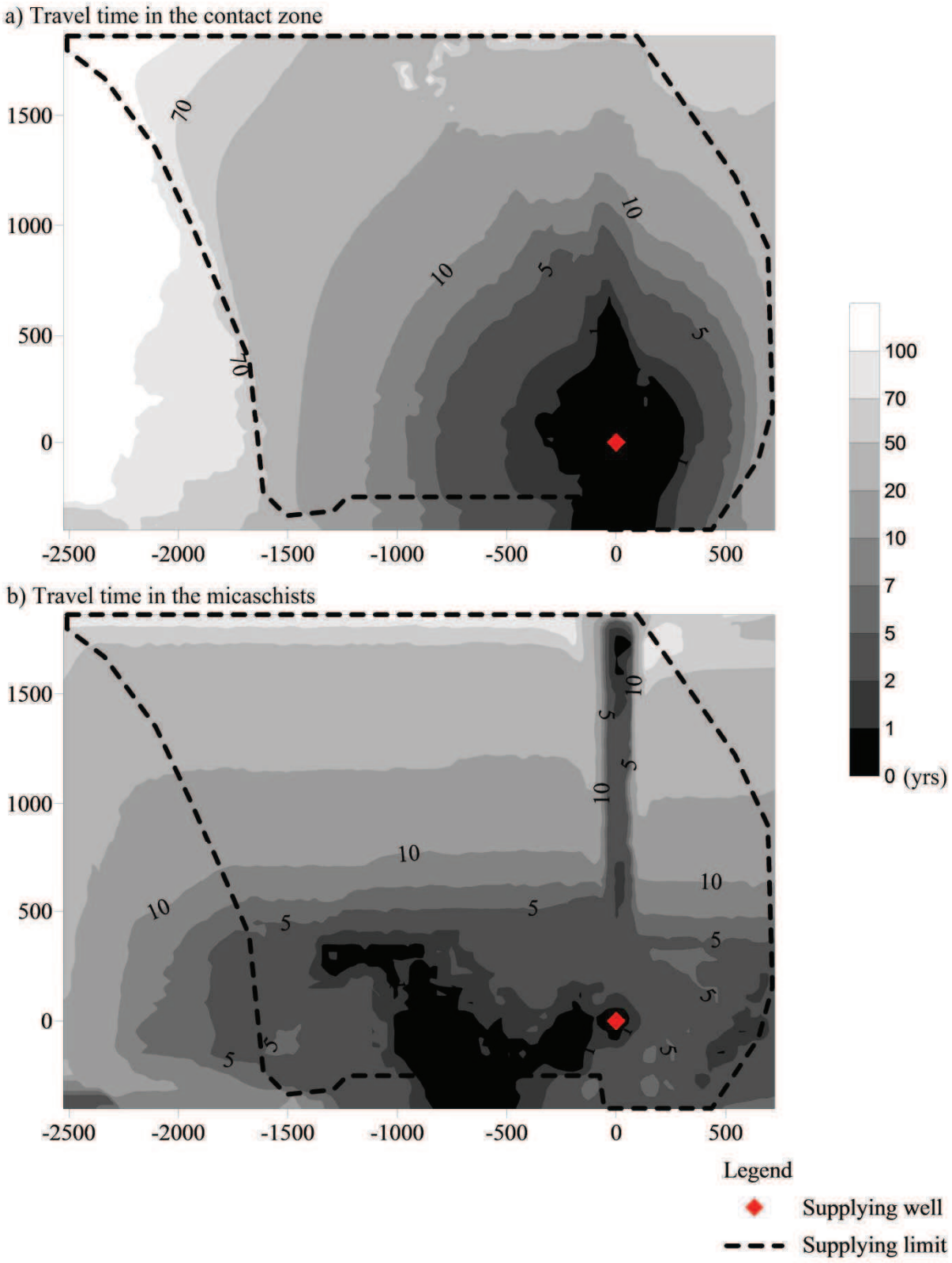


Figure 4-1: Distribution spatiale des temps de trajet de l'eau dans la zone de contact (a) et dans les micaschistes (b).

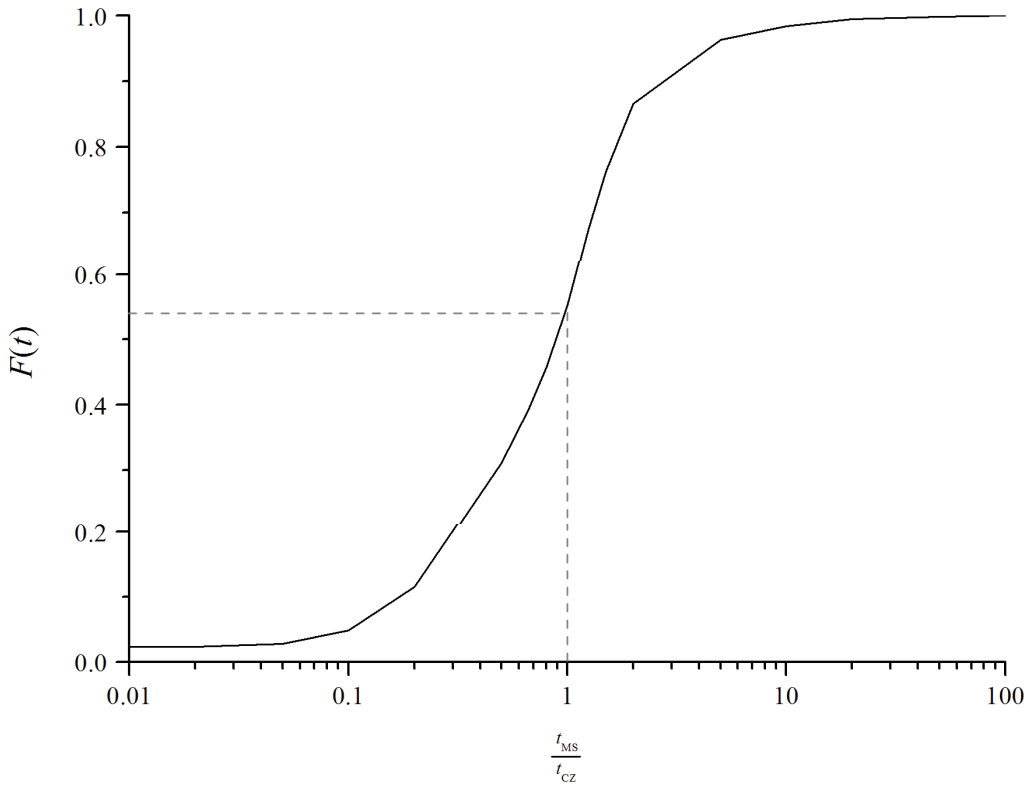


Figure 4-2: Distribution cumulée de fréquence *F*(*t*) du ratio du temps de trajet dans les micaschistes t_{MS} sur le temps de trajet dans la zone de contact t_{CZ}.

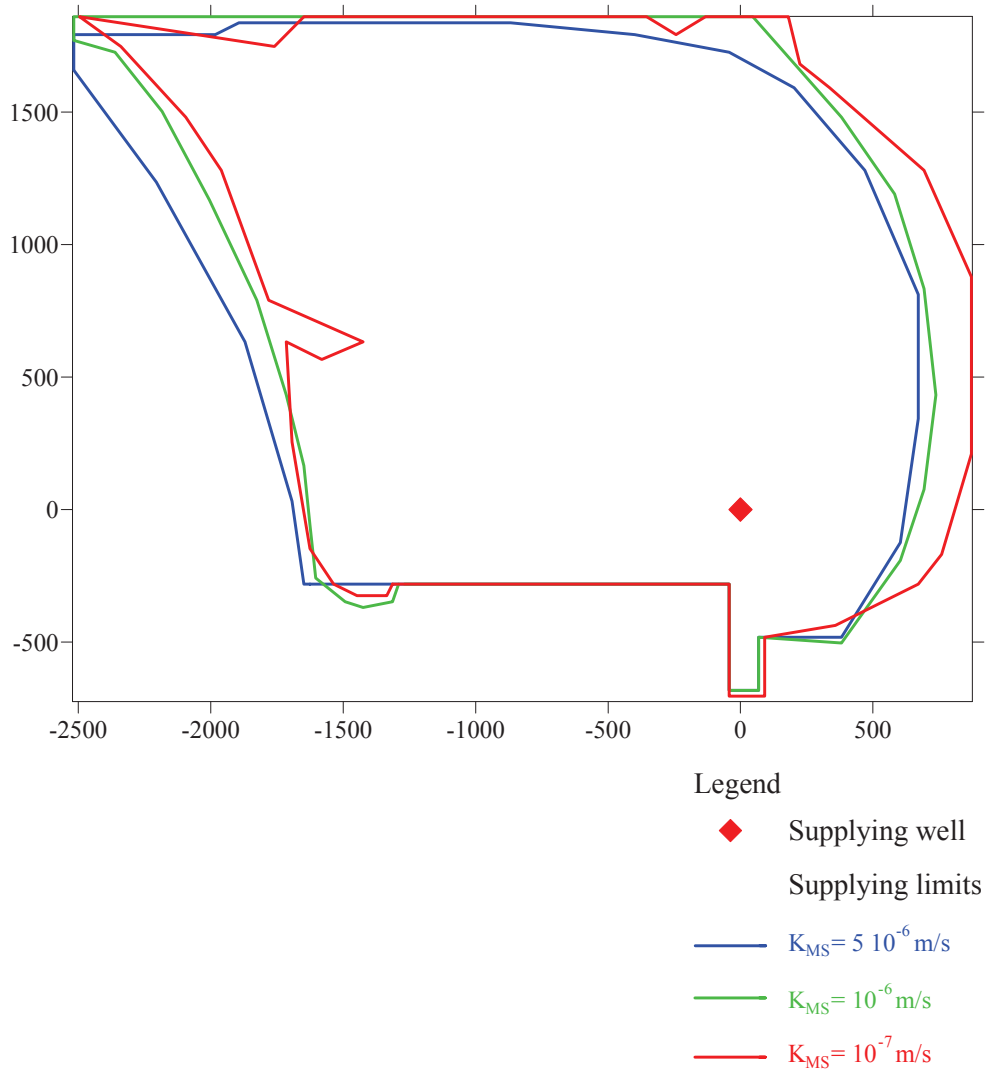


Figure 4-3: Zone d'alimentation des modèles peu profonds (shallow) en fonction de la perméabilité des micaschistes.

4.3.2. Modèle d'écoulement

Pour les modèles calés, la très faible sensibilité du niveau piézométrique à la perméabilité des micaschistes, dans la gamme explorée, nous laisse supposer qu'ils jouent le rôle de structure drainée. Dans cette configuration, l'eau percole dans les micaschistes puis est drainée dans la zone de contact vers le puits de pompage. Vue la forme des isopièzes (Figure 5 de l'article) et des isochrones (Figure 12 de l'article et la Figure 4-1), l'écoulement est supposé purement radial dans l'aquifère semi-confiné constitué par la zone de contact et est décrit par les équations suivantes :

$$T_{\mathrm{CZ}}\nabla^2 h_{CZ}(r) = q(r) \quad \textbf{(17)}$$

$$q(r) = K_{\mathrm{MS}}\frac{h_{\mathrm{CZ}}(r) - h_{\mathrm{MS}}(r)}{\mathrm{e}_{\mathrm{MS}}(r)} = \frac{R}{\cos^2(\alpha)} \quad \textbf{(18)}$$

$$T_{\mathrm{CZ}}\nabla^2 h_{CZ}(r = r_0) = Q_w \quad \textbf{(19)}$$

$$h_{CZ}(r = R_A\cos(\alpha)) = h_A \quad \textbf{(20)}$$

Avec r la distance au puits, T_{CZ} la transmissivité de la zone de contact, h_{CZ} sa charge et α son pendage, K_{MS} la perméabilité des micaschistes, e_{MS} leur épaisseur et h_{MS} leur charge, R le flux en surface, $q(r)$ le flux au toit de la zone de contact, Q_{W} le débit de pompage, h_{A} le niveau piézométrique dans la zone de contact à la limite d'alimentation $R_{\mathrm{A}}\cos(\alpha)$ et r_0 le rayon du puits et qui tend vers zéro. Pour simplifier, on suppose que le flux au toit de la zone de contact est constant et vaut $\frac{R}{\cos^2(\alpha)}$. Le niveau piézométrique dans la zone de contact est donc :

$$h_{CZ}(r) = h_A + \frac{Q_W}{2\pi T}\left(\frac{1 - \left(\frac{r}{R_A\cos(\alpha)}\right)^2}{2} + \left(1 + \left(\frac{r_0}{R_A\cos(\alpha)}\right)^2\right)Ln\left(\frac{r}{R_A\cos(\alpha)}\right)\right) \quad \textbf{(21)}$$

La Figure 4-4 représente les niveaux piézométriques dans le puits de pompage obtenus numériquement en fonction des mêmes niveaux piézométriques obtenus analytiquement. Le bon accord entre les deux permet de confirmer la validité du modèle analytique et de la représentation conceptuelle des écoulements qui y est associée.

L'approche numérique concourt ainsi à la mise en place d'un premier modèle conceptuel d'écoulement pour l'aquifère de Plœmeur; modèle qui plus est associé à une formulation analytique.

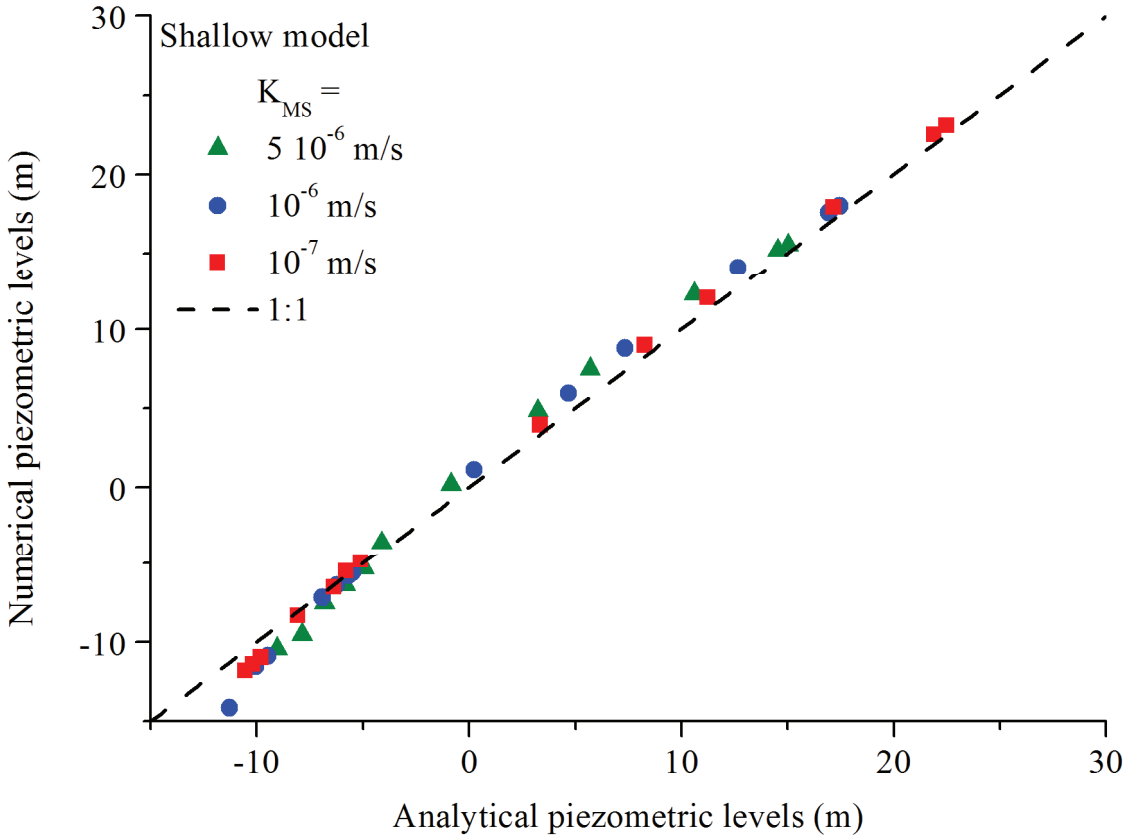


Figure 4-4: Niveaux piézométriques dans le puits de pompage obtenus numériquement en fonction des mêmes niveaux piézométriques obtenus analytiquement. Les niveaux piézométriques analytiques sont solution de l'équation de diffusivité en régime permanent avec écoulement radial dans un aquifère penté semi-confiné alimenté par une recharge constante $\frac{R}{\cos^2(\alpha)}$ et exploité à un taux Q_W (éq. (21)).

4.3.3. Taux de dilution : estimation du pôle profond

Outre les âges apparents, nous avons extrait des simulations la proportion d'eau ayant une concentration en traceur nulle c'est-à-dire ayant un temps de résidence supérieur à 70 ans. Cette fraction, que nous avons appelé taux de dilution, présente une relation quasi-linéaire avec l'âge quelque soit le traceur - CFC-11, CFC-12, CFC-113 ou SF_6 (Figure 4-5 dans le cas du CFC-12). Pour l'âge apparent en CFC-12 de 30 ans, le taux de dilution serait donc de 10 à 20%. En contrepartie, 80 à 90% de l'eau pompée présenterait une concentration non nulle en CFC.

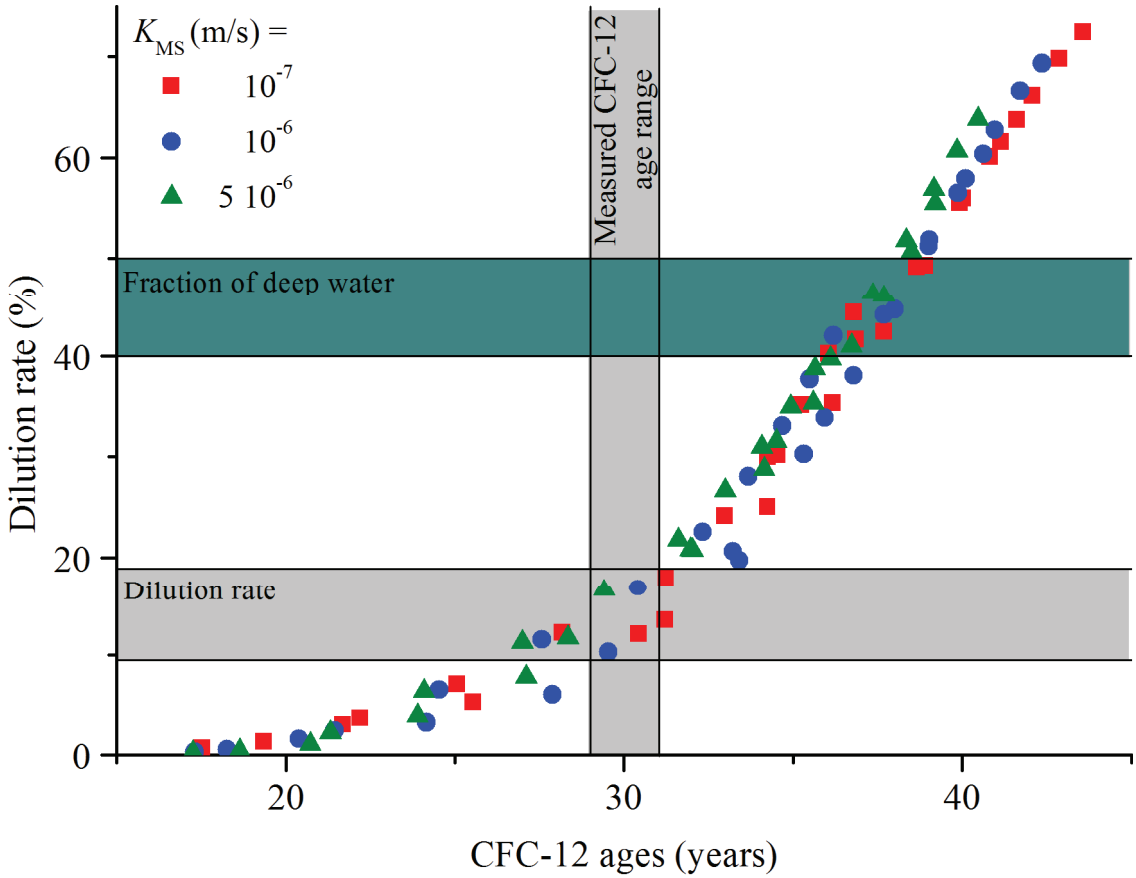


Figure 4-5: Taux de dilution en fonction de l'âge en CFC-12 pour les trois valeurs de perméabilité des micaschistes testées. La fraction d'eau profonde de 40-50% estimée par les données de géochimie est aussi représentée.

La Figure 4-5 présente aussi la fraction d'eau profonde estimée à partir des données de géochimie et précédemment introduite en section 2.3.2.4. Les deux fractions d'eau - ancienne et profonde – sont suffisamment différentes pour nous interpeler. On s'attend en effet à ce que l'eau profonde soit suffisamment ancienne pour être dénuée de CFC et que l'eau ayant un temps de résidence de plus de 70 ans ne soit pas forcément que profonde: la fraction d'eau profonde serait donc une borne inférieure au taux de dilution en CFC et, réciproquement, le taux de dilution serait une borne supérieure à la quantité d'eau profonde. On observe non seulement l'inverse mais aussi une différence importante entre les deux fractions.

En premier lieu, la méthode basée sur les données de géochimie est plus globale car intégrant 9 composés chimiques mais elle considère des composés potentiellement réactifs comme étant inertes. Que dire par exemple des concentrations en nitrates et en sulfates qui sont à la fois le résultat de mélange et de réactions chimiques, elles-mêmes sans doute influencées par les circulations ? Notamment, s'il y a dénitrification sur le site, la contribution du pôle dit de surface est sous-estimée, et réciproquement celle du pôle profond est surestimée. En second

lieu, cette démarche est aussi strictement statistique : elle n'est pas basée sur un modèle d'écoulement mais au contraire traite chaque point d'information comme un nombre restreint de contributions distinctes, les pôles. Si tentante qu'elle puisse paraître car facile à imager, la représentation des origines de l'eau par des tuyaux doit être utilisée avec précaution. Dans certains cas – notamment, variabilité spatiale ou temporelle des apports à l'image des traceurs environnementaux, elle devrait se limiter uniquement à la description des types de composantes mais sans la déduction d'un fractionnement. Même dans un milieu fracturé où demeure l'idée de double milieu ou dans des milieux fortement compartimentés, il persiste une certaine continuité des vitesses, des temps de résidence et donc des sources. Autrement dit si pôle il y a, chaque pôle reste une quantité distribuée en soi avec certes sa valeur moyenne mais aussi sa variance. Des efforts restent donc à fournir pour contraindre le pôle profond : confirmer ou infirmer son existence, quantifier sa contribution en termes de quantité et son évolution temporelle, qualifier sa chimie et son évolution temporelle. Des pistes d'exploration sont présentées dans le Chapitre 6.

4.4. Conclusions

Dans les milieux très hétérogènes, les données d'âge peuvent être habilement utilisées en complément d'autres données pour qualifier la structure de l'aquifère. En effet, l'application au site de Plœmeur montre que la donnée de piézométrie au puits de pompage et les observations hydrauliques contraignent aisément la transmissivité de l'aquifère et la recharge laissant à la donnée d'âge la charge de contraindre le volume global de l'aquifère, produit complexe de la porosité et de la structure. Dans ces milieux très hétérogènes, la donnée d'âge peut donc être habilement utilisée pour en déduire une information structurale. Du reste, l'avantage d'avoir une donnée au point de convergence est que l'information dite structurale est un paramètre en soi : c'est la profondeur effective du système; alors que dans le modèle piston ou de mélange intermédiaire, l'information structurale n'est respectivement que la profondeur d'échantillonnage ou que le volume échantillonné indéfini *a priori*.

Plusieurs limites sont pour autant rencontrées liées au fait que la donnée d'âge soit intégratrice: d'une part, la distribution du volume, donc le détail de la structure, est relativement inaccessible même pour les CFC pourtant très sélectifs. L'utilisation de traceurs à des échelles de temps, et donc espace, plus restreintes devrait pouvoir permettre de calibrer en partie cette distribution. D'autre part, la conséquence directe de cette intégration est que de nombreux modèles structuraux et hydrodynamiques peuvent être cohérents avec la donnée d'âge. Dans ce travail, nous avons testé le modèle exponentiel et le modèle homogène à pendage complexe similaire au modèle développé par Etcheverry (2001) qui tous deux sont capables de reproduire les âges observés dans des gammes de valeurs de paramètres raisonnables ou presque. Pourtant, ces modèles divergent radicalement pour la prédiction: l'erreur sur les taux de renouvellement peut être d'un facteur 2, et ce, sur des échelles de temps de l'ordre de quelques dizaines d'années. Le choix d'un modèle conceptuel repose donc sur l'ajout de données supplémentaires.

Chapitre 5 Contenu informationnel des chroniques d'âge apparent

5.1. Introduction

L'écoulement de l'eau souterraine est par nature transitoire. Non seulement à cause des variations temporelles des conditions aux limites telles que les fluctuations du taux de recharge mais aussi à cause des forçages d'origine anthropique. Citons notamment le pompage et la recharge artificielle. Ces variations ont lieu à différentes échelles de temps allant de la journée au siècle ou plus, en passant par la saison. Considérant le seul effet d'un pompage, des modifications majeures des écoulements tant dans leur organisation que dans leur magnitude, et donc du transport, sont attendues.

Malgré une très large utilisation des traceurs environnementaux depuis plus d'une décennie, ceux-ci n'ont été que très rarement utilisés en conditions transitoire. Pourtant, en tant que donnée intégratrice du champ de vitesse le long de lignes d'écoulement, les âges apparents sont censés refléter et être sensibles aux conditions d'écoulement passées et à différentes échelles de temps.

Dans l'article du Chapitre 4, ces données ont été utilisées en condition permanente. Dans cette étude, la gamme des temps de résidence allait au moins au-delà du siècle. Pourtant, le pompage du site de Plœmeur, à un taux étonnamment élevé depuis deux décennies, est typiquement un événement transitoire. Considérant ceci, toutes les masses d'eau migrant avec un temps de résidence supérieur à 20 ans sont théoriquement affectés par le changement de régime brusque lié à la mise en route du pompage. A moins de prouver l'absence d'effet du régime d'écoulement, l'intégration des données d'âge dans un modèle impose des conditions en flux transitoires.

Dans cette étude, nous reconsidérons donc l'utilisation des données d'âge apparent au puits de pompage, déduites des concentrations en CFC-11, CFC-12, CFC-113 et SF_6, en conditions transitoires induites par le démarrage instantané d'un pompage. Nous réutilisons les modèles hydrogéologiques de Plœmeur initialement calés sur la charge au puits de pompage en régime permanent pompé (Leray et al., 2012). Cette étude est donc aussi l'occasion d'analyser le contenu informationnel des chroniques d'âge apparent. Qui dit conditions transitoires dit suivi dans le temps des données d'âge apparent au puits de pompage.

L'article est organisé comme suit : après une introduction (section 1), une partie (section 2) est dédiée aux modèles hydrogéologiques, d'écoulement et de transport (Leray et al., 2012). Elle présente notamment les choix liés à la gestion du transitoire. Les résultats sont ensuite présentés en section 3. Cette partie contient une analyse détaillée des facteurs influençant l'évolution temporelle de l'âge apparent ainsi qu'une quantification de leur rôle respectif. La partie discussion (section 4) discute, en premier lieu, l'apport supplémentaire d'information induit par le caractère transitoire de la donnée d'âge et compare, en second lieu, les résultats des modèles aux données du site de Plœmeur.

5.2. *Temporal evolution of age data under transient pumping conditions* (article soumis)[5]

Paper submitted to Journal of hydrology

Sarah Leray [a], Jean-Raynald de Dreuzy[a, b]

[a] Géosciences Rennes (UMR 6118 CNRS), Université de Rennes 1, Campus de Beaulieu, 35042 Rennes cedex, France

[b] IDAEA (CSIC), c/ Jordi Girona, 08034, Barcelona, Spain

Key words: groundwater age, residence time distribution, environmental tracers, chlorofluorocarbons, heterogeneous aquifers, transient flow conditions

[5] Les numéros de figure et de section ainsi que leurs renvois sont propres à l'article. Seule la numérotation des pages est relative à ce manuscrit.

Abstract

While most age data derived from tracers have been analyzed in steady-state flow conditions, we determine their temporal evolution under transient pumping conditions. Starting pumping in a well modifies the natural flow patterns induced by the topographical gradient to a mainly convergent flow to the well. Our study is based on a set of models made up of a shallowly dipping aquifer overlain by a less permeable aquitard. These settings are characteristic of the crystalline aquifer of Plœmeur (Brittany, France) located in a highly fractured zone at the contact between a granite and micaschists. Under a pseudo steady-state flow assumption (instantaneous shift between two steady-state flow fields), we solve the transport equation with a backward particle-tracking method and determine the temporal evolution of the concentrations at the pumping well of the four atmospheric tracers CFC-11, CFC-12, CFC-113, SF_6. Apparent ages deduced from these concentrations evolve both because of the flow patterns modifications and because of the non-linear evolution of the atmospheric tracer concentrations. Flow patterns modifications only intervene just after the start of pumping, when the initially piston-like residence time distribution is transformed to a broader distribution mixing residence times from a wide variety of flow lines. Apparent ages are later solely altered by the non-linear atmospheric concentrations of the tracer that progressively modifies the weighting of the residence time distribution. We argue that both evolutions provide key information that can be further used for the characterization of the hydrogeological system. These results are confirmed by the observations at the site of Plœmeur in the pumping area. Long term chloride observations confirm the quick evolution of the flow patterns after the start of pumping. Posterior and more recent evolutions of apparent ages derived from CFCs are consistent with the modeling results revealing in turn the marginal effect of the 20-year pumping on the first 70 years of the residence time distribution.

1. Introduction

Groundwater flow is by nature transient, mainly because of the temporal variations of boundary conditions such as the variations of recharge over different time scales (seasons, decades, centuries or more). Also, anthropogenic forcings such as pumping or artificial recharge are additional sources of flow temporal variability. Particularly, pumping is expected to have a significant impact on flow patterns and on solute transport. It is likely to increase the supplying volume of the sampled zone and the extension of the recharge area (Bredehoeft, 2002; Frind et al., 2005). It will as well quicken flows, induce more radial velocity field and modify the relative role of structures hydrodynamic properties and the boundary conditions – increasing the recharge rate for instance. Environmental tracers have been widely used for water sources identification, estimation of the residence times and models calibration (Castro et al., 1998; Cook et al., 2005; Long and Putnam, 2009; McMahon et al., 2010; Stichler et al., 2008). As an integration of the velocity field along flow paths, they reflect flow conditions over various time scales in the past. They are sensitive to transient phenomena affecting the flow field. More precisely, they are sensitive to transient phenomena occurring over time scales comparable to their characteristic time (Zuber et al., 2011). For instance, chlorofluorocarbons are only affected by transient phenomena that have occurred in the last 70 years. In addition, they are affected over extended periods of time even after steady-state flow conditions have been recovered (Newman et al., 2010).

Yet, very few studies have used environmental tracers in transient flow conditions. Sanford et al. (2004) have reconstructed transient recharge rates using ^{14}C data in the regional alluvial middle Rio Grande Basin. Schwartz et al. (2010) have noticed that the interpretation of ^{14}C age in transient flow models can be ambiguous in terms of flow patterns as data distributed over the aquifer reflect different flow conditions. Long and Putnam (2009) have incorporated

CFCs and ^{3}H data from a karstic system in binary mixing model with dilution allowing parameters to vary with time. Fewer studies have analyzed the role of transient flow conditions on residence time distribution. Using numerical simulations, Troldborg et al. (2008) have showed the effect of recharge seasonality on residence time distribution. In the shallowest part of the studied heterogeneous aquifer, residence times tend to be smaller than in steady-state flow conditions while they tend to be higher in the deepest part of the aquifer. The effect in a fully-penetrating well is however negligible. Zinn and Konikow (2007) have analyzed the effect of pumping on a synthetic configuration composed of an aquifer overlain by an aquitard. Their study revealed important changes of the mean residence time at the pumping well and of the residence time distribution over long periods of time. Changes only come from the modification of the flow patterns as they solely focused on the mean residence time and not on the apparent ages obtained from tracers.

In this study, we determine the influence of transient groundwater flow patterns induced by anthropogenic forcings on environmental tracers concentrations (CFC-11, CFC-12, CFC-113 and SF_6) interpreted in apparent ages. We consider that transient flow patterns are induced by the instantaneous start of a pumping well. Tracers concentrations are reported at the pumping well. Our study is based on the hydrogeological setting of Plœmeur, which is a well documented aquifer where water has been produced for two decades for the water supply of the nearby city (Le Borgne et al., 2004; Le Borgne et al., 2006; Ruelleu et al., 2010; Touchard, 1999). We use hydrogeological models previously calibrated on the hydraulic head at the pumping well in steady-state flow conditions under pumping (Leray et al., 2012) and determine the effect of transient flow conditions on apparent ages. After recalling in section 2 the hydrogeological, flow and transport models, we present the results in section 3 and discuss them in section 4.

2. Hydrogeological, flow and transport models

We successively describe the hydrogeological model of Plœmeur that will be used as a basis of this study, the flow and the transport models as well as the numerical methods used. We finally comment in details the derivation of the tracer concentration and the corresponding apparent age to highlight the possible causes of apparent age variations.

2.1. Hydrogeological model

The study of the effects of transient flow conditions, induced by pumping, on age data is based on the Plœmeur aquifer, a highly heterogeneous hard-rock aquifer located on the south coast of Brittany near the city of Lorient (France). A previous study based on the inversion of gravimetric data has established a geological conceptual model (Ruelleu et al., 2010). This conceptual model is composed of two transmissive structures at large scale, the dipping contact zone and a North 20° normal fault, besides the Plœmeur and Guidel granites and overlying micaschists acting as a typical aquitard. Local heterogeneities are not represented in the models. The supplying area to the pumping well which amounts to a few square kilometers is limited in the North-South direction these two granites. The pumping rate thus has a strong impact on flows within this heterogeneous aquifer.

A relatively large uncertainty on the dipping of the contact zone remains resulting in a large uncertainty on the overall thickness of the system. Three structural models, named shallow, medium and deep (Figure 1 of Leray et al. (2012) and Table 1), have been built following this conceptual geological model and have been checked against the piezometric level measured at the pumping well (-5.5 masl) in steady-state flow under pumping conditions (Leray et al., 2012). The three structural models have been successfully calibrated by slightly adjusting the contact zone transmissivity previously estimated from long-term pumping tests (Le Borgne et

al., 2006). We use these calibrated hydrogeological models here to assess the influence of transient flow conditions on tracer apparent ages and to determine the information content of the time-dependent age data. While our objective is more methodological than targeted to a specific site, the Plœmeur aquifer offers a complex and yet realistic hydrodynamic context.

Table 1 synthesizes the parameters of the hydrogeological model, their range of values and their origin. The potential recharge rate R is set at 200 mm per year, based on previous estimations (Carn, 1990; Leray et al., 2012; Touchard, 1999). The hydraulic properties of the different rocks are either set to common values as for the granites which are found almost impervious (10^{-11} m/s), measured as for the micaschists (10^{-7} m/s – $5x10^{-6}$ m/s) or calibrated as for the contact zone ($1.9x10^{-3}$ m^2/s – $3x10^{-3}$ m^2/s). Our study has been carried out on a set of representative models calibrated on the hydraulic head at the pumping well and differing by their structure, their micaschists permeability and their porosity. Four representative models have been chosen. The first three models (Table 1) are calibrated on the hydraulic head at the pumping well while the fourth one is also calibrated on the CFC-12 age at the pumping well (30 years ± 1 year in 2009) assuming steady-state flow conditions under pumping.

2.2. Flow model

Transient flow conditions are induced by starting a pumping well. The transient pumping rate $Q_w(t)$ is a step function going from zero before the starting time t_{switch}, to a positive value Q_p (Figure 2b):

$$Q_w(t) = \begin{cases} 0 & t < t_{switch} \\ Q_p & t \geq t_{switch} \end{cases}. \quad (1)$$

In the particular case of the site of Plœmeur, t_{switch} is set at 1994 and Q_p at 3.36×10^{-2} m^3/s. We solve the 3D diffusivity equation for the hydraulic head $h(\boldsymbol{x}, t)$ with free surface boundary conditions under a pseudo steady-state flow approximation:

$$\nabla.(K(\boldsymbol{x})\nabla h(\boldsymbol{x},t)) = 0 \quad (2)$$

$$\left.\begin{array}{ll} K(\boldsymbol{x})\nabla h(\boldsymbol{x},t)\cdot\boldsymbol{n} = -R \quad \& \quad h(\boldsymbol{x},t) = z(\boldsymbol{x}) & \text{where } h < z_{\text{ground}} \\ h = z_{\text{ground}} & \text{anywhere else} \end{array}\right\} \text{ on } \Gamma_s \quad (3)$$

$$\nabla h(\boldsymbol{x})\cdot\boldsymbol{n} = 0 \qquad \text{on } \Gamma_{\text{west}} \text{ and } \Gamma_{\text{east}} \quad (4)$$

$$h(\boldsymbol{x}) = z_{\text{ground}} - z_0 \quad \text{on } \Gamma_{\text{north}} \text{ and } \Gamma_{\text{south}} \quad (5)$$

$$\int_{\Gamma_w} K(\boldsymbol{x})\nabla h(\boldsymbol{x},t)\cdot\boldsymbol{n_w}\, d\Gamma_w = Q_W(t) \quad \text{sink term} \quad (6)$$

where $K(\boldsymbol{x})$ is the hydraulic conductivity; $\boldsymbol{n}$ is the outgoing normal to the saturated domain; R is the potential recharge rate; z_{ground} is the ground surface elevation; Γ_s is the top of the saturated domain; Γ_{west}, Γ_{east}, Γ_{north} and Γ_{south} are respectively the West, East, North and South sides of the domain; z_0 is a reference height; $\boldsymbol{n}_w$ is the ingoing normal to the well screen; Γ_w is the well screen surface and $Q_w(t)$ is the transient pumping rate defined in equation 1 and located at $\boldsymbol{x}_w$. The pseudo steady-state approximation intervenes in equation 6 and consists in assuming that steady-state flow conditions are quickly established compared to the solute transport evolution. This is a reasonable approximation of transient flow conditions valid at low specific storage and with the advantage of being less costly numerically. Practically, it consists in ignoring the transition between two steady-state velocity fields under ambient and pumping conditions.

Equation 2 is solved in unconfined conditions since seepage conditions are *a priori* not known. Unconfined conditions are satisfied through both conditions at the free surface boundary of equation 3. When the free surface level is below the ground surface level, the effective recharge rate is equal to the potential recharge rate R; anywhere else, the free surface level is set at z_{ground} and the effective recharge rate continuously evolves from negative values in the discharge zone to positive potential recharge rate R. No-flow conditions are applied on the West and East boundaries (Equation 4). Imposed heads, set at depth z_0 (5 meters below the ground surface level), are applied to the South and the North boundaries without any significant influence on the system (Equation 5).

2.3. Transport model

Transport is considered only advective as the macro-scale dispersion from local dispersion and diffusion is assumed to have a much smaller effect compared to the macro-scale dispersion induced by structural heterogeneity and sampling (LaBolle and Fogg, 2001). The advection equation is solved in backward-time τ that consists in reversing the flow field and adapting the boundary conditions (Neupauer and Wilson, 1999; Neupauer and Wilson, 2001; Neupauer and Wilson, 2002).

$$-\frac{\partial \psi^*(\boldsymbol{x},\tau)}{\partial \tau} + \nabla.\left(\frac{\boldsymbol{q}(\boldsymbol{x},\tau)}{\theta}\psi^*(\boldsymbol{x},\tau)\right) + \delta(x_w)\delta(\tau) = 0 \quad (7)$$

$$\psi^*(\boldsymbol{x},\tau = 0) = 0 \quad (8)$$

$$\psi^*(\boldsymbol{x},\tau) = 0 \quad \text{on } \Gamma_1 \quad (9)$$

$$(\psi^*(\boldsymbol{x},\tau)\boldsymbol{q}(\boldsymbol{x},\tau)).\boldsymbol{n} = 0 \quad \text{on } \Gamma_2 \quad (10)$$

with $\psi^*(\boldsymbol{x},\tau)$ the adjoint-state at position $\boldsymbol{x}$ and backward-time τ; θ the effective porosity; $\boldsymbol{x}_w$ is the sampling point *i.e.* the pumping well in this study; $\boldsymbol{n}$ is the outgoing normal to the

149 saturated domain and $\boldsymbol{q}(\boldsymbol{x},\tau)$ the pseudo steady-state Darcy's flux derived from the head field
150 $h(\boldsymbol{x},\tau)$:

$$\boldsymbol{q}(\boldsymbol{x},\tau) = -K(\boldsymbol{x})\nabla h(\boldsymbol{x},\tau). \quad (11)$$

151 Equation 7 is the adjoint of the advection equation. Equation 8 is the initial condition in
152 backward-time. Equations 9 and 10 are the boundary conditions corresponding respectively to
153 a first-type boundary (Γ_1) - such as the free surface boundary - and to a second-type boundary
154 (Γ_2) of the forward equation. The origin of the backward-time τ is set at the sampling time t_w
155 and relates to the chronological or forward time t:

$$\tau = t_w - t. \quad (12)$$

156 As time is reversed, pumping conditions corresponding to the extraction rate Q_p precede
157 ambient ones corresponding to the zero extraction rate.

158 2.4. Numerical methods

159 The unconfined flow equations are solved using a computationally effective finite-volume
160 approach with a local adaptation scheme (Bresciani et al., 2011). To solve the transport
161 equations, we use a Lagrangian random walk method well-suited to purely advective transport
162 (de Dreuzy et al., 2007; Kinzelbach, 1988) and adapted to the unconfined conditions. We
163 inject $5x10^6$ particles proportionally to flow (Kreft and Zuber, 1978) at the pumping well cell
164 and tracked them to the aquifer free surface. The number of injected particles is determined
165 through a convergence test of the mean and variance of the residence times. Flow and
166 transport simulations are carried out using the H2OLAB platform (Bresciani et al., 2011;
167 Erhel et al., 2008; Erhel et al., 2009).

2.5. Computation and temporal evolution of apparent age

We derive the backward residence time probability $p(\tau)$ from the flux of the adjoint-state through the surface Γ_s according to:

$$p(\tau) = \int_{\Gamma_s} q(\boldsymbol{x},\tau)\psi^*(\boldsymbol{x},\tau)d\Gamma_s. \quad (13)$$

The backward residence time distribution $p(\tau)$ is the probability that a solute parcel sampled at $\boldsymbol{x}_w$ at backward time $\tau = 0$ was located at backward-time τ at any recharge location $\boldsymbol{x}$ of the surface Γ_s. From this backward residence time distribution, we derive the recharge time distribution $f_{tw}(t)$ defined as the probability that a solute parcel sampled at $\boldsymbol{x}_w$ and at time t_w has entered the aquifer at time $t = t_w - \tau$ at any location $\boldsymbol{x}$ of Γ_s. The recharge time distribution is simply obtained by temporal reversal ($+t$) and by translation of $-t_w$ of the backward residence time distribution:

$$f_{t_w}(t) = p(\tau = t_w - t). \quad (14)$$

We note that the recharge time distribution differs from other concepts of groundwater age and life expectancy (Cornaton and Perrochet, 2006). The mean concentration C_w at the pumping well and at the sampling time t_w is determined by the convolution of the residence time distribution $p(\tau)$ with the atmospheric concentration $C_{in}(t)$ of the concerned tracer (Kreft and Zuber, 1978; Maloszewski and Zuber, 1982):

$$C_w = \int_{-\infty}^{t_w} C_{in}(t)p(t_w - t)dt = \int_{-\infty}^{t_w} C_{in}(t)f_{t_w}(t)dt. \quad (15)$$

The apparent age A (Nir, 1964) of the tracer at the pumping well $\boldsymbol{x}_w$ and the sampling time t_w is then obtained from the difference between t_w and the time at which the concentration C_w is equal to the atmospheric concentration:

$$A(t_w) = t_w - C_{\text{in}}^{-1}(C_{\text{w}}) = t_w - C_{\text{in}}^{-1}\left(\int_{-\infty}^{t_w} C_{\text{in}}(t) f_{t_w}(t)dt\right), \quad (16)$$

186 with C_{in}^{-1} the reciprocal function of the atmospheric concentration. Equation 16 shows the two
187 possible causes of the variation of age A with the sampling time t_{w}. The first cause is the
188 evolution of the recharge time distribution $f_{\text{tw}}(t)$ with t_{w} because of the modification of flow
189 conditions that can be traced back to equation 1 through equations 2-13. The shift from
190 ambient to pumping conditions does not only change the flow magnitude but also the flow
191 patterns, the recharge and discharge locations as well as the water mixture within the radius of
192 action of the well (Bredehoeft, 2002). This first cause is solely linked to the flow conditions
193 and does not depend on the tracer characteristics.

194 The second cause of the age variation directly comes from the atmospheric tracer
195 concentration $C_{\text{in}}(t)$ through the convolution of equation 15. The non-linear temporal
196 evolution of C_{in} modifies the sampling of the recharge time distribution $f_{\text{tw}}(t)$. Steeper
197 evolutions of C_{in} characteristic of the SF_6 and CFCs before the 1990s increase the weight of
198 the higher recharge times in the sampling of the recharge time distribution. Flatter evolutions
199 characteristic of the CFCs after the 1990s on the other hand give a more equilibrated
200 contribution of the recharge times later than 1990. This effect also occurs in the absence of
201 modification of the flow patterns (Troldborg et al., 2008; Waugh et al., 2003; Zhang, 2004).
202 Even under steady-state flow conditions, the non-linear evolution of the atmospheric
203 concentration $C_{\text{in}}(t)$ lets the sampled concentration evolve. Under simpler terms, the evolution
204 of the sampled concentration does not only come from the evolution of the system but also
205 from the modification of the "observation device" (C_{in}).

206 It should be noted that this second effect is irrelevant when sampling a unique flow line like
207 within the framework of the piston-flow model. In such cases, the recharge time distribution

208 $f_{tw}(t)$ resumes to a Dirac and the dependency to the atmospheric tracer concentration vanishes
209 in equation 16 because of the direct transformation of C_{in} by C_{in}^{-1}. This effect is, however,
210 very relevant close to the aquifer discharge zones (springs, wells) where mixing of flow paths
211 is maximal. The mixture of sampled flow lines enhances the importance of the non-linear
212 evolution of C_{in}. The case studied here pertains more to this second situation, in which,
213 finally, both the temporal evolutions of the recharge time distribution $f_{tw}(t)$ and the
214 atmospheric tracer concentration C_{in} can modify the sampled concentration and the derived
215 age A (equation 16).

216 To analyze the temporal evolution of apparent ages, we have determined them using equation
217 16 by convoluting the pseudo steady-state recharge time distributions $f_{tw}(t)$ with the CFC-11,
218 CFC-12, CFC-113 and SF_6 atmospheric concentrations at the evolving sampling times t_w : t_w^1
219 = 1994, t_w^2 = 1995, t_w^3 = 1999, t_w^4 = 2004 and t_w^5 = 2009. These times correspond respectively
220 to sampling 0, 1, 5, 10 and 15 years after the change of flow conditions from ambient to
221 pumping conditions occurring at t_{switch} =1994.

222 3. Results

223 We first report the temporal evolution of the tracer apparent ages at the pumping well for the
224 different hydrogeological models of the site of Plœmeur described in section 1 before
225 analyzing the respective effects of the modification of the flow patterns and of the evolution
226 of the atmospheric tracer concentration.

227 3.1. Temporal evolution of apparent age

228 Figure 1 shows the temporal evolution of the apparent ages for CFC-11, CFC-12, CFC-113
229 and SF_6 at sampling times t_w ranging from 1994 (ambient conditions) to 2009. At first sight,
230 apparent ages are similar for the three models in spite of their differences in structure,

micaschists permeability K_{MS} and porosity φ. Apparent ages increase first sharply after the start of pumping and then more smoothly. We indeed expect that modifications of flow are maximal just after the start of the pumping and later decrease. Figure 1 also shows the marked influence of the tracer atmospheric concentration $C_{in}(t)$ through the differences of apparent ages derived from the CFCs and SF_6. The temporal evolution is minimal for SF_6 because of the almost linear increase of its atmospheric concentration and maximal for the CFC-11 because of its strongly and non-monotonically varying atmospheric concentration (IAEA, 2006). CFC-11 and CFC-12 display similar variations because of the proximity of their atmospheric concentrations chronicle shape.

That the apparent ages increase and not decrease is counterintuitive. Indeed pumping is speeding up the flows and should supposedly lower the apparent ages. Further insight is given by the analysis of the full recharge time distribution $f_{tw}(t)$ (Figure 2a). The system sampled at t_w^1 under ambient condition yields a recharge time distribution that strongly differs from the pseudo steady-state ones sampled after pumping started. More precisely, $f_{tw}(t)$ goes from a narrow piston-like distribution at t_w^1 (violet curve) to a much broader, more exponential-like, distribution after the start of pumping. The broadening of the distribution comes from the shift of status of the sampling zone. Under ambient conditions, it is a standard zone within the aquifer traversed by just a few flow lines. Under pumping conditions, it is one of the major discharge zones of the aquifer that focuses a dense net of flow lines. As a consequence, the dispersion of the apparent ages obtained from the different tracers (Figure 1) is minimal under ambient conditions and sharply increases with time as the recharge time distribution broadens. The broader recharge time distribution includes both earlier and later recharge times than the piston-like one. In the case of the site of Plœmeur, earlier recharge times eventually control the apparent ages. For sampling times later than one year after the pumping started ($t_w \geq 1995$), the recharge time distribution becomes visually independent of t_w (Figure 2a) and sampled

concentrations seem to be more influenced by the temporal evolution of the atmospheric tracer concentrations $C_{in}(t)$ and less by the evolution of the recharge time distribution.

3.2. Effect of the temporal evolution of the recharge time distribution

To assess the role of the temporal evolution of the recharge time distribution, we filter out the evolution of the atmospheric tracer concentration. To this end, we translate all recharge time distributions $f_{tw}(t)$ to the same sampling time t_w^t, the exponent "*t*" standing for translated. The recharge time distributions $f_{tw}(t)$ are shifted along the time axis by a translation of $t_w^t - t_w^i$ without any modification of their shape:

$$g_{t_w^t - t_w^i}(t) = f_{t_w}\left(\mathrm{t} + t_w^t - t_w^i\right) = p\left(\tau = t_w^i - t\right), \qquad (17)$$

with t_w^i referring to the time at which the sampling initially takes place. The apparent age determination is modified accordingly:

$$A\left(t_w^t - t_w^i\right) = t_w^t - C_{\mathrm{in}}^{-1}\left(\int_{-\infty}^{t_w^t} C_{\mathrm{in}}(t)\, g_{t_w^t - t_w^i}(t)\, dt\right). \qquad (18)$$

Equation 18 replaces equation 16 and filters out most of the effect of the atmospheric tracer concentration $C_{in}(t)$ to highlight that of the evolution of the flow patterns. The apparent ages are noted $A(t_w^t - t_w^i)$ recalling that they are obtained after a translation of the recharge time distributions.

Figure 3illustrates this transformation by displaying the recharge time distribution $g_{t_w^t - t_w^i}(t)$ of the model n°4 (Table 1) in the case of a translated sampling time t_w^t equal to $t_w^5 = 2009$. As for Figure 2a, the recharge time distribution broadens just after the pumping start (from t_w^1 to t_w^2 *i.e.* from the purple curve to the red one). The change of the recharge time distribution

appears limited for sampling times later than $t_w^2 = 1995$ (*i.e.* for the red, orange, green and blue curves of Figure 3). At recharge times between $t_w^t - 1 = 2008$ and $t_w^t = 2009$, the distributions are strictly equal. At earlier recharge times, they do not strongly differ.

More quantitatively, we compare the apparent ages obtained with the various recharge time distributions $g_{t_w^t - t_w^i}(t)$ translated to the sampling time $t_w^t = t_w^5 = 2009$ for the model n°4. The apparent ages are derived from equation 18 and are noted $A(t_w^5 - t_w^i)$. Apparent ages for the steady-state ambient model strongly diverge from that of the other models (Figure 4), because the recharge time distributions shifts from a Gaussian piston-like shape to a much broader one. After one year of pumping, recharge time distributions do not diverge enough to affect the convolution from equation 18 and the apparent ages which are almost identical (Figure 4). We have checked that other translated sampling times ($t_w^t = t_w^1 = 1994$, $t_w^t = t_w^2 = 1995$, $t_w^t = t_w^3 = 1999$ and $t_w^t = t_w^4 = 2004$) lead to the same conclusions.

3.3. Effect of the temporal evolution of the atmospheric concentration

To assess the influence of the tracer atmospheric concentration $C_{in}(t)$ independently of the flow patterns modifications, we compute the apparent ages for five translated sampling time t_w^t (1994, 1995, 1999, 2004 and 2009) convoluted with the same recharge time distribution taken at t_w^i. This transformation should not be confused with the previous one. In the previous section, we used the atmospheric concentration chronicles at a unique sampling time and the recharge time distributions translated to that sampling time while we use here the atmospheric concentration chronicles at various sampling times for a single recharge time distribution translated to these sampling times. Figure 5 illustrates this handling for $t_w^i = t_w^2 = 1995$. The depicted distributions are noted $g_{t_w^t - t_w^2}(t)$ recalling that they are obtained after a translation

of the recharge time distribution initially arising at t_w^2. For the steady-state ambient model (initially arising $t_w^i = t_w^1 = 1994$), the evolution of $A(t_w^t - t_w^1)$ with t_w^t remains very small (Figure 6a) because of the restricted dispersion of the recharge time distribution (purple curve of Figure 2a). It would be strictly equal to zero for a pure piston-flow model. For broader recharge time distributions corresponding to the pseudo steady-state case sampled at $t_w^i = t_w^2 = 1995$ (Figure 6b) and the steady-state under pumping case (Figure 6c), the apparent ages strongly evolve with the sampling time. The weighting of the recharge time distribution progressively evolves with time and yields different ages consistently with Figure 1. Similar results have been found for the pseudo steady-state models sampled at $t_w^3 = 1999$, $t_w^4 = 2004$ and $t_w^5 = 2009$.

To gain more insights into the sensitivity of the apparent age A to the sampling time t_w, we derive analytically the derivative of the apparent age with the sampling time $A'(t_w)$ (Appendix A) and compute it for the complex model n°4 and two exponential recharge time distributions (with a characteristic time $t_w - \bar{t}$ equal to 10 years and 100 years) (Figure 7). $A'(t_w)$ is systematically positive indicating an increasing trend of the apparent age. The rate of increase depends both on the recharge time distribution and on the tracer showing that the temporal signal could be used as a further way to differentiate between models.

We are thus showing two well-differentiated regimes of apparent age evolution. The first regime occurs just after starting the pumping. The recharge time distribution shifts from a restricted distribution to an extended one. It has a major effect on apparent ages. Relatively parallel flow lines under ambient conditions become convergent under pumping inducing the enlarging of the recharge time distribution. By comparison, on such quick transitions, the effect of the atmospheric concentration evolution is negligible. It occurs quickly also because of the pseudo steady-state assumption. It would be smoother by considering a progressive increase of the pumping rate and a fully transient flow field. The second regime occurs after

the first year of pumping. The recharge time distribution marginally changes without any marked effect on the apparent ages. On these longer periods of time (decades), the dominant effect is that of the non-linear evolution of the atmospheric concentration. If the second regime is smoother than the first one, it still leads to a similar total variation of ages.

4. Discussion

We first discuss the potential interest of these two successive evolutions of apparent ages to characterize the flow patterns and secondly compare these modeling results to the available data on the site of Plœmeur.

4.1. Information contained in the transient evolution of apparent ages

The temporal evolution of apparent ages contains information on the hydrogeological system, additional to information contained in the tracer concentrations analyzed at a single time. Yet, information is largely different between the two evolutions identified in sections 3.2 and 3.3. The first evolution is the rapid shift when starting pumping from a restricted recharge time distribution to an extended one. The former can be typically fitted by an inverse Gaussian model characterizing mainly a distance to recharge divided by a recharge rate (Ginn et al., 2009; Woolfenden and Ginn, 2009). Note that we may also observe a higher sensitivity of apparent ages to heterogeneity at local scale in the case of a residence time distribution characterizing only a few short flow paths. Apparent ages and associated information can strongly depend on the model and more precisely of the local scale heterogeneities (Varni and Carrera, 1998). The latter characterizes more globally the aquifer volume and the overall recharge rate (Leray et al., 2012). Almost independent and useful pieces of information can

thus be obtained using the same well before and after the start of pumping. It underlines the interest of a continuous concentration sampling.

The second evolution is smoother and comes from the non-linear evolution of the atmospheric tracer concentration which performs a progressive sampling of the recharge time distribution. It is as if this non-linear evolution progressively increases the number of tracers. The differences observed in Figure 1 on the temporal evolution of apparent ages between the aquifer models confirm the existence of additional information. It can be used for instance as an additional tool to segregate models. Additional information contained in the transient apparent age signal could be more quantitatively assessed using an inverse Bayesian approach with a progressive extension of the available transient time signal (Massoudieh et al., 2012). Such additional information is especially valuable for determining the full residence time distribution beyond mean unrelated and variable apparent ages (Eberts et al., 2012). Using the temporal evolution of the apparent ages signal likely yields a different piece of information from the spatial apparent age distribution more sensitive to the local hydrodynamic structures and parameters (Ginn et al., 2009; Leray et al., 2012). Both the spatial distribution and the temporal evolution could thus be used complementarily to characterize the aquifer structures at different scales.

4.2. Comparison to field observations on the site of Plœmeur

Figure 8 shows the temporal evolution of the apparent ages obtained from CFC-11, CFC-12 and CFC-113 data at the pumping well on the site of Plœmeur from the available observation range (2004-2009). The previous models suggest that with negligible temporal change of the recharge time distribution the apparent age should continuously increase whatever the tracer and within the time interval 2000-2010. Comparison between data (Figure 8) and models (Figure 1) shows opposite trends for CFC-11 and CFC-113. The only common increasing

369 trend is obtained for CFC-12. Part of the observed discrepancies may arise from the
370 modification of the sampling method between 2004-2005 and 2007-2009 (from a dump-bailer
371 sampler to a pump sampling) that prevents from comparing ages altogether. Yet, the tracer
372 ages at the 100-m scale around the pumping clearly show a few-year increase from 2006 to
373 2010 (Table 2). As the age increase is similar in terms of magnitude (a unit slope) to that of
374 the models, the tracer age evolution in that discharge area mainly comes from the temporal
375 evolution of the atmospheric concentration weighting. The flow patterns and the resulting
376 recharge time distribution in the pumping zone are in turn not expected to vary significantly
377 after 2006.

378 Earlier flow conditions, and particularly initial ones *i.e.* just before the pumping started, are
379 more difficult to constrain on the site of Plœmeur because of the lack of environmental tracers
380 monitoring before 2006. Contrary to CFCs and SF_6 data, chloride and nitrate concentrations
381 have been monitored on a longer time range starting at 1991 (Figure 9). Because of reactivity
382 processes and their evolution with time, the nitrate chronicle can give only partial information
383 on the circulations. Its non-negligible initial concentration (roughly 15 mg/l) before the start
384 of pumping indicate short residence times consistent with the local recharge area and the short
385 flow paths obtained in the models. Chloride has the advantage of being conservative and
386 being characteristic of deeper waters and thus a good indicator of the flow patterns and their
387 evolution. It displays a sharp increase during the first two years of pumping (1^{st} phase of
388 Figure 9), a very slight increase for the next ten years (2^{nd} phase of Figure 9) and finally
389 stabilizes after 2005 (3^{rd} phase of Figure 9). The first phase is consistent with the previous
390 modeling result of a quick transition from the piston-like residence time distribution to the
391 more extended one. The short duration of the first phase is consistent with the fast temporal
392 evolution of the recharge area (Figure 10). Before pumping, the recharge area is a small zone
393 upstream of the well (purple line). It quickly expands to a much larger area around the well

only after one year of pumping (red line). Actually, the pumping well collects water that naturally discharged in wetlands next to it and transforms a wide discharge zone to a point-like one.

The 2nd phase corresponds to a slight increase of the chloride concentration (Figure 9). This increase does not come from the changes of the recharge area induced by the evolution of flow patterns, in this case marginal (from green to blue curves in Figure 10). It more likely comes from the modification of the deep water fraction which is due to the main aquifer - *i.e.* the contact zone - that dips quasi-vertically at about 1,500m from the pumping well (Ruelleu et al., 2010). Its evolution only affects residence times earlier than 1940 and cannot consequently be detected by atmospheric gases. Finally, the stabilization of the chloride concentration (3rd phase of Figure 9) confirms the apparition of a new steady-state regime already hinted by the similarities of the recharge time distributions in pseudo steady-state flow and steady-state under pumping flow conditions (Figure 2a).

5. Conclusion

We have analyzed the temporal evolution of apparent ages in a complex aquifer under pumping based on CFCs and SF_6 concentrations measured at the pumping well. This study is based on a complex aquifer in crystalline rocks (Plœmeur) formed at a shallowly dipping contact zone between a granite and overlying micaschists and produced in its outcropping part. Transport simulations have been carried out under a pseudo steady-state unconfined flow assumption which consists in an instantaneous shift between two steady-state flow fields.

The evolution of apparent ages at the pumping well with time can come from (1) the transient nature of flow conditions and (2) the transient evolution of the atmospheric concentrations. To identify the respective role of these two sources, we performed two handlings. First, we convoluted at the same sampling time - *i.e.* with the same atmospheric concentration

418 chronicle - various recharge time distributions initially arising at different times. Second, we
419 convoluted one recharge time distribution at various sampling times - *i.e.* with various
420 atmospheric concentration chronicles. We identified two well-differentiated regimes of
421 apparent age evolution, each one being controlled by one of these two sources. The first
422 regime was related to the transient effect of flow conditions and occurred just after the start of
423 pumping. It quickly vanished after one year of pumping to give way to the sole effect of the
424 transient evolution of the atmospheric concentrations. In this second regime, the recharge time
425 distribution marginally changed. While these two regimes differ both in their origin and in the
426 time at which they occur, they were comparable in terms of amplitude. The modeling results
427 have been compared with the data of the site of Plœmeur in the pumping area. Recent
428 apparent ages evolutions derived from CFCs are consistent with the modeling results
429 revealing a marginal evolution of the residence time distribution. Initial nitrate concentration
430 also confirms the initial flow patterns consisting in a residence time distribution composed of
431 short and similar residence times. Finally, long term chloride observations confirm the quick
432 evolution of the flow patterns after the start of pumping and the insignificant long-term
433 evolution of the residence time distribution.

434 We conclude that the temporal evolution of apparent ages should be used with great care for
435 identifying the temporal evolution of the flow patterns. Conversely, a steady apparent age
436 does not necessarily indicate a steady flow regime. Nonetheless, the temporal evolution of
437 apparent ages based on environmental tracers concentrations may be advantageously used to
438 segregate models. The transient evolution of the tracer atmospheric concentrations may be
439 seen as one of the ways to compensate for the small number of tracers.

Annex A

We determine the apparent age variation by computing the derivative of the apparent age $A(t_w)$ with respect to the sampling time t_w as given by equation 16. The apparent age derivative is generically derived as a function of the derivative of the input concentration $C_{in}'(t)$:

$$A'(t_w) = 1 - \frac{\int_{-\infty}^{t_w} C'_{in}(t) f_{t_w}(t) dt}{C'_{in}\left(C_{in}^{-1}\left(\int_{-\infty}^{t_w} C_{in}(t) f_{t_w}(t) dt\right)\right)}. \quad (A.1)$$

To get some insights from the last equation, we apply it to particular cases. For a linear increase of $C_{in}(t)$,

$$C_{in}(t) = \begin{cases} \alpha(t - t_0) & if\ t \geq t_0 \\ 0 & if\ t < t_0 \end{cases}, \quad (A.2)$$

with t_0 the time of apparition of the tracer in the atmosphere, $A'(t_w)$ simplifies to the elementary expression:

$$A'(t_w) = \int_{-\infty}^{t_0} f_{t_w}(t) dt. \quad (A.3)$$

If the recharge times are later than the apparition date of the tracer t_0, then $A'(t_w)$ is zero and a linear increase of the atmospheric tracer concentration does not modify the apparent age. For earlier recharge times, $A'(t_w)$ is indicative of the dilution with older waters.

Assuming now an exponential recharge time distribution $f_{t_w}(t) = \frac{1}{t_w - \bar{t}} e^{-\frac{t}{t_w - \bar{t}}}$ characterized by a mean recharge time $\bar{t}$ convoluted with a general input tracer concentration, $A'(t_w)$ takes the following expression:

$$A'(t_w) = 1 - \frac{1}{\tau}\frac{C_{in}(t_w) - C_{in}(t_w - A(t_w))}{C'_{in}(t_w - A(t_w))}. \quad (A.4)$$

In such a case, $A'(t_w)$ only depends on the behavior of C_{in} close to $t_w - A$ (t_w) and at t_w and not on all the details of $C_{in}(t)$. Figure 7 shows the derivative of the apparent age computed for the complex model n°4 and two exponential recharge time distributions (characterized by $t_w - \bar{t}$ equal to 10 years and 100 years). The positive characteristic of $A'(t_w)$ is consistent with the increasing trend of the apparent age observed in Figure 1. The rate of increase depends both on the model and on the tracer showing that the temporal signal could be used as a further way to differentiate between models.

Acknowledgments

Funding was provided by the French National Research Agency ANR through the H2MNO4 project for the development of parallel simulation methods (ANR-11-MN). Research and monitoring on the site of Plœmeur is funded by the Environmental research Observatory H+ (Network of hydrogeological sites) and by the European Interreg IV project Climawat. J.-R. de Dreuzy acknowledges the European Union for its additional funding through the IEF Marie-Curie fellowship (PIEF-GA-2009-251710).

References

Ayraud, V., 2005. Détermination du temps de résidence des eaux souterraines: application au transfert d'azote dans les aquifères fracturés hétérogènes. Ph.D Thesis, Université de Rennes 1, Rennes, 312 pp.

Ayraud, V., Aquilina, L., Labasque, T., Pauwels, H., Molenat, J., Pierson-Wickmann, A.-C., Durand, V., Bour, O., Tarits, C., Le Corre, P., Fourre, E., Merot, P., Davy, P., 2008. Compartmentalization of physical and chemical properties in hard-rock aquifers deduced from chemical and groundwater age analyses. Applied geochemistry, 23(9): 2686-2707. doi:10.1016/j.apgeochem.2008.06.001.

Belghoul, A., 2007. Caractérisation pétrophysique et hydrodynamique du socle cristallin. PhD Thesis, University of Montpellier II, France, 266 pp.

Boschero, V., Unpublished results. Echantillonnage, mesures et interprétation de mini-carottes pour la caractérisation du forage SC39 du site de pompage de Ploemeur. Master Thesis, University of Brighton, England, 22 pp.

Bredehoeft, J.D., 2002. The Water Budget Myth Revisited: Why Hydrologists Model. Groundwater, 40(4): 340-345.

Bresciani, E., Davy, P., de Dreuzy, J.-R., 2011. A finite volume approach with local adaptation scheme for the simulation of free surface flow in porous media. International Journal For Numerical and Analytical Methods in Geomechanics, 36(13): 1574-1591. doi:10.1002/nag.1065.

Carn, A., 1990. Mise en valeur des ressources en eau souterraine du socle breton.Département du Morbihan (35) - R31724 BRE 4S/90, BRGM, Rennes.

Castro, M.C., Goblet, P., Ledoux, E., Violette, S., de Marsily, G., 1998. Noble gases as natural tracers of water circulation in the Paris Basin, 2. Calibration of a groundwater flow model using noble gas isotope data. Water Resour. Res., 34(10): 2467-2483.

Cook, P.G., Love, A.J., Robinson, N.I., Simmons, C.T., 2005. Groundwater ages in fractured rock aquifers. J. Hydrol., 308(1-4): 284-301. doi:10.1016/j.jhydrol.2004.11.005.

Cornaton, F., Perrochet, P., 2006. Groundwater age, life expectancy and transit time distributions in advective-dispersive systems: 1. Generalized reservoir theory. Advances in Water Resources, 29(9): 1267-1291. doi:10.1016/j.advwatres.2005.10.009.

de Dreuzy, J.-R., Beaudoin, A., Erhel, J., 2007. Asymptotic dispersion in 2D heterogeneous porous media determined by parallel numerical simulations Water Resour. Res., 43(10). doi:10.1029/2006WR005394.

Eberts, S.M., Bohlke, J.K., Kauffman, L.J., Jurgens, B.C., 2012. Comparison of particle-tracking and lumped-parameter age-distribution models for evaluating vulnerability of production wells to contamination. Hydrogeology Journal, 20(2): 263-282. doi:10.1007/s10040-011-0810-6.

Erhel, J., de Dreuzy, J.-R., Bresciani, E., 2008. Multi-parametric intensive stochastic simulations for hydrogeology on a computational grid. In: Tromeur-Dervout, D., Brenner, G.,

508 Emerson, D., Erhel, J. (Eds.), Parallel Computational Fluid Dynamics. Springer, Lecture
509 Notes in Computational Science and Engineering, pp. 389-397.

510 Erhel, J., de Dreuzy, J.R., Beaudoin, A., Bresciani, E., Tromeur-Dervout, D., 2009. A parallel
511 scientific software for heterogeneous hydrogeoloy. In: Tuncer, I.H., Gulcat, U., Emerson,
512 D.R., Matsuno, K. (Eds.), Parallel Computational Fluid Dynamics 2007. Lecture Notes in
513 Computational Science and Engineering. Springer, pp. 39-48.

514 Frind, E.O., Muhammad, D.S., Molson, J.W., 2005. Delineation of Three-Diemnsional Well
515 Capture Zones for Complex Multi-Aquifer Systems. Groundwater, 40(6). doi:10.1111/j.1745-
516 6584.2002.tb02545.x.

517 Ginn, T.R., Haeri, H., Massoudieh, A., Foglia, L., 2009. Notes on Groundwater Age in
518 Forward and Inverse Modeling. Transport in Porous Media, 79(1): 117-134.
519 doi:10.1007/s11242-009-9406-1.

520 IAEA, 2006. Use of chlorofluorocarbons in hydrology : a guidebook. International Atomic
521 Energy Agency, Vienna, 277 pp.

522 Kinzelbach, W., 1988. The random-walk method in pollutant transport simulation. In:
523 Custodio, E., Gurgui, A., Lobo Ferreira, J.P. (Eds.), Groundwater flow and quality modelling.
524 NATO ASI. Dordrecht, New York, pp. 227-246.

525 Kreft, A., Zuber, A., 1978. On the physical meaning of the dispersion equation and its
526 solution for different initial and boundary conditions. Chemical Engineering Science, 33(11):
527 1471-1480. doi:10.1016/0009-2509(78)85196-3.

528 LaBolle, E.M., Fogg, G.E., 2001. Role of molecular diffusion in contaminant migration and
529 recovery in an alluvial aquifer system. Transp. Porous Media, 42(1-2): 155-179.
530 doi:10.1023/A:1006772716244.

531 Le Borgne, T., Bour, O., de Dreuzy, J.-R., Davy, P., Touchard, F., 2004. Equivalent mean
532 flow models for fractured aquifers: Insights from a pumping tests scaling interpretation.
533 Water Resour. Res., 40(3). doi:10.1029/2003WR002436.

534 Le Borgne, T., Bour, O., Paillet, J.-L., Caudal, J.-P., 2006. Assessment of preferential flow
535 path connectivity, and hydraulic properties at single-borehole and cross-borehole scales in a
536 fractured aquifer. J. Hydrol., 328(1-2): 347-359.

Leray, S., de Dreuzy, J.R., Bour, O., Labasque, T., Aquilina, L., 2012. Contribution of age data to the characterization of complex aquifers. J. Hydrol., 464-465: 54-68. doi:10.1016/j.jhydrol.2012.06.052.

Long, A.J., Putnam, L.D., 2009. Age-distribution estimation for karst groundwater : Issues of parameterization and complexity in inverse modeling by convolution. J. Hydrol., 376: 579-588.

Maloszewski, P., Zuber, A., 1982. Determining the turnover time of groundwater systems with the aid of environmental tracers, 1. Models and their applicability. J. Hydrol., 57(3-4): 207-231.

Massoudieh, A., Sharifi, S., Solomon, D.K., 2012. Bayesian Evaluation of Groundwater Age Distribution using a Radio-Active Tracers and Anthropogenic Chemicals Water Resour. Res., 48(W09529). doi:10.1029/2012WR01181

McMahon, P.B., Carney, C.P., Poeter, E.P., Peterson, S.M., 2010. Use of geochemical, isotopic, and age tracer data to develop models of groundwater flow for the purpose of water management, northern High Plains aquifer, USA. Applied geochemistry, 25: 910-922. doi:10.1016/j.apgeochem.20120.04.001.

Neupauer, R.M., Wilson, J.L., 1999. Adjoint method for obtaining backward-in-time location and travel time probabilities of a conservative groundwater contaminant. Water Resour. Res., 35(11): 3389–3398. doi:10.1029/1999WR900190.

Neupauer, R.M., Wilson, J.L., 2001. Adjoint-derived location and travel time probabilities for a multidimensional groundwater system. Water Resour. Res., 37(6): 1657-1668. doi:10.1029/2000WR900388.

Neupauer, R.M., Wilson, J.L., 2002. Backward probabilistic model of groundwater contamination in non-uniform and transient flow. Advances in Water Resources, 25(7): 733-746.

Newman, B.D., Osenbrück, K., Aeschbach-Hertig, W., Solomon, D.K., Cook, P.G., Rozanski, K., Kipfer, R., 2010. Dating of 'young' groundwaters using environmental tracers: advantages, applications, and research needs. Isotopes in Environmental and Health Studies, 46(3): 259-278.

Nir, A., 1964. On the interpretation of tritium 'Age' measurements of groundwater. journal of Geophysical Research, 69(1): 2589-2595.

568 Ruelleu, S., Moreau, F., Bour, O., Gapais, D., Martelet, G., 2010. Impact of gently dipping
569 discontinuities on basement aquifer recharge: An example from Plœmeur (Brittany, France).
570 Journal of Applied Geophysics, 70(2): 161-168. doi:10.1016/j.jappgeo.2009.12.007.

571 Sanford, W.E., Plummer, L.N., McAda, D.P., Bexfield, L.M., Anderholm, S.K., 2004.
572 Hydrochemical tracers in the middle Rio Grande Basin, USA: 2. Calibration of a
573 groundwater-flow model. Hydrogeol. J., 12(4): 389-407. doi:10.1007/s10040-004-0326-4.

574 Schwartz, F.W., Sudicky, E.A., McLaren, R.G., Park, Y.-J., Huber, M., Apted, M., 2010.
575 Ambiguous hydraulic heads and ^{14}C activities in transient regional flow. Groundwater, 48(3):
576 366-379.

577 Stichler, W., Maloszewski, P., Bertleff, B., Watzel, R., 2008. Use of environmental isotopes
578 to define the capture zone of a drinking water supply situated near a dredge lake. J. Hydrol.,
579 362: 220-233. doi:10.1016/j.jhydrol.2008.08.024.

580 Touchard, F., 1999. Caractérisation hydrogéologique d'un aquifère en socle fracturé : Site de
581 Plœmeur (Morbihan). PhD Thesis, University of Rennes 1, France, 343 pp.

582 Troldborg, L., Jensen, K.H., Engesgaard, P., Refsgaard, J.C., Hinsby, K., 2008. Using
583 environmental tracers in modeling flow in a complex shallow aquifer system. J. Hydrol. Eng.,
584 13(11): 1037-1048. doi:10.1061/(asce)1084-0699(2008)13:11(1037).

585 Varni, M., Carrera, J., 1998. Simulation of groundwater age distributions. Water Resour. Res.,
586 34(12): 3271-3281. doi:10.1029/98WR02536.

587 Waugh, D.W., Hall, T.M., Haine, T.W.N., 2003. Relationships among tracer ages. Journal of
588 Geophysical Research, 108(C5): 3138. doi:10.1029/2002JC001325.

589 Woolfenden, L.R., Ginn, T.R., 2009. Modeled ground water age distributions. Groundwater,
590 47(4): 547-557.

591 Zhang, Y., 2004. Numerical simulations of dating young groundwater with multiple
592 atmospheric tracers : CFC-11, CFC-12, SF_6, $^{3}H/^{3}He$ and ^{85}Kr. In: Miller, C.T., Farthing,
593 M.W., Gray, W.G., Pinder, G.F. (Eds.), 15th International Conference on Computational
594 Methods in Water Resources. Developments in Water Science. Elsevier Science BV, Chapel
595 Hill, NC, pp. 1367-1378.

596 Zinn, B.A., Konikow, L.F., 2007. Potential effects of regional pumpage on groundwater age
597 distribution. Water Resour. Res., 43(6). doi:10.1029/2006WR004865.

598 Zuber, A., Rozanski, K., Kania, J., Purtschert, R., 2011. On some methodological problems in
599 the use of environmental tracers to estimate hydrogeologic parameters and to calibrate flow
600 and transport models. Hydrogeol. J., 19: 53-69.

601

602

603

Tables

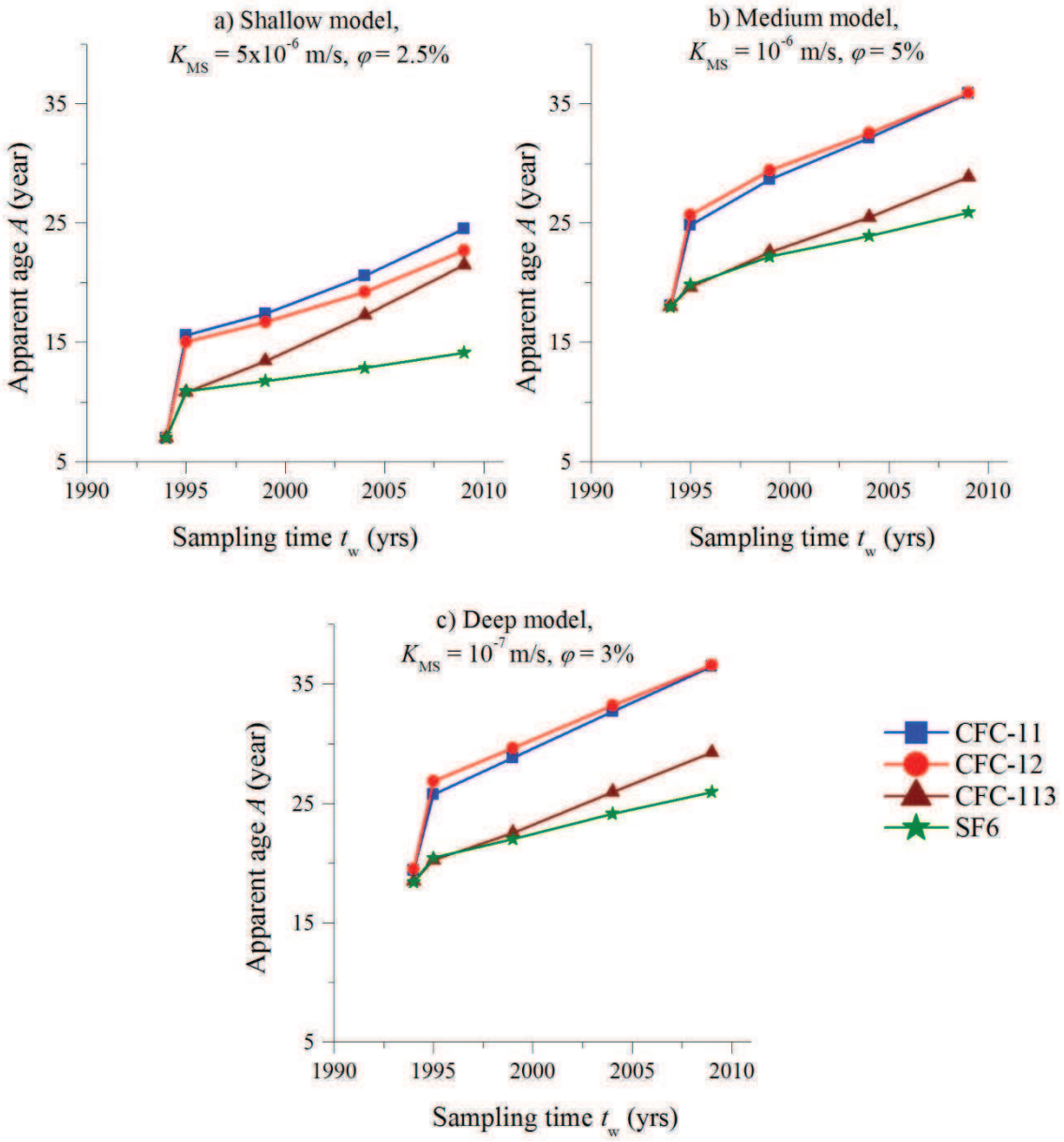
	Values				References
Common parameters					
Potential recharge rate R (mm/year)	200				(Carn, 1990; Touchard, 1999)
Granites conductivity K_G (m/s)	10^{-11}				
Specific parameters for selected models					
Model #	Model 1	Model 2	Model 3	Model 4	
Structure - H_{TOT} (m)	Shallow - 180	Medium - 220	Deep - 280	Shallow - 180	(Ruelleu et al., 2010)
K_{MS} (m/s)	$5x10^{-6}$	10^{-6}	10^{-7}	10^{-6}	(Leray et al., 2012)
T_{CZ} (10^{-3} m^2/s)	2.39	2.07	2.15	2.27	(Le Borgne et al., 2004; Le Borgne et al., 2006)
T_{F20} (10^{-3} m^2/s)	1.2	1.04	1.07	1.14	
φ (%)	2.5	5	3	5	Model 4: calibration on CFC-12 age at the pumping well (Leray et al., 2012)

Table 1: Parameters of the four hydrogeological models of the site of Plœmeur used in this study with their reference. All models have been calibrated on the piezometric level at the pumping well and the fourth one has also been calibrated on CFC-12 apparent age at the pumping well. Porosities of the first three models have been taken in the characteristic range (2-6%) indicated by the triple-weight method (Belghoul, 2007) and the helium pycnometer method (Boschero, Unpublished results).

Tracer (# of piezometers)	Range of age variation	Mean of age variation	Standard deviation of age variation
SF_6 (3)	[2; 8]	6.3	3.8
CFC-11 (4)	[3; 4]	3.5	0.6
CFC-12 (5)	[-7.5; 10]	2.5	6.3
CFC-113 (4)	[3; 10.5]	7.1	3.3

Table 2: Mean temporal evolution of CFCs and SF_6 ages between 2006 and 2010 in the pumping area of the site of Plœmeur.

613 Figures



614

615

616 Figure 1: Apparent ages derived from CFC-11, CFC-12, CFC-113 and SF6 concentrations as a
617 function of the sampling time tw for (a) the shallow model (model no1 of Table 1); (b) the medium
618 model (model no2 of Table 1); and (c) the deep model (model no3 of Table 1).

619

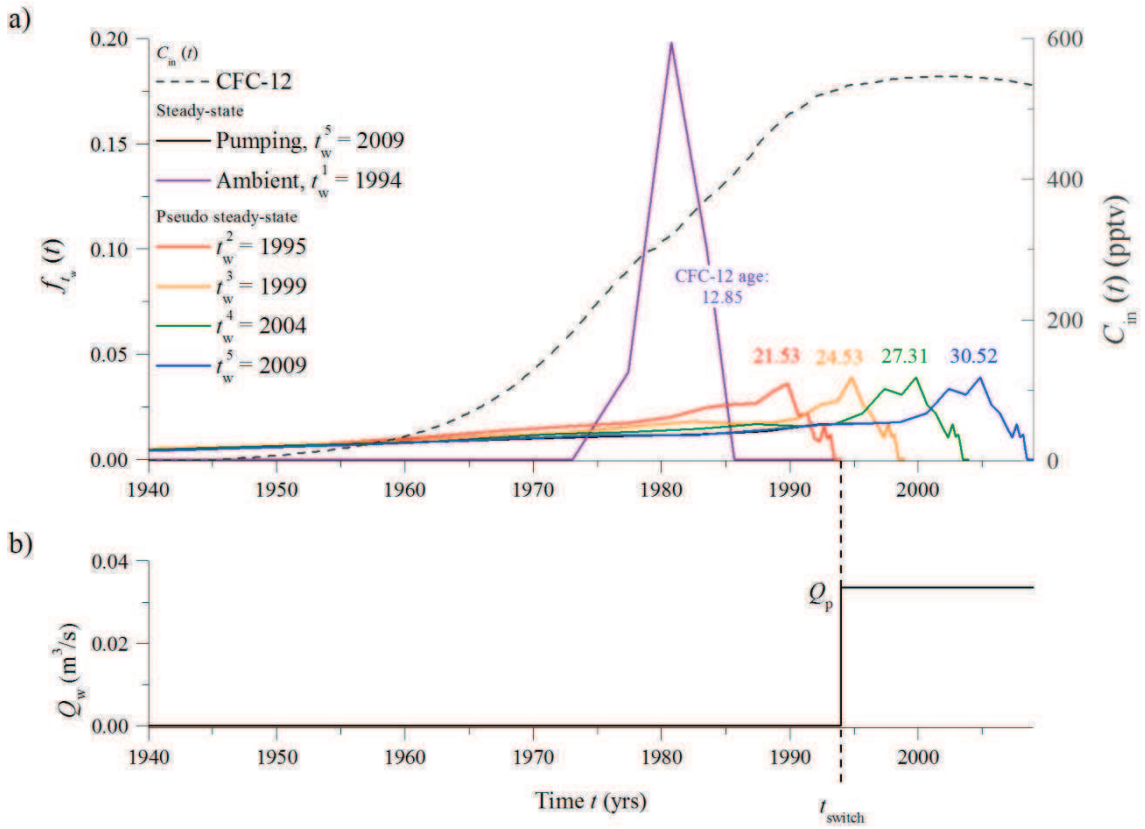
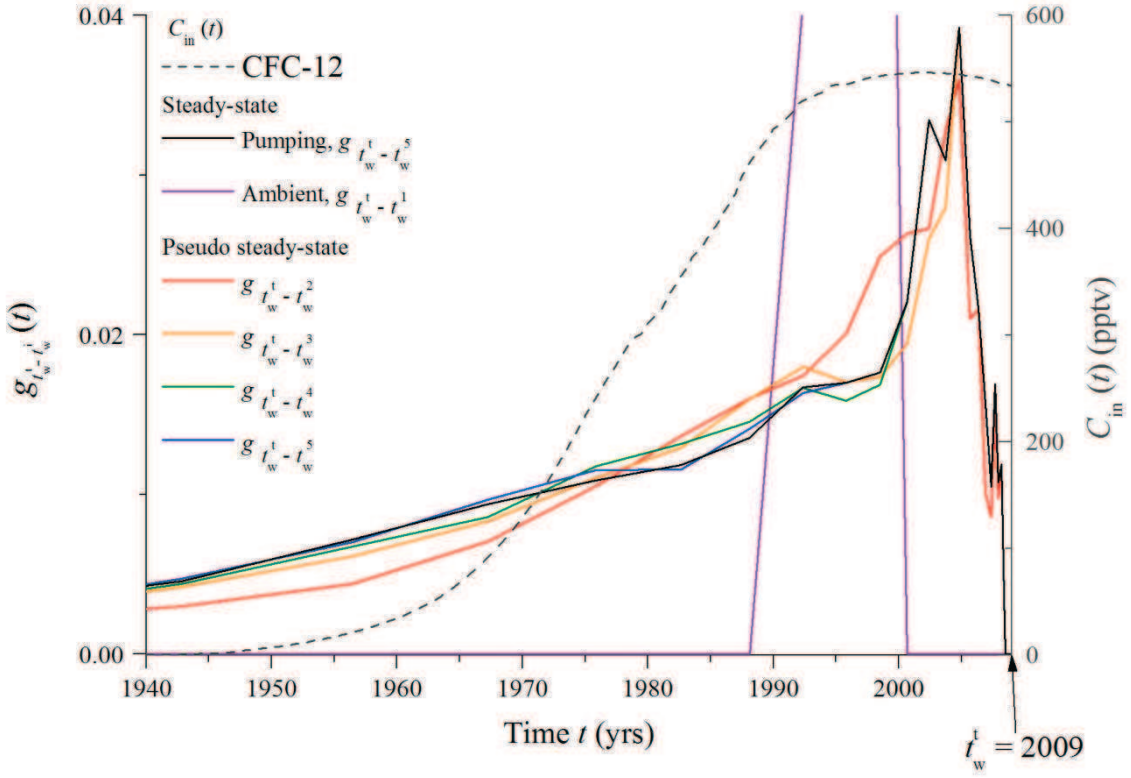


Figure 2: (a) CFC-12 atmospheric concentration $C_{in}(t)$ (grey dashes) superimposed on the recharge time distributions $f_{tw}(t)$ for the model n°4 (Table 1). Recharge time distributions come from the steady-state ambient model sampled at t_w^1 (1994, purple curve) and the pseudo steady-state ones sampled at t_w^2 (1995, red curve), at t_w^3 (1999, orange curve), at t_w^4 (2004, green curve) and at t_w^5 (2009, blue curve), and the steady-state under pumping model sampled at t_w^5 (2009, black curve). The two last distributions are almost indistinguishable showing that a new steady flow regime has been reached. (b) The pumping rate chronicle $Q_w(t)$ which is a step function going from zero before the starting time t_{switch} to a positive value Q_p.

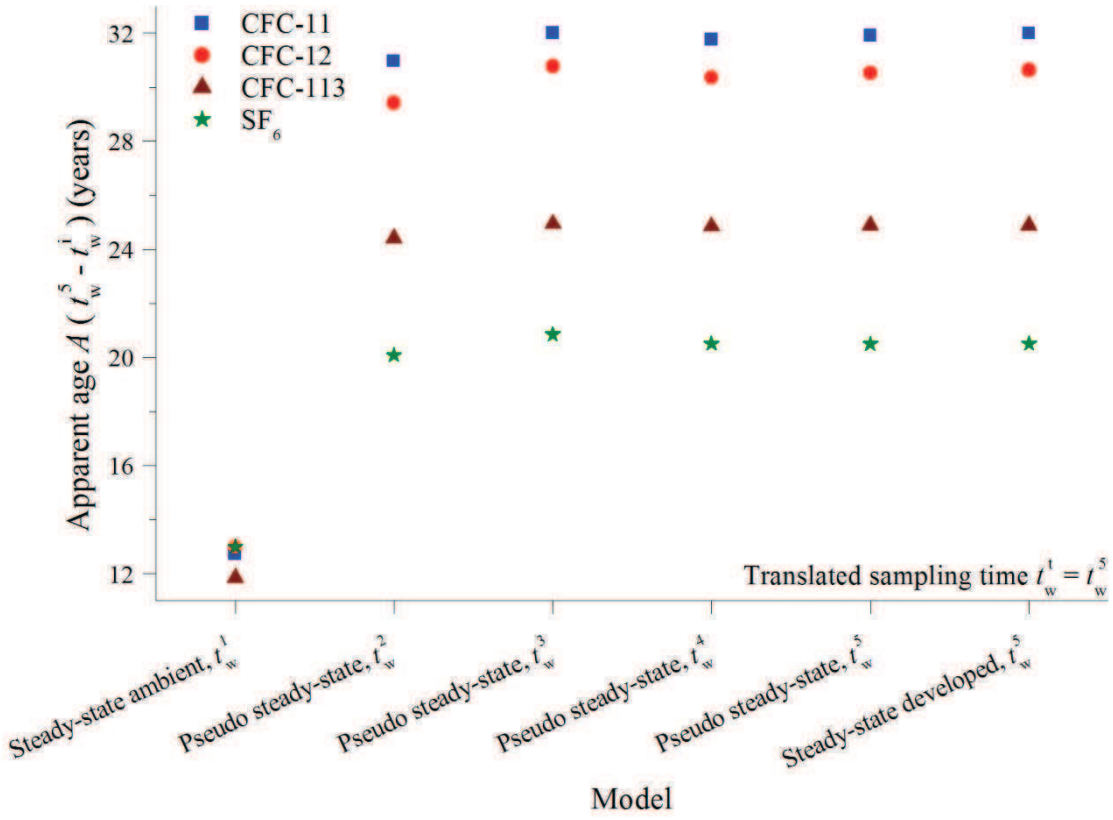


631

632

633 Figure 3: CFC-12 atmospheric concentration $C_{in}(t)$ (grey dashes) superimposed on the
634 translated recharge time distributions $g_{t_w^t - t_w^i}(t)$ to the sampling time $t_w^t = t_w^5 = 2009$ for the
635 model n°4 (Table 1). The depicted flow models are the steady-state under pumping one (black
636 curve), the steady-state ambient one (initially sampled at t_w^1 - purple curve) and the pseudo
637 steady-state ones (initially sampled at t_w^2 - red curve; initially sampled at t_w^3 - orange curve;
638 initially sampled at t_w^4 - green curve and sampled at t_w^5 - blue curve).

639



640

641

642 Figure 4: Apparent ages obtained for the recharge time distributions $g_{t_w^t - t_w^i}(t)$ translated to

643 the sampling time $t_w^t = t_w^5 =$ 2009 for the model n°4 as a function of t_w^i. The recharge time

644 distributions come from the steady-state ambient model (purple curve of Figure 3), the pseudo

645 steady-state ones (red, orange, green and blue curves of Figure 3) and the steady-state under

646 pumping one (black curve of Figure 3).

647

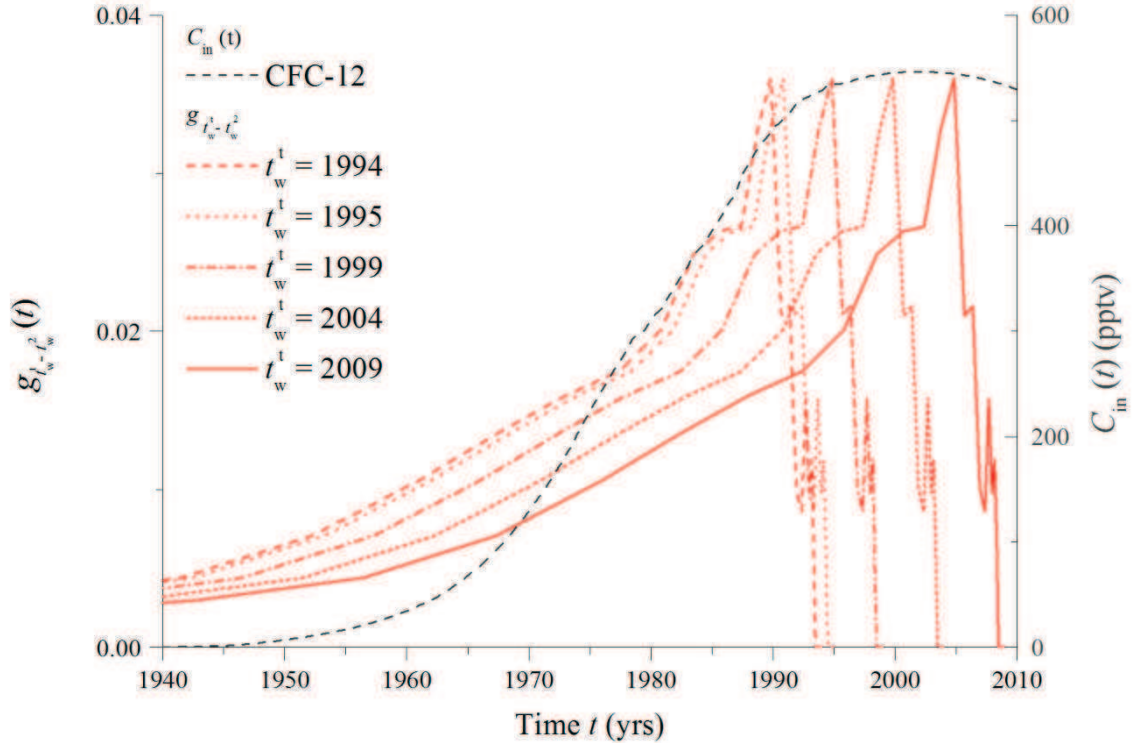
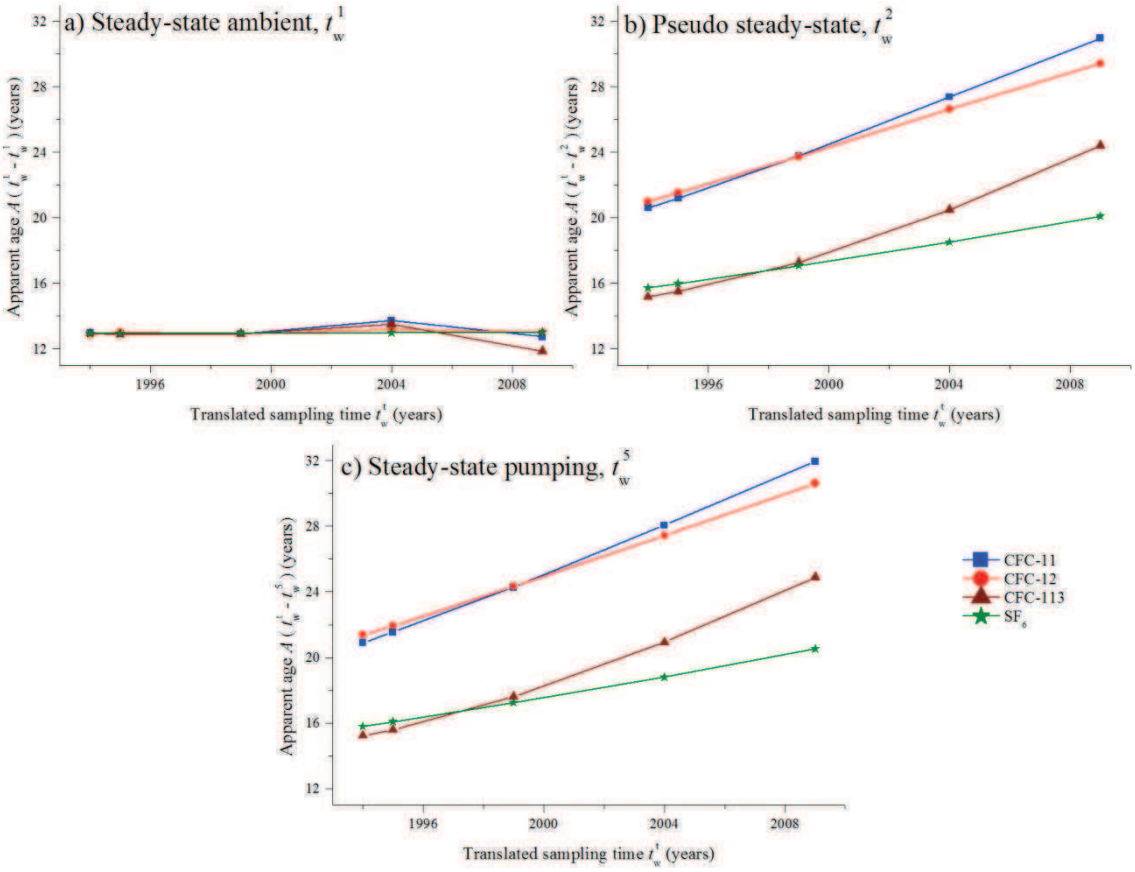


Figure 5: CFC-12 atmospheric concentration $C_{in}(t)$ (grey dashes) superimposed on recharge time distributions $g_{t_w^t - t_w^i}(t)$ taken at evolving translated times t_w^t for the model n°4 (Table 1). The recharge time distribution comes from the pseudo steady-state model sampled at $t_w^i = t_w^2 = 1995$ (red curve of Figure 2a).

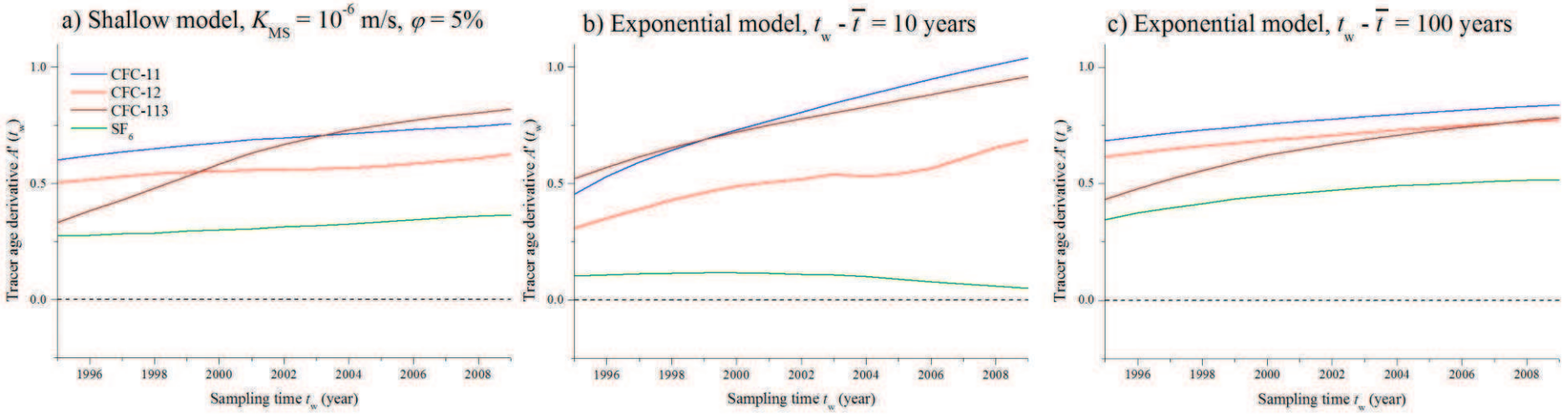


655

656

657 Figure 6: Apparent ages obtained with recharge time distributions $g_{t_w^t - t_w^i}(t)$ as a function of
658 the translated time t_w^t for the model n°4 for (a) the steady-state ambient model ($t_w^i = t_w^1$,
659 purple curve of Figure 2a), (b) the steady-state model under pumping ($t_w^i = t_w^5$, black curve
660 of Figure 2a) and (c) the pseudo steady-state ($t_w^i = t_w^2$, red curve of Figure 2a and Figure 5).

661



662

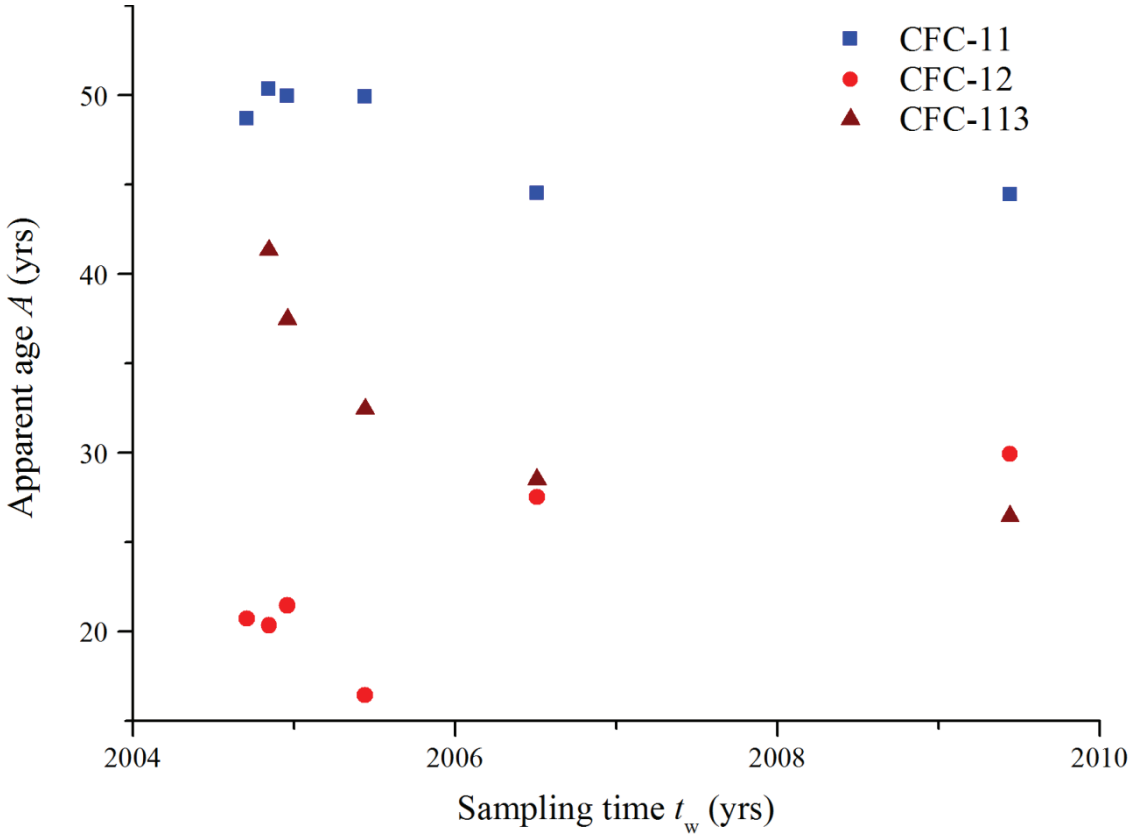
663

664 Figure 7: Tracer ages derivative $A'(t_w)$ from CFC-11, CFC-12, CFC-113 and SF_6 concentrations as a function of the sampling time t_w for (a) the

665 model n°4 (Table 1) (b) an exponential distribution with a 10-year mean residence time and (c) an exponential distribution with a 100-year mean

666 residence time.

667

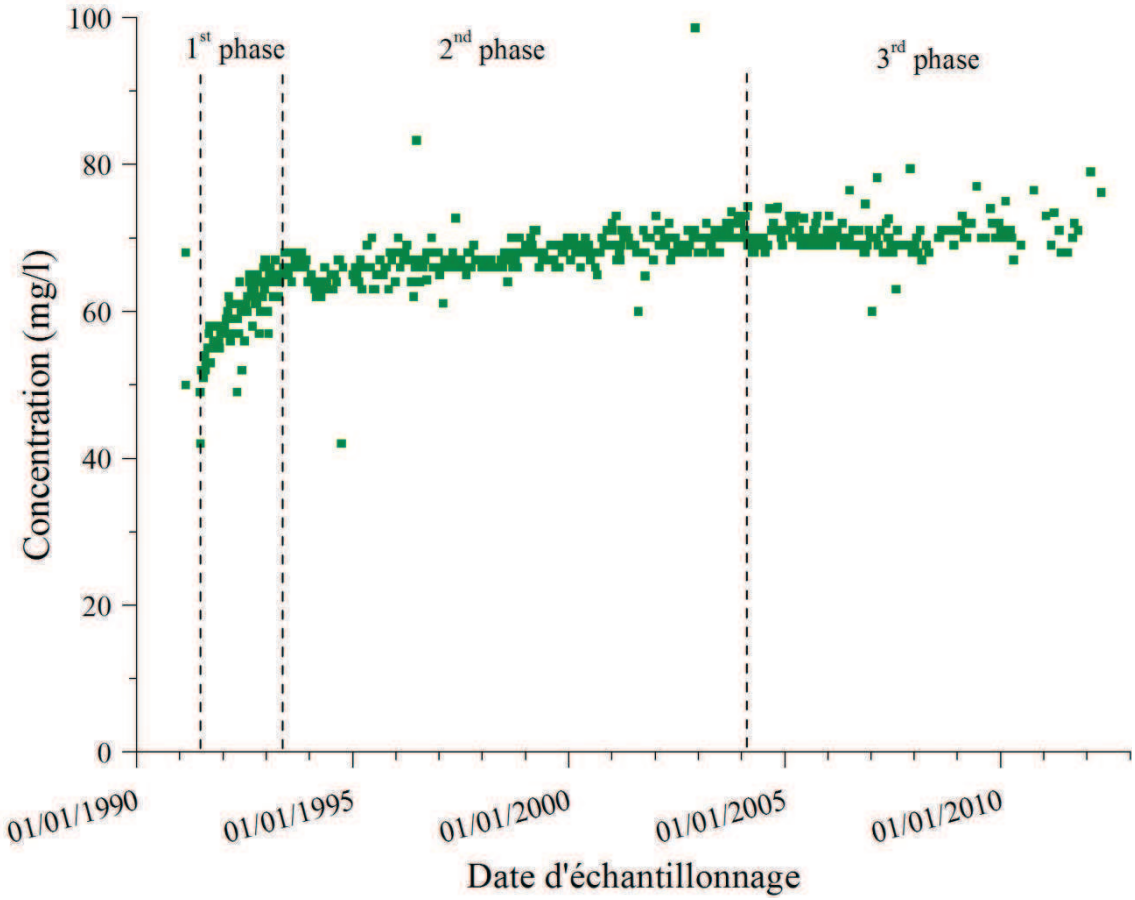


668

669

670 Figure 8: Apparent ages from CFC-11, CFC-12 and CFC-113 concentrations as a function of
671 the sampling time t_w measured at the pumping well of the site of Plœmeur. SF_6 apparent ages
672 are not shown because SF_6 concentration is systematically higher than the modern
673 atmospheric concentration (adapted from Ayraud et al. (2008)).

674

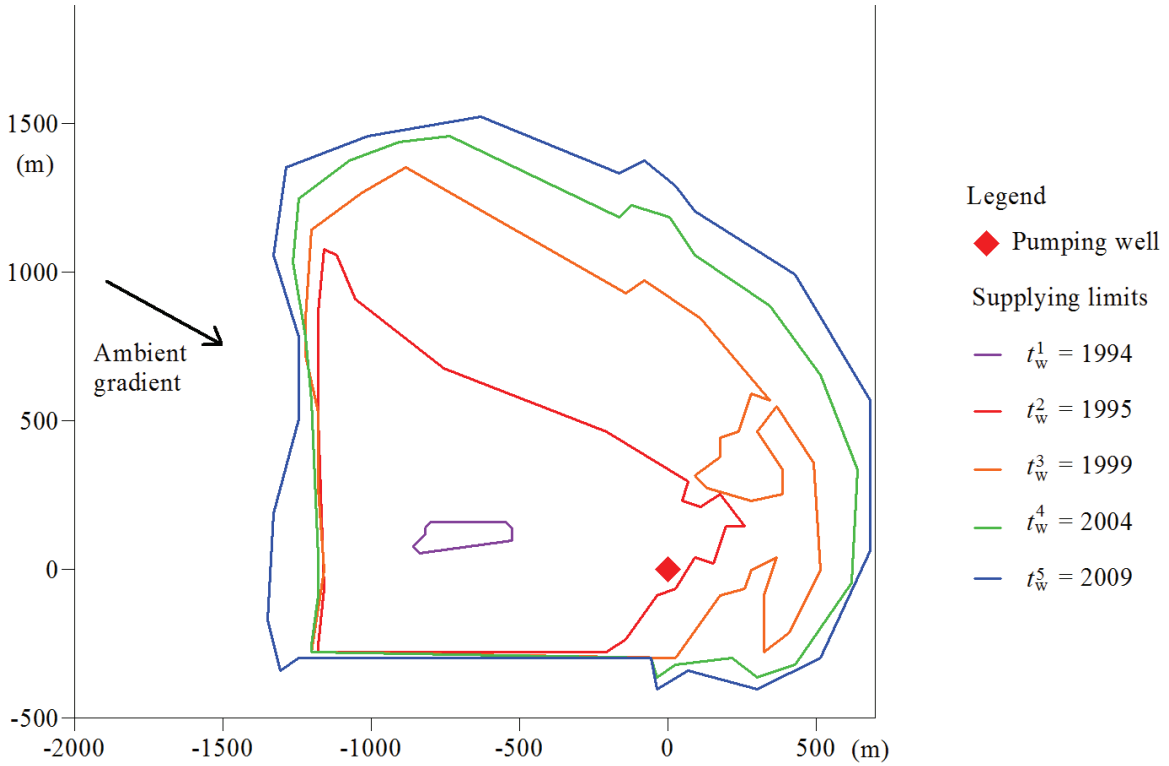


675

676

677 Figure 9: Chloride concentrations as a function of the sampling time t_w measured at the
678 pumping well of the site of Plœmeur (updated from Ayraud (2005)). The first phase consists
679 in a sharp and fast increase of the chloride concentration, the second phase in a slight increase
680 of the chloride concentration and the third in the stabilization of the chloride concentration.

681



682

683

684 Figure 10: Surface origin of the CFCs and SF_6 (corresponding to recharge times posterior to
685 1940) for the model n°4 (Table 1) under steady-state ambient conditions sampled at t_w^1 (1994,
686 purple curve) and pseudo steady-state conditions sampled at t_w^2 (1995, red curve), at t_w^3
687 (1999, orange curve), at t_w^4 (2004, green curve) and at t_w^5 (2009, blue curve).

688

5.3. Résultats complémentaires

5.3.1. Rapidité du changement de mélange : cohérence avec les données de température

La Figure 5-1 présente l'évolution temporelle de la température de l'eau dans le forage F11, adjacent au puits de pompage principal PE. A première vue, les données de température sont incohérentes avec les conclusions faites dans l'étude précédente : nous constatons en effet toujours une augmentation de la température même 20 ans après la mise en route du pompage alors que l'étude précédente suggère une stagnation très rapide des conditions de mélange et des origines de l'eau. A première vue seulement car la température n'est pas un élément conservatif. L'eau et la phase solide échangent en réalité des calories : un fluide chaud remontant de la profondeur réchauffe la roche environnante et perd des calories. Il existe donc un temps de retard entre la remontée du fluide et sa signature thermique dans les forages, de surcroît atténué par les échanges avec la roche. La température n'est donc pas un indicateur direct de temps de transfert ou de contribution des compartiments encore moins de leur évolution temporelle. Néanmoins, l'intégration de cette donnée dans un modèle – tout comme l'âge – améliorerait la compréhension du site mais impliquerait l'ajout de paramètres supplémentaires pas systématiquement connus.

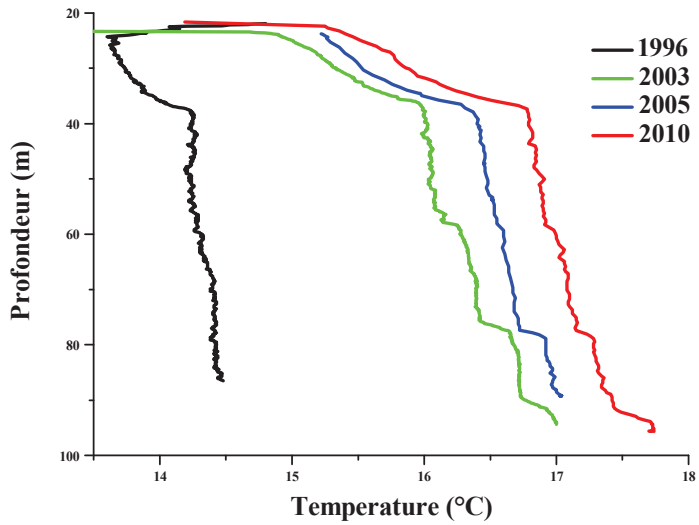


Figure 5-1: Evolution temporelle de la température de l'eau dans le forage F11, d'après Bour (2010).

5.3.2. Taux de dilution : estimation du pôle profond

Dans le Chapitre 4, nous avions noté de fortes divergences entre l'interprétation des données d'âge *via* un modèle hydrogéologique et l'interprétation des données géochimiques par l'ACP et les modèles de mélange. Dans ce chapitre, nous avons montré que l'eau avant pompage aurait des temps de résidence très courts avec une dispersion très faible : nous aurions alors qu'un seul « pôle » dit de surface. Le pompage, quant à lui, irait collecter très rapidement des eaux d'origine profonde, jusqu'à 20%. Tentons un calcul simple de mélange de deux pôles uniquement sur les ions chlorure, élément conservatif et témoin d'une origine profonde (éq. (22)). Le premier pôle, dit de surface, serait caractérisé par une concentration en chlorures de l'ordre de 50 mg/l *i.e.* la concentration en chlorures observée avant pompage (éq. (22)). Il représenterait 100% des eaux au puits de pompage avant sa mise en route puis 80%. Le second pôle, dit profond, serait caractérisé par une concentration en chlorures de l'ordre de 120 mg/l *i.e.* la concentration en chlorures observée dans les forages profonds du site de Loyan[6] (Ayraud et al., 2008). Il représenterait 0% des eaux au puits de pompage avant sa mise en route puis jusqu'à 20% (éq. (22)). Les 64 mg/l obtenus par ce calcul sont très proches des 70 mg/l observés depuis des années (Figure 2-20) et confortent les 20% de pôle profond obtenus par le modèle hydrogéologique.

$$\begin{aligned} C_m &= \frac{C_1V_1 + C_2V_2}{V_1 + V_2} = C_1 = 50\ mg/l && sans\ pompage \\ C_m &= \frac{C_1V_1 + C_2V_2}{V_1 + V_2} = 50 \times 0.8 + 120 \times 0.2 = 64\ mg.l^{-1} && avec\ pompage \end{aligned} \quad \textbf{(22)}$$

[6] Ces forages, situés dans le même contexte géologique et à proximité du site de pompage (quelques kilomètres), sont dénués de nitrates et sont donc typiques d'une eau profonde, beaucoup plus que sur le site de pompage où les forages caractérisent systématiquement des mélanges.

5.4. Conclusions

Nous avons considéré dans cette étude l'utilisation des données d'âge apparent, déduites des concentrations en CFC-11, CFC-12, CFC-113 et SF_6, au puits de pompage et en conditions transitoires. Nous nous sommes concentrés sur le démarrage instantané d'un pompage tel qu'observé sur le site de Plœmeur. Nous avons représenté cet événement transitoire comme un changement d'état du système : le champ de vitesse passe ainsi instantanément d'un état ambiant à un état pompé. Ce choix a été motivé par sa simplicité d'utilisation et par sa validité pour les faibles coefficients de stockage. Nous avons appliqué cette méthodologie aux modèles hydrogéologiques de Plœmeur initialement calés sur la charge au puits de pompage en régime permanent pompé (Leray et al., 2012). Les conditions transitoires en flux induisant une réponse du système vis-à-vis du transport de soluté *a priori* à des échelles de temps importantes, nous avons analysé l'évolution des chroniques d'âge apparent pour en déduire leur contenu informationnel.

Les résultats ainsi mis en évidence sont à première vue surprenants. Nous avons en effet révélé que l'évolution des âges apparents n'était pas que due au champ de vitesse transitoire mais provenait aussi du caractère transitoire des chroniques atmosphériques. Aussi, nous avons noté que ces deux sources de transitoire dans la donnée d'âge, comparables en termes d'intensité, n'avaient pas lieu au même moment. Par des manipulations sur les distributions de date de recharge, nous avons observé à ce propos que l'impact du champ de vitesse transitoire n'était prépondérant que durant la première année de pompage. Là aussi, constater que l'impact d'un pompage sur les vitesses et les temps de trajet est en réalité relativement localisé suffit à justifier cette échelle de temps assez courte. Ce premier régime d'évolution de l'âge apparent contrôlé par le champ de vitesse transitoire laissait place ensuite à un second régime contrôlé par l'évolution temporelle des chroniques atmosphériques.

Les conclusions suites à ces observations sont évidentes : l'évolution temporelle des âges apparents ne peut être utilisée pour qualifier le régime d'écoulement d'un système. Plus spécifiquement, des âges apparents constants ne révèlent pas un état permanent. Par contre, les chroniques d'âges apparents peuvent avantageusement servir à ségréger les modèles : les chroniques atmosphériques réalisent, par la convolution, autant de pondérations de la distribution des temps de résidence qu'il y a de mesures à des temps différents. Finalement, leur caractère transitoire démultiplie la quantité de traceurs, ou plus exactement de traçages, disponibles.

Quant à l'aquifère de Plœmeur, la similarité de l'évolution temporelle des concentrations en chlorures au puits de pompage avec celle des âges apparents est encourageante. Par contre, nous ne disposons pas de chroniques d'âges apparents suffisantes pour comparer modèles et données à cause du changement de méthode de prélèvement opéré il y a quelques années.

Chapitre 6 Discussion et perspectives

6.1. Ressources en eau

L'étude du Chapitre 3 a mis en évidence le rôle de la fracturation dans la mobilisation des structures emmagasinantes, et le cas échéant dans la ressource en eau. La très grande transmissivité des structures fracturées favorise la propagation des conditions aux limites telles qu'un puits à charge imposée comme dans notre étude: la charge le long de ces structures est plus ou moins constante. Les figures 4 et 5 de l'article (3.2) le montrent clairement. La zone fracturée peut devenir, au moins en partie, une condition aux limites au même titre que les rivières. Par contre, là où les rivières demeurent une condition de surface, les zones fracturées, en se développant en profondeur, projettent la condition imposée dans cette troisième dimension. Il est donc particulièrement pertinent en perspective de ce travail d'étudier la compétition entre ces deux types de conditions aux limites.

6.1.1. Perspectives : taille des boucles de circulation (échelle régionale)

La topographie constitue le moteur naturel des écoulements. Les gradients de topographie sont typiquement situés entre le pour cent et le pour mille. Considérant une différence de charge de l'ordre de quelques dizaines de mètres (Chapitre 3), un pompage dans une zone fracturée pourrait dévier des écoulements ayant lieu à l'échelle du kilomètre voire de la dizaine de kilomètres. L'impact en termes de gestion de la ressource et de qualité de l'eau notamment est non négligeable. Aussi, la caractérisation géométrique des discontinuités sub-verticales se résume classiquement à la caractérisation de l'orientation des fractures, de leur longueur ou persistance, de leur largeur… sans considération de leur profondeur. Pourtant, dans le cas des structures à faible pente, la profondeur de la fracturation (H, Figure 6-1) apparaît comme un paramètre clé qui détermine l'échelle de l'aquifère (L_{max}), et éventuellement la capacité de la fracturation à dévier les écoulements régionaux. Les simulations réalisées dans le Chapitre 3 ont toutes été réalisées pour une épaisseur de 1000m, grandeur considérée comme raisonnable (ex : site de Plœmeur). Envisager une épaisseur plus importante en lien avec une topographie naturelle serait une suite à ce travail.

Figure 6-1: Impact de la profondeur de la zone fracturée sur les chemins d'écoulement.

6.1.2. Perspectives : diversion de la recharge (échelle locale)

Il serait tout aussi pertinent d'étudier cette même compétition à une échelle plus réduite, pas plus de la centaine de mètres. Dans ce cas, l'accent serait mis sur les propriétés de la structure de subsurface - perméabilité et épaisseur – en relation avec les propriétés de la structure transmissive et la topographie. On étudierait particulièrement la capacité de la structure de subsurface à générer des écoulements locaux de faible longueur d'onde plutôt que de favoriser l'infiltration en profondeur. En d'autres termes, la compétition entre topographie et fracturation à cette échelle se résume à confronter deux types de ressource, celle formée par les altérites et celle issue de la fracturation. Ce projet, actuellement en cours, est en collaboration avec Etienne Bresciani et Clément Rocques et fait aussi suite au travail d'Etienne Bresciani (2011).

6.2. Apport des données d'âge

6.2.1. Terminologie

Bien que ce ne soit pas en tant que telle une question de science, je tiens à discuter rapidement de l'utilisation du terme « âge ». La recherche étant basée sur l'échange, une bonne recherche requiert une bonne communication et un langage commun. Nous l'avons vu dans le premier chapitre (1.2.1) la donnée d'âge n'est qu'une transformation de la concentration mesurée. Plus important encore, elle n'est en aucun cas le temps de résidence moyen *i.e.* le premier moment de la distribution des temps de résidence. Parler d'âge peut donc être confus car cela donne l'impression de caractériser le temps caractéristique du système. Le colloque sur la datation GDAT[7] qui a lieu à Rennes en octobre 2012 confirme cette confusion dans les termes et les méthodes. Le seul avantage à utiliser le terme « âge » réside dans le fait qu'il permet de cadrer la thématique d'une étude.

Ainsi, deux choix s'offrent à la communauté scientifique : soit abandonner la transformation en âge pour considérer uniquement la concentration mesurée ; soit prendre conscience de la signification de cette donnée – en d'autres termes, elle n'est qu'une donnée et rien d'autre – et toujours prendre soin d'expliciter les conditions d'obtention de cette donnée – en d'autres termes, préciser les moyens d'obtention de la distribution des temps de résidence surtout dans le cadre de travaux de modélisation numérique.

6.2.2. Pour la ségrégation de modèles hydrogéologiques

Bien que déjà très spécifique sur la gamme de temps caractérisée, l'utilisation des CFC en particulier ne permet pas d'aboutir à une représentation fine de la distribution spatiale du volume échantillonné, ici le volume pompé. Nous avons en effet pu trouver 3 modèles conceptuels radicalement différents – pour rappel, le modèle homogène exponentiel, le modèle homogène à structure complexe et le modèle hétérogène à structure complexe – qui reproduisaient les âges en CFC-12 pour des valeurs possibles de porosité[8]. La donnée d'âge ne permet pas dans ce cas de déterminer le modèle hydrogéologique c'est-à-dire de caractériser l'allure générale de la distribution des temps de résidence. Pourtant, les modèles divergeaient considérablement en termes de prédiction. La donnée d'âge doit donc être

[7] http://osur.univ-rennes1.fr/GDAT2012/page.php?6

[8] Les autres CFC et le SF_6 mènent à la même observation sur la ségrégation des modèles. Le SF_6 donne des modèles qui divergent légèrement plus que les CFC car sa chronique met plus de poids sur les eaux jeunes *i.e.* là où les modèles divergent fortement. Pour autant, les conclusions sont similaires.

utilisée en complément d'une autre information sur la structure car elle ne peut pas ségréger seule les modèles entre eux. Cela n'est pas étonnant vu son caractère intégrateur.

Il faut néanmoins apporter quelques nuances à ces propos. Dans les simulations réalisées, les CFC « mesuraient » jusqu'à 90% des lignes de flux allant au puits de pompage. Ils mesuraient donc presque l'intégralité du volume pompé qui était identique entre les différents modèles conceptuels. Lorsque la mesure devenait plus partielle comme c'est le cas par exemple lorsque la porosité augmente, les modèles divergeaient témoignant d'une certaine sensibilité des âges en CFC à la distribution du volume. En réalité, tout est question d'échelle : l'échelle de temps du traceur *versus* l'échelle de temps des modèles conceptuels : si elles sont similaires, le traceur réalise une mesure globale et ne peut pas réellement ségréger les modèles ; dans le cas contraire, c'est éventuellement possible. Cette observation nous amène naturellement à nous poser la question de la pluralité de l'information par les traceurs. En d'autres termes, quels sont les moyens pour obtenir plus d'information sur le système et pour améliorer le modèle conceptuel ?

6.2.3. Pluralité de l'information

De la réflexion purement théorique puis celle pratique garantie par les simulations menées dans ce travail de thèse découle l'idée suivante : l'utilisation efficace des données d'âge pour la mise en place de modèles hydrogéologiques conceptuels requiert trois actions conjointes ; d'abord, l'exploration des échelles de temps du système *via* la mesure des concentrations de différents traceurs ; puis, la pluralisation des traçages *via* la mesure transitoire ; enfin, la décomposition du signal complexe *via* la mesure spatiale partielle et plus simple des écoulements. Nous détaillons et discutons ces trois points aux vues des résultats précédents.

6.2.3.1. Echelle de temps et redondance des traceurs

Dans notre cas d'étude, utiliser des traceurs plus sélectifs, notamment le krypton-85 très sensible aux eaux jeunes, reviendrait à effectuer un échantillonnage partiel de la distribution des temps de résidence et donc du volume. Nous ferions une sorte de sous-intégration et l'information s'avèrerait complémentaire de celle obtenue par les CFC. Tout ceci sous réserve de connaître la chronique atmosphérique et mis à part les processus de réactivité. Vues les distributions des temps de résidence des différents modèles conceptuels (Figure 11 de l'article du Chapitre 4), la méthode du tritium-hélium, extrêmement sensible aux eaux d'une cinquantaine d'années, a de grandes chances de ne pas améliorer le calage. Le coût de la mise en place d'un dispositif d'analyse pour la datation en tritium-hélium s'élèverait à quelques

centaines de milliers d'euros : les modèles hydrogéologiques viendraient dans ce cas en support à la stratégie de collecte des données.

On a tendance à considérer assez naïvement que « beaucoup de traceurs » implique « beaucoup d'information ». Pour autant, différence entre traceur ne signifie pas complémentarité des traceurs. Fatalement, la convolution mélange l'information, et toute sa variabilité, de telle sorte que la donnée qui s'en dégage peut s'avérer redondante. L'étude du Chapitre 4 est parlante : plusieurs modèles conceptuels différents calés sur la même donnée de CFC-12 donnent les mêmes données de CFC-11, CFC-113 et SF_6 ne permettant pas de choisir un modèle plutôt qu'un autre. La normalisation des chroniques atmosphériques par leur valeur moyenne annule les effets d'échelle et révèle les similitudes entre traceurs (Figure 6-2). Elle révèle aussi que la pondération par les chroniques de CFC-11 et de CFC-12 est vraiment similaire. A défaut de pouvoir ségréger les modèles avec ces deux traceurs, cette similitude présente l'avantage de permettre aux différences d'âge apparent des deux traceurs d'exhiber directement les phénomènes de réactivité c'est-à-dire sans même l'utilisation d'un modèle hydrogéologique. L'intérêt de cette information reste toutefois peu défendable.

6.2.3.2. Autre échelle de temps: le transitoire

Nous avons mis en évidence dans le Chapitre 4 l'incapacité d'une donnée d'âge seule à identifier des structures. Dans le Chapitre 5, nous avons montré que le caractère transitoire pouvait ségréger les modèles et finalement palier à cette incapacité, même pour des traceurs caractérisant la même échelle de temps. La Figure 6-2 illustre cette multiplication des traçages par la date d'échantillonnage. L'apport des chroniques d'âges apparent avec cette représentation est indéniable. L'acquisition des données d'âge et leur utilisation doit s'engager sur le long terme.

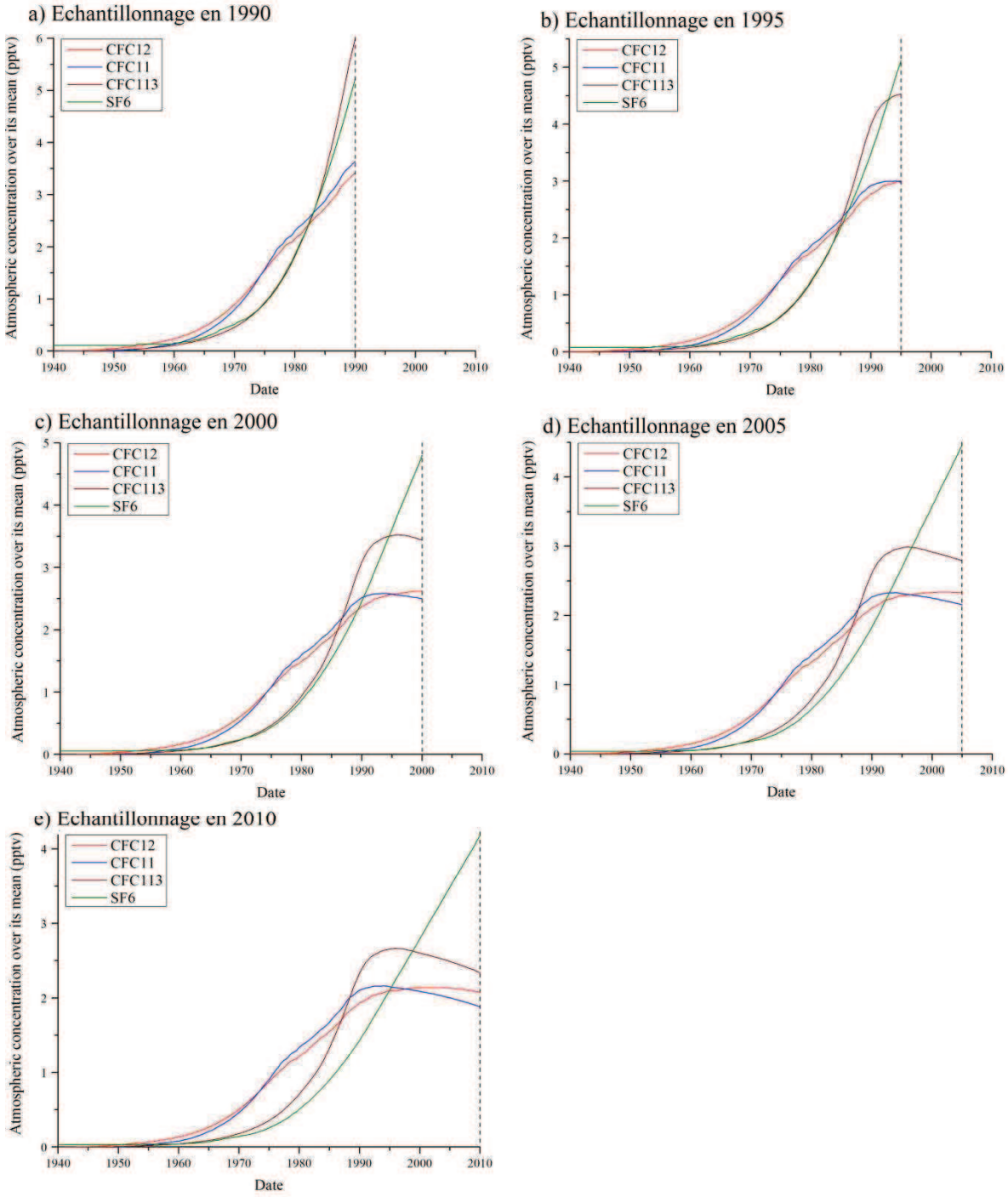


Figure 6-2: Chronique atmosphérique normalisée par la concentration atmosphérique moyenne des CFC et du SF_6 à différents temps d'échantillonnage.

6.2.3.3. Perspectives: échelle d'espace

Une des perspectives de ce travail serait d'analyser l'apport de la spatialisation des données pour la ségrégation de modèles (cf. partie 1.2.5.2). Avec le modèle conceptuel de Plœmeur, les écoulements sont quasi-verticalisés dans les micaschistes, utiliser une donnée même

distribuée sur une certaine hauteur n'apporterait qu'une information extrêmement locale, plus ou moins dans l'idée du modèle piston. Nous pourrions alors caractériser soit la porosité des micaschistes soit leur épaisseur mais la verticalité des écoulements serait limitante en termes de représentativité. Par contre, tenter une mesure de l'âge dans la zone de contact accroîtrait significativement le mélange tout en restant dans une gamme de mélange plus faible qu'au puits de pompage. Nous avons vu l'effet de la perméabilité des micaschistes sur l'origine de l'eau : selon sa valeur, l'eau venait de plus ou moins loin à l'ouest du domaine. Cette mesure serait probablement affectée par la longueur de trajet et pourrait contraindre la perméabilité des micaschistes. L'utilisation d'une donnée à une échelle de mélange intermédiaire si intéressante qu'elle puisse paraître nécessite néanmoins quelques précautions. D'abord, le volume échantillonné est critique dans ce cas car il constitue le support de l'information. Les conditions d'obtention de toute donnée exploitée dans ce cadre doivent être connues précisément et intégrées aux modèles. Ensuite, le rôle des paramètres peut être radicalement différent dans d'autres conditions de mélange. Notamment, le rôle respectif de la perméabilité de subsurface et du climat sur le taux de recharge. Troldborg et al. (2008) ont observé un effet non négligeable des variations saisonnières du taux de recharge sur les concentrations en traceurs environnementaux lorsque l'échantillonnage d'un forage était localisé sur une certaine hauteur. Dans leur cas d'étude, cette variation n'est pas significative pour des puits situés dans la zone de décharge et captant un grand nombre de lignes de courant. Ainsi, pour une mesure plus partielle qu'au puits de pompage, il serait pertinent de considérer ces deux contrôles en intégrant la possibilité d'une saisonnalité du taux de recharge. Observerait-on alors un contrôle partagé de la perméabilité de subsurface et du climat sur les âges ?

6.2.4. Pour la caractérisation de la ressource

Nous avons constaté le rôle du pendage des zones fracturées transmissives dans l'occurrence de la ressource en eau, tout comme le rôle de la perméabilité de l'encaissant (Chapitre 3). Moyennant une estimation de la porosité par ailleurs, il est possible de quantifier le pendage des structures à faible pente avec l'âge, avec le bémol toutefois d'avoir identifié au préalable ces structures (Chapitre 4). Dans l'optique de la recherche de ressource en eau dans les milieux complexes, l'âge n'est donc pas un outil d'identification mais de caractérisation des structures. Il intervient comme supplément à une ou des méthodes pouvant quant à elles révéler leur présence. La perméabilité de l'encaissant, pour sa part, n'a pu être contrainte par les CFC au puits de pompage mais nous avons pu constater son impact sur le temps de résidence moyen et sur la distribution spatiale et temporelle du signal. Nous pouvons donc

espérer la contraindre par une mesure partielle, temporellement en utilisant un autre traceur ou spatialement en réduisant le mélange, comme présenté plus haut.

6.3. Compréhension du site de Plœmeur

Une des interrogations sur le site de Plœmeur concerne l'interaction avec la profondeur. Rappelons que nous observons sur le site de pompage des eaux anormalement chaudes et avec des concentrations en chlorures assez élevées. Les simulations effectuées durant cette thèse ont permis d'avancer sur le pôle profond, sur sa contribution au puits de pompage notamment. Mais dans nos modèles, le pôle profond est un réservoir relativement local qu'on renouvelle, pas une limite ou une contribution à grande échelle et à concentration constante. Du travail reste donc à fournir d'autant que certaines données apparaissent pour l'instant incohérentes.

Une des possibilités serait de coupler la modélisation du site à un modèle de boîte : nous représenterions alors le pôle profond non comme un élément du modèle mais comme une limite en profondeur possédant un flux imposé et éventuellement une caractéristique chimique imposée. Nous testerions alors la possibilité d'une contribution non négligeable du pôle profond au débit de pompage (jusqu'à plus de 40% comme suggéré par les modèles de mélange). Faire remonter au moins 40% d'eau de la profondeur requiert soit une transmissivité élevée soit un gradient de charge important qui par ailleurs décroît avec la longueur de trajet (Figure 6-1). Serions-nous toujours dans les gammes de valeurs des paramètres mesurées sur le site ?

Chapitre 7 Conclusion générale

Les résultats des simulations en régime permanent sur le site de Plœmeur ont permis de montrer que les CFC, et les données d'âge en général, caractérisaient tout ou partie du volume contributif de la zone échantillonnée, qu'on a vu comme étant une fonction complexe de la porosité et de la structure. Nous avons donc avantageusement caractérisé la structure du champ de vitesse plutôt que sa magnitude. Les données d'âge ont ainsi été utilisées certes autrement que fait de coutume mais surtout en cohérence avec le degré d'incertitude des paramètres. Reconsidérer la sensibilité de ces données dans les systèmes complexes a permis d'ouvrir une autre voie pour leur utilisation.

L'étude particulière liée aux systèmes complexes a été accompagnée d'une réflexion plus générale sur le contenu informationnel des données d'âge. De cette réflexion ont émergé quelques observations :

- l'âge n'est qu'une donnée, rien d'autre : le biais lié au traceur est un fait *a priori* non quantifiable et le lien âge - temps de résidence moyen *de facto* imprédictible;
- l'âge est une donnée intégratrice : affirmer qu' « on peut faire dire tout et n'importe quoi d'une donnée unique d'âge » n'est pas tant exagéré. Nous l'avons vu : malgré un calage convenable de différents modèles, l'échec pour la prédiction des modèles classiques de type exponentiel dans des configurations complexes était indéniable.
- Seule, elle ne peut donc pas conceptualiser l'écoulement dans un système : il faut utiliser cette donnée en complément d'autres types de donnée tels que la géophysique ou la géodésie ; la structure géologique peut être contrainte par la dernière et la première fait ainsi le lien avec l'hydrodynamique comme c'est le cas à Plœmeur.
- Pour exploiter au maximum ce type de données, il faut jouer avec l'intégrale (éq. (4)) :
    - spatialisation de la donnée pour jouer sur la dispersion des temps de résidence dans l'idée de la dialectique représentativité/lisibilité;
    - multiplication des traceurs pour jouer sur la fenêtre de mesure dans le temps et contraindre alors préférentiellement certains traits de la distribution;
    - temporaliser la donnée pour démultiplier les traçages.
- La donnée d'âge devrait systématiquement s'intégrer dans un processus itératif entre la mesure et son intégration dans les modèles.

La mise en évidence des fractures sub-horizontales à des échelles locales comme porteuses d'une ressource en eau a révélé la diversité de l'occurrence de la ressource dans les milieux hétérogènes cristallins. Diversité par les structures porteuses, par les échelles caractéristiques et par les propriétés critiques. Cette diversité implique la même diversité dans les techniques d'exploration, d'exploitation et de protection.

Les perspectives de ce travail sont assez larges, allant de la capacité de la fracturation à dévier les autres schémas d'écoulement à différentes échelles à la spatialisation de l'information « âge » pour la conceptualisation des écoulements en passant par la compréhension du site de Plœmeur : modélisation du pôle profond et collecte de nouvelles données (tritium-hélium, argon-39, gaz nobles…).

Table des illustrations

Figure 1-1: Histogramme du nombre de publications ayant pour sujet « fractured aquifers ». La recherche est basée sur le site Web of Knowledge. Les résultats sont similaires pour une recherche ayant pour sujet « hard-rock aquifers » et pour une recherche étant en plus dans le domaine « water resources ». 6

Figure 1-2: Classification des roches fracturées..... 7

Figure 1-3: Occurrences principales des aquifères de socle cristallin dans le monde, d'après Singhal et Gupta (1999). 8

Figure 1-4: Productivité des forages dans des aquifères de socle cristallin de diverses régions du monde, adapté de Singhal et Gupta (1999). 9

Figure 1-5: Profil typique d'altération et de fracturation des aquifères de socle cristallin, d'après Wyns et al. (2004). 10

Figure 1-6: Représentation schématique d'une fracture, d'après Winberg et al. (2000). 10

Figure 1-7: Schéma illustrant la variabilité de l'hétérogénéité à différentes échelles, d'après Meigs and Beauheim (2001). 11

Figure 1-8: Diagramme en rose montrant la variation des capacités spécifiques des puits avec l'orientation des linéaments, d'après Fernandes et Rudolph (2001). 12

Figure 1-9: Caractéristiques hydrauliques de zones altérées en Afrique, adapté de Wright et Burgess (1992). 14

Figure 1-10: Méthode de détermination de l'âge apparent par un gaz atmosphérique: exemple des CFC et du SF_6. 18

Figure 1-11: Problématique de la richesse et de la perte d'information avec les données d'âge. 26

Figure 1-12: Echelle de temps caractéristique de certains traceurs, d'après Newmann et al. (2010). 27

Figure 1-13: Chroniques atmosphériques des CFC et du SF_6, normalisées par leur teneur atmosphérique moyenne. 28

Figure 2-1: Contrôle de version mis en place sous GIT. 41

Figure 2-2: Procédure de double validation pour la mise en commun des développements. .. 42

Figure 2-3: Architecture de la plateforme. 43

Figure 2-4: Création d'un modèle hydrogéologique sous Gocad. 46

Figure 2-5: Création des éléments de surface : topographie et conditions aux limites. 47

Figure 2-6: Visualisation des trajets des particules et du temps de résidence..... 47

Figure 2-7: Intervention de Gocad dans une simulation type : génération du milieu, écoulement et transport. 48

Figure 2-8: Manipulation des données et des résultats dans les différents repères rencontrés pour un interfaçage avec Gocad. 50

Figure 2-9: Fonctionnement du module de transport. 51

Figure 2-10: Comportements possibles des particules à l'interface entre mailles en 2D. 52

Figure 2-11: Algorithme de gestion des particules à l'interface entre mailles..... 54

Figure 2-12: Algorithme d'intégration de la surface libre aux limites du domaine. 56

Figure 2-13: Déroulement d'une simulation type en semi-transitoire. 58

Figure 2-14: Algorithme du produit de convolution réalisé sous MATLAB. 60

Figure 2-15: Extrait annoté de la carte géologique de Lorient (383) au 50 000ème (Horrenberger et al., 1972). 63

Figure 2-16: Bassins hydrologiques à proximité du site de pompage..... 64

Figure 2-17: Profil de la zone de contact déduite de l'inversion des données gravimétriques, d'après Ruelleu et al. (2010). 65

Figure 2-18: Estimation des transmissivités à différentes échelles : à proximité d'un forage (gauche), entre deux forages (10-150m, milieu) et à plus grande échelle (400m, droite), d'après Le Borgne et al. (2006). 66

Figure 2-19: Profondeurs possibles des eaux arrivant au forage F11 déduites de l'anomalie du profil de température avec le gradient géothermique, d'après Bour (2010). Le gradient géothermique est basé sur le profil de température d'un forage n'ayant aucun écoulement. .. 67

Figure 2-20: Evolution temporelle des concentrations en ions chlorures, sulfates et nitrates dans le puits de pompage, adapté de Ayraud (2005)..... 68

Figure 2-21: Part de mélange dans les différents piézomètres et puits de pompage du site de pompage, d'après Laurencelle (Unpublished results). 69

Figure 2-22: Isothermes (°C) sur le site de pompage, d'après Bour (2010). Quelques forages seulement sont représentés. 70

Figure 2-23: Isopièzes (m) en novembre 2006 sur le site de pompage. Quelques forages seulement sont représentés. 71

Figure 4-1: Distribution spatiale des temps de trajet de l'eau dans la zone de contact (a) et dans les micaschistes (b). 108

Figure 4-2: Distribution cumulée de fréquence $F(t)$ du ratio du temps de trajet dans les micaschistes t_{MS} sur le temps de trajet dans la zone de contact t_{CZ}. 109

Figure 4-3: Zone d'alimentation des modèles peu profonds (shallow) en fonction de la perméabilité des micaschistes. 110

Figure 4-4: Niveaux piézométriques dans le puits de pompage obtenus numériquement en fonction des mêmes niveaux piézométriques obtenus analytiquement. Les niveaux piézométriques analytiques sont solution de l'équation de diffusivité en régime permanent avec écoulement radial dans un aquifère penté semi-confiné alimenté par une recharge constante $\boldsymbol{R\cos 2}\ (\boldsymbol{\alpha})$ et exploité à un taux Q_W (éq. (21)). 112

Figure 4-5: Taux de dilution en fonction de l'âge en CFC-12 pour les trois valeurs de perméabilité des micaschistes testées. La fraction d'eau profonde de 40-50% estimée par les données de géochimie est aussi représentée. 113

Figure 5-1: Evolution temporelle de la température de l'eau dans le forage F11, d'après Bour (2010). 158

Figure 6-1: Impact de la profondeur de la zone fracturée sur les chemins d'écoulement. 164

Figure 6-2: Chronique atmosphérique normalisée par la concentration atmosphérique moyenne des CFC et du SF_6 à différents temps d'échantillonnage. 168

Références

Acworth, R.I., 1987. The development of crystalline basement aquifers in a tropical environment. Quaterly Journal of Engineering Geology, 20: 265-272.

Aeschbach-Hertig, W., Schlosser, P., Stute, M., Simpson, H.J., Ludin, A., Clark, J.F., 1998. A $^{3}H/^{3}He$ study of groundwater flow in a fractured bedrock aquifer. Groundwater, 36(4): 661-670.

Amin, I.E., Campana, M.E., 1995. A general lumped parameter model for the interpretation of tracer data and transit time calculation in hydrologic systems. J. Hydrol., 179: 1-21.

Andermann, C., 2006. Calibration and estimation of surface runoff, ground-water recharge and water balance for Plœmeur watershed. Master Thesis, Université de Rennes 1, Rennes, 16 pp.

Andrews, J.N., Lee, D.J., 1979. Inert-gases in groundwater from the bunter sandstone of England as indicators of age and paleoclimatic trends. J. Hydrol., 41(3-4): 233-252. doi:10.1016/0022-1694(79)90064-7.

Aravena, R., Wassenaar, L.I., Plummer, L.N., 1995. Estimating ^{14}C groundwater ages in a methanogenic aquifer. Water Resour. Res., 31(9): 2307-2317.

Ayraud, V., 2005. Détermination du temps de résidence des eaux souterraines: application au transfert d'azote dans les aquifères fracturés hétérogènes. Ph.D Thesis, Université de Rennes 1, Rennes, 312 pp.

Ayraud, V., Aquilina, L., Labasque, T., Pauwels, H., Molenat, J., Pierson-Wickmann, A.-C., Durand, V., Bour, O., Tarits, C., Le Corre, P., Fourre, E., Merot, P., Davy, P., 2008. Compartmentalization of physical and chemical properties in hard-rock aquifers deduced from chemical and groundwater age analyses. Applied geochemistry, 23(9): 2686-2707. doi:10.1016/j.apgeochem.2008.06.001.

Bauer, S., Fulda, C., Schäfer, W., 2001. A multi-tracer study in a shallow aquifer using age dating tracers ^{3}H, ^{85}Kr, CFC-113 and SF_6 - indication of retarded transport of CFC-113 J. Hydrol., 248: 14-34.

Begemann, F., Libby, W.F., 1957. Continental water balance, ground water inventory and storage times, surface ocean mixing rates and world-wide water circulation patterns from cosmic-ray and bomb tritium. Geochimica et Cosmochimica Acta, 12(4): 277-296. doi:10.1016/0016-7037(57)90040-6.

Bethke, C.M., Johnson, T.M., 2002. Paradox of groundwater age : correction. Geology, 30(4): 385-388. doi:10.1130/0091-7613(2002)030<0386:POGAC>2.0.CO;2.

Bethke, C.M., Johnson, T.M., 2008. Groundwater age and groundwater age dating. Annu. Rev. Earth Planet. Sci., 36: 121-152. doi:10.1146/annurev.earth.36.031207.124210.

Bockgard, N., Rodhe, A., Olsson, K.A., 2004. Accuracy of CFC groundwater dating in a crystalline bedrock aquifer: Data from a site in southern Sweden. Hydrogeol. J., 12: 171-183.

Bödvarsson, G.S., Tsang, C.F., 1982. Injection and breakthrough in fractured geothermal reservoirs. Journal of Geophysical Research, 87(B2): 1031-1048. doi:10.1029/JB087iB02p01031

Bour, O., 2010. Rencontre avec la régie municipale de Plœmeur.

Bresciani, E., 2011. Modélisation des contrôles climatiques, topographiques, géologiques et anthropiques sur les écoulements souterraines en deomaine de socle. PhD thesis Thesis, Université de Rennes 1, Rennes, 213 pp.

Bresciani, E., Davy, P., de Dreuzy, J.-R., 2011. A finite volume approach with local adaptation scheme for the simulation of free surface flow in porous media. International Journal For Numerical and Analytical Methods in Geomechanics, 36(13): 1574-1591. doi:10.1002/nag.1065.

Broers, H.P., 2004. The spatial distribution of groundwater age for different geohydrological situations in the Netherlands: implications for groundwater quality monitoring at the regional scale. Journal of Hydrology, 299(1-2): 84-106. doi:10.1016/j.jhydrol.2004.04.023.

Burns, D.A., Plummer, L.N., McDonnell, J.J., Busenberg, E., Casile, G.C., Kendall, C., Hooper, R.P., Freer, J.E., Peters, N.E., Beven, K., Schlosser, P., 2003. The geochemical evolution of Riparian ground water in a forested Piedmont catchment. Groundwater, 41(7): 913-925.

Burton, W.C., Plummer, L.N., Busenberg, E., Lindsey, B.D., Gburek, W.J., 2002. Influence of fracture anisotropy on ground water ages and chemistry, Vakkey and Ridge Province, Pennsylvania. Groundwater, 40(3): 242-257. doi:10.1111/j.1745-6584.2002.tb02652.x.

Busenberg, E., Plummer, L.N., 1992. Use of chlorofluorocarbons (CCl_3F and CCl_2F_2) as hydrologic tracers and age-dating tools - The alluvium and terrace system of Central Oklahoma. Water Resour. Res., 28(9): 2257-2283. doi:10.1029/92WR01263.

Busenberg, E., Plummer, L.N., 2000. Dating young groundwater with sulfur hexafluoride: Natural and anthropogenic sources of sulfur hexafluoride. Water Resour. Res., 36(10): 3011-3030. doi:10.1029/2000WR900151.

Busenberg, E., Weeks, E.P., Plummer, L.N., Bartholemay, R.C., 1993. Age Dating Groundwater by Use of Chlorofluorocarbons (CCl3F and CCl2F2) and Distribution of Chlorofluorocarbons in the Unsaturated Zone, Snake River Plain aquifer, Idaho National Engineering Laboratory, Idaho. Water-Resources Investigations 93-054, 47 pp.

Carn, A., 1990. Mise en valeur des ressources en eau souterraine du socle breton.Département du Morbihan (35) - R31724 BRE 4S/90, BRGM, Rennes.

Carrera, J., Varni, M., 2000. On the use of environmental tracers to characterize flow and transport parameters. In: Bjerg, P.L., Engesgaard, P., Krom, T.D. (Eds.), Groundwater 2000: Proceedings of the International Conference on Groundwater Research. A.A. Balkema Publishers, Leiden, pp. 12.

Castro, M.C., Goblet, P., 2003. Calibration of regional groundwater flow models: Working toward a better understanding of site-specific systems. Water Resour. Res., 39(6): 1172. doi:10.1029/2002WR001653.

Castro, M.C., Goblet, P., 2005. Calculation of ground water ages - a comparative analysis. Groundwater, 43(3): 368-380.

Castro, M.C., Goblet, P., Ledoux, E., Violette, S., de Marsily, G., 1998. Noble gases as natural tracers of water circulation in the Paris Basin, 2. Calibration of a groundwater flow model using noble gas isotope data. Water Resour. Res., 34(10): 2467-2483.

Caumon, G., Collon-Drouaillet, P., Le Carlier de Veslud, C., Sausse, J., Viseur, S., 2009. Surface-based {3D} modeling of geological structures. Mathematical Geosciences, 41(8): 927-945. doi:10.1007/s11004-009-9244-2.

CGWB, 1995a. Bhu-Jal News. 10(1): 46.

CGWB, 1995b. Hydrogeological atlas of Orissa, Bhubaneswar, 147 pp.

Chen, Z., Wei, W., Luiu, J., Wang, Y., Chen, J., 2011. Identifying the recharge sources and age of groundwater in the Songnen Plain (Northeast CHina) using environmental isotopes. Hydrogeol. J., 19: 163-176. doi:10.1007/s10040-010-0650-9.

Chesnaux, R., Molson, J.W., Chapuis, R.P., 2005. An analytical solution for groundwater transit time through unconfined aquifers. Groundwater, 43(4): 511-517.

Chilton, P.J., Smith-Carington, A.K., 1984. Characteristics of the weathered basement aquifer in Malawi in relation to rural water supplies, Harare Symposium. Challenges in African Hydrology and Water Resources IAHS Publication.

Cho, M., Ha, K.-M., Choi, Y.-S., Kee, W.-S., Lachassagne, P., Wyns, R., 2003. Relationship between the permeability of hard-rock aquifers and their weathered cover based on geological and hydrogeological observation in South Korea, IAH Conference on ‘‘Groundwater in fractured rocks", Prague, (15-19 September 2003).

Cleaves, E.T., 1993. Climatic impact on isovolumetric weathering of a coarse-grained schist in the northern Piedmont Province of the central Altantic states. Geomorphology, 8: 1991-1998.

Come, B., Johnston, P., Muller, A., 1984. Design and instrumentaion of *in situ* experiments in underground laboratories for radioactive waste disposal, Proceedings of a Joint CEC-NEA Workshop, 1st edition. Taylor & Francis, Brussels, pp. 474.

Cook, P.G., Love, A.J., Robinson, N.I., Simmons, C.T., 2005. Groundwater ages in fractured rock aquifers. J. Hydrol., 308(1-4): 284-301. doi:10.1016/j.jhydrol.2004.11.005.

Cook, P.G., Solomon, D.K., 1995. Transport of atmospheric trace gases to the water table - Implications for groundwater dating with chlorofluorocarbons and krypton-85. Water Resour. Res., 31(2): 263-270. doi:10.1029/94WR02232.

Cook, P.G., Solomon, D.K., 1997. Recent advances in dating young groundwater: chlorofluorocarbons, $^{3}H/^{3}He$ and ^{85}Kr. J. Hydrol., 191: 245-265.

Cook, P.G., Solomon, D.K., Plummer, L.N., Busenberg, E., Schiff, S.L., 1995. Chlorofluorocarbons as tracers of groundwater transport processes in a shallow, silty sand aquifer. Water Resour. Res., 31(3): 425-434. doi:10.1029/94WR02528.

Cook, P.G., Solomon, D.K., Sanford, W.E., Busenberg, E., Plummer, L.N., Poreda, R.J., 1996. Inferring shallow groundwater flow in saprolite and fractured rock using environmental tracers. Water Resour. Res., 32(6): 1501-1509.

Corcho Alvarado, J.A., Purtschert, R., Barbecot, F., Chabault, C., Rueedi, J., Schneider, V., Aeschbach-Hertig, W., Kipfer, R., Loosli, H.H., 2007. Constraining the age distribution of highly mixed groudnwater using ^{39}Ar: A multiple environmental tracer ($^{3}H/^{3}He$, ^{85}Kr, ^{39}Ar and ^{14}C) study in the semiconfined Fontainebleau Sands Aquifer. Water Resour. Res., 43(W03427). doi:10.1029/2006WR005096.

Corcho Alvarado, J.A., Purtschert, R., Hinsby, K., Troldborg, L., Hofer, M., Kipfer, R., Aeschbach-Hertig, W., Arno-Synal, H., 2005. ^{36}Cl in modern groundwater dated by a multi-tracer approach ($^{3}H/^{3}He$, SF_6, CFC-12 and ^{85}Kr): a case study in quaternary sand

aquifers in the Odense Pilot River Basin, Denmark. Applied Geochemistry, 20: 599-609.

Cornaton, F., Park, Y.-J., Deleersnijder, E., 2011. On the biases affecting water ages inferred from isotopic data. J. Hydrol., 410: 217-225. doi:10.1016/j.jhydrol.2011.09.024.

Cornaton, F., Perrochet, P., 2006. Groundwater age, life expectancy and transit time distributions in advective-dispersive systems: 1. Generalized reservoir theory. Advances in Water Resources, 29(9): 1267-1291. doi:10.1016/j.advwatres.2005.10.009.

Danckwerts, P.V., 1953. Continuous flow systems - Distribution of residence times. Chemical Engineering Science, 2(1): 1-13. doi:10.1016/0009-2509(53)80001-1.

Darcel, C., 2002. Corrélations dans les réseaux de fractures : caractérisation et conséqueces sur les propriétés hydrauliques. Ph.D Thesis, Université de Rennes 1, Rennes.

Darcy, H., 1856. Les fontaines publiques de la ville de Dijon : exposition et application des principes à suivre et des formules à employer dans les questions de distribution d'eau. Victor Dalmont, Paris.

Darling, W.G., Gooddy, D.C., 2007. Assessing the applicability of global CFC and SF_6 input functions to groundwater dating in the UK. Science of Total Environment, 387: 353-362.

Davison, C.C., 1985. Far-field hydrogeological monitoring at the site Canada's Underground Research Laboratory. In: Côme, B., Johnston, P., Müller, A. (Eds.), Design and instrumentation of *In-Situ* Experiments in Underground Laboratories for Radioactive Waste Disposal. A.A. Balkema, Rotterdam, pp. 142-156.

de Dreuzy, J.R., 1999. Analyse des propriétés hydrauliques des réseaux de fractures, Discussion des modèles compatibles avec les principales propriétés géométriques. Ph.D Thesis, Université de Rennes 1, Rennes.

de Dreuzy, J.R., 2001. Hydraulic properties of two-dimensional random fracture networks following a power law length distribution 2. Permeability of networks based on lognormal distribution of apertures. Water Resour. Res., 37(8): 2079-2095. doi:10.1029/2001WR900010.

Dewandel, B., Lachassagne, P., Wyns, R., Maréchal, J.C., Krishnamurthy, N.S., 2006. A generalized 3-D geological and hydrogeological conceptual model of granite aquifers controlled by single or multiphase weathering. J. Hydrol., 330: 260-284. doi:10.1016/j.jhydrol.2006.03.026.

Dewandel, B., Maréchal, J.C., Bour, O., Ladouche, B., Ahmed, S., Chandra, S., Pauwels, H., 2012. Upscaling and regionalizing hydraulic conductivity and effective porosity at watershed scale in deeply weathered crystalline aquifers. J. Hydrol., 416-417: 83-97. doi:10.1016/j.jhydrol.2011.11.038.

Dewandel, B., Perrin, J., Ahmed, S., Aulong, S., Hrkal, Z., Lachassagne, P., Samad, M., Massuel, S., 2010. Development of a tool for managing groundwater resources in semi-arid hard rock regions: application to a rural watershed in South India. Hydrological Processes, 24(19): 2784-2797. doi:10.1002/hyp.7696.

Doyon, B., Molson, J.W., 2012. Groundwater age in fractured porous media : analytical soltion for parallel fractrues. Advances in Water Resources, 37: 127-135. doi:10.1016/j.advwatres.2011.11.008.

Dunkle, S.A., Plummer, L.N., Busenberg, E., Phillips, P.J., Denver, J.M., Hamilton, P.A., Michel, R.L., Coplen, T.B., 1993. Chlorofluorocarbons (CCl_3F and CCl_2F_2) as dating tools and hydrologic tracers in shallow groundwater of the Delmarva Peninsula, Atlantic Coastal Plain, United States. Water Resour. Res., 29(12): 3837-3860.

Ekwurzel, B., Schlosser, P., Smethie Jr., W.M., Plummer, L.N., Busenberg, E., Michel, R.L., R., W., Stute, M., 1994. Dating of shallow groundwater : Comparison of the transient tracers $^{3}H/^{3}He$, chlorofluorocarbons, and ^{85}Kr. Water Resour. Res., 30(6): 1693-1708.

Elewa, H.H., Qaddah, A.A., 2011. Groundwater potentiality mapping in the Sinai Peninsula, Egypt, using remote sensing and GIS-watershed-based modeling. Hydrogeol. J., 19(3): 613-628. doi:10.1007/s10040-011-0703-8.

Engesgaard, P., Hojberg, A.L., Hinsby, K., Jensen, K.H., Laier, T., Larsen, F., Busenberg, E., Plummer, L.N., 2004. Transport and time lag of chlorofluorocarbons gases in the unsaturated zone, Rbis Creek, Denmark. Vadose Zone Journal, 3: 1249-1261.

Erhel, J., 2011. Some properties of Krylov projection methods for large linear systems. Computational technology Reviews, 3: 41-70.

Erhel, J., De Dreuzy, J.R., Beaudoin, A., Bresciani, E., Tromeur-Dervout, 2009. A parallel scientific software for heterogeneous hydrogeology In: Tuncer, I.H., Gülcat, Ü., Emerson, D.R., Matsuno, K. (Eds.), 19th Annual conference on Parallel Computational Fluid Dynamics 2007. Springer, pp. 39-48.

Eriksson, E., 1958. The possible use of tritium for estimating groundwater storage. Tellus, 10(4): 472-476.

Etcheverry, D., 2001. Une approche déterministe des distributions des temps de transit de l'eau souterraine par la théorie des réservoirs- http://doc.rero.ch/lm.php?url=1000,40,4,20050413130217-SL/2_these_EtcheverryD.pdf. PhD Thesis, University of Neuchâtel, Switzerland, 118 pp.

Fernandes, A.J., Rudolph, D.L., 2001. The influence of Cenozoic tectonics on the groundwater-production capacity of fractured zones: a case study in Sao Paulo, Brazil. Hydrogeol. J., 9: 151-167.

Franssen, H.-J.H., Gomez-Hernandez, J., Sahuquillo, A., 2003. Coupled inverse modelling of groundwater flow and mass transport and the worth of concentration data. J. Hydrol., 281(4): 281-295. doi:10.1016/S0022-1694(03)00191-4.

Gelhar, L.W., Wilson, J.L., 1974. Ground-water quality modeling. Groundwater, 12(6): 399-408.

Ginn, T.R., 1999. On the distribution of multicomponent mixtures over generalized exposure time in subsurface flow and reactive transport: Foundations, and formulations for groundwater age, chemical heterogeneity, and biodegradation. Water Resour. Res., 35(5): 1395-1407.

Ginn, T.R., Haeri, H., Massoudieh, A., Foglia, L., 2009. Notes on Groundwater Age in Forward and Inverse Modeling. Transp. Porous Media, 79(1): 117-134. doi:10.1007/s11242-009-9406-1.

Goode, D.J., 1996. Direct simulation of groundwater age. Water Resour. Res., 32(2): 289-296. doi:10.1029/95WR03401.

Greenbaum, D., 1992. Structural influences on the occurence of groundwater in SE Zimbabwe. In: Wright, E.P., Burgess, E.G. (Eds.), Hydrogeology of Crystalline Basement Aquifers in Africa. Geological Society of America, London, pp. 77-85.

Haggerty, R., Gorelick, S.M., 1995. Multiple-rate mass transfer for modeling diffusion and surface reactions in media with pore-scale heterogeneity. Water Resour. Res., 31(10): 2383-2400.

Haitjema, H.M., 1995. On the residence time distribution in idealized groundwatesheds. J. Hydrol., 172(1-4): 127-146. doi:10.1016/0022-1694(95)02732-5.

Harnisch, J., Eisenhauer, A., 1998. Natural CF_4 and SF_6 on Earth. Geophysical Research Letters, 25(13): 2401-2404.

Heaton, T.H.E., Vogel, J.C., 1981. Excess air in groundwater. J. Hydrol., 50(1-3): 201-216. doi:10.1016/0022-1694(81)90070-6.

Herzberg, O., Mazor, E., 1979. Hydrological applications of noble-gases and temperature-measurements in underground water-systems - Examples from Israel. J. Hydrol., 41(3-4): 217-231. doi:10.1016/0022-1694(79)90063-5.

Horrenberger, J.C., Morzadec, M.T., Cogné, J., 1972. Lorient (383), Carte géologique de la France à 1/50 000. BRGM, Orléans, pp. Geological Map

Houston, J.F.T., 1992. Rural water supplies: comparative case histories from Nigeria and Zimbabwe. In: Wright, E.P., Burgess, E.G. (Eds.), The hydrogeology of crystalline basement aquifers in Africa. Geological Society Special Publication, London, pp. 243-257.

Houston, J.F.T., Lewis, R.T., 1998. The Victoria Province drought relief project, II. Borehole yield relationships. Groundwater, 26(4): 418-426.

IAEA, 2006. Use of chlorofluorocarbons in hydrology : a guidebook. International Atomic Energy Agency, Vienna, 277 pp.

Ivey, S.S., Gentry, R.W., Larsen, D., Anderson, J., 2008. Inverse application of age-distribution modeling using environmental tracers 3H/3He. J. Hydrol. Eng., 13(11): 1002-1010. doi:10.1061/(ASCE)1084-0699(2008)13:11(1002).

Izbicki, J.A., Stamos, C.L., Nishikawa, T., Martin, P., 2004. Comparison of ground-water flow model particle-tracking results and isotopic data in the Mojave River ground-water basin, southern California, USA. J. Hydrol., 292: 30-47.

Jayasena, H.A.H., Singh, B.K., Dissanayake, C.B., 1986. Groundwater occurrences in the hard rock terrains of Sri Lanka - a case study. Aqua, 4: 214-219.

Johnston, C.T., Cook, P.G., Frape, S.K., Plummer, L.N., Busenberg, E., Blackport, R.J., 1998. Ground water age and nitate distribution within a glacial aquifer beneath a thick unsaturated zone. Groundwater, 36(1): 171-180.

Kaehler, C.A., Hsieh, P.A., 1994. Hydraulic properties of a fractured rock aquifer, Lee Valley, San Diego County, California, US Geological Survey Water supply paper 2394.

Katz, B.G., Lee, T.M., Plummer, L.N., Busenberg, E., 1995. Chemical evolution of groundwater near a sinkhole lake, northern Florida 1/ Flow patterns, age of groundwater, and influence of lake water leakage. Water Resour. Res., 31(6): 1549-1564.

Kaufman, S., Libby, W.F., 1954. The Natural Distribution of Tritium. Physical Review, 93(6): 1337-1344. doi:10.1103/PhysRev.93.1337.

Knowles, L.J., Katz, B.G., Toth, D.J., 2010. Using multiple chemical indicators to characterize and determine the age of groundwater from selected vents of the Silver Springs Group, central Florida, USA. Hydrogeol. J., 18: 1825-1838. doi:10.1007/s10040-010-0669-y.

Koh, D.-C., Plummer, L.N., Busenberg, E., Kim, Y.-J., 2007. Evidence for terrigenic SF_6 in groundwater from basaltic aquifers, Jeju Island, Korea : Implications for groundwater dating. J. Hydrol., 339(1-2): 93-104. doi:10.1016/j.jhydrol.2007.03.011.

Koh, D.-C., Plummer, L.N., Solomon, D.K., Busenberg, E., Kim, Y.-J., Chang, H.-W., 2006. Application of environmental tracers to mixing, evolution, and nitrate contamination of ground water in Jeju Island, Korea. J. Hydrol., 327(1-2): 258-275. doi:10.1016/j.jhydrol.2005.11.021.

Koide, H., Tazaki, Y., Noguchi, Y., Nakayama, S., Iljima, M., Ito, K., Shindo, Y., 1992. Subterranean containment and long-term storage of carbon-dioxide in unused aquifers and in depleted natural-gas reservoirs. In: management, E.c.a. (Ed.), 1ST International Conference on carbon dioxide removal (ICCDR) AMSTERDAM, NETHERLANDS. Pergamon-Elsevier Science LTD, THE BOULEVARD, LANGFORD LANE, KIDLINGTON, OXFORD, ENGLAND OX5 1GB, (MAR 04-06, 1992) pp. 619-626.

Kouamé, K.F., Lasm, T., De Dreuzy, J.R., Akaffou, A.G., Bour, O., Davy, P., 2010. Contribution d'un modèle hydrogéologique stochastique à fractures discrètes à l'étude des aquifères fracturés du socle Archéen de Touba (Nord-Ouest de la Côte d'Ivoire). Revue des Sciences de l'Eau, 23(1): 41-56.

Kuusela-Lahtinen, A., Niemi, A., Luukkonen, A., 2003. Flow Dimension as an Indicator of Hydraulic Behavior in Site Characterization of Fractured Rock. Groundwater, 41(3): 333-341.

Laaksoharju, M., Skårman, C., Skårman, E., 1999. Multivariate mixing and mass balance (M3) calculations, a new tool for decoding hydrogeochemical information. Applied geochemistry, 14: 861-871.

Lachassagne, P., Wyns, R., Bérard, P., Bruel, T., Chéry, L., Coutand, T., Desprats, J.-F., Le Strat, P., 2001. Exploitation of high-yields in hard-rock aquifers: downscaling methodology combining GIS and multicriteria analysis to delineate field prospecting zones. Groundwater, 39(4): 568-581.

Lachassagne, P., Wyns, R., Dewandel, B., 2011. The fracture permeability of hard rock aquifers is due neither to tectonics, nor to uploading, but to weathering processes. Terra Nova, 23: 145-161. doi:10.1111/j.1365-3121.2011.00998.x.

Larsson, I., 1972. Ground water in granite rocks and tectonic models. Nordic Hydrology, 3: 111-129.

Laurencelle, M., Unpublished results. Influence des processus de mélange sur la chimie des eaux souterraines - Application au site de Plœmeur. Master Thesis, University of Rennes, Rennes, 30 pp.

Le Borgne, T., Bour, O., Paillet, J.-L., Caudal, J.-P., 2006. 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 Carlier de Veslud, C., Cuney, M., Lorilleux, G., Royer, J.-J., Jebrak, M., 2009. 3D modeling of uranium-bearing solution-collapse breccias in Proterozoic sandstones (Athabasca Basin, Canada).Metallogenic interpretations. Computers and Geosciences, 35(1): 92-107. doi:10.1016/j.cageo.2007.09.008.

Lee, S., Kim, Y.S., Oh, H.J., 2012. Application of a weights-of-evidence method and GIS to regional groundwater productivity potential mapping. Journal of Environmental Management, 96(1): 91-105. doi:10.1016/j.jenvman.2011.09.016.

Leray, S., de Dreuzy, J.R., Bour, O., Labasque, T., Aquilina, L., 2012. Contribution of age data to the characterization of complex aquifers. J. Hydrol., 464-465: 54-68. doi:10.1016/j.jhydrol.2012.06.052.

Lerner, D.N., Papatolios, K.T., 1993. A simple analytical approach for predicting nitrate concentrations in pumped ground-water. Groundwater, 31(3): 370-375. doi:10.1111/j.1745-6584.1993.tb01837.x.

Liou, T.S., Lee, Y.H., Chiang, L.W., Lin, W., Guo, T.R., Chen, W.S., Chien, J.M., 2010. Alternative water resources in granitic rock: a case study from Kinmen Island, Taiwan. ENVIRONMENTAL EARTH SCIENCES, 59(5): 1033-1046. doi:10.1007/s12665-009-0095-4.

Long, A.J., Putnam, L.D., 2006. Translating CFC-based piston ages into probability density functions of ground-water age in karst. J. Hydrol., 330: 735-747.

Long, A.J., Putnam, L.D., 2009. Age-distribution estimation for karst groundwater : Issues of parameterization and complexity in inverse modeling by convolution. J. Hydrol., 376: 579-588.

Long, J.C.S., Remer, J.S., Wilson, C.R., Witherspoon, P.A., 1982. Porous media equivalents for networks of discontinuous fractures. Water Resour. Res., 18(3): 645-658.

Luther, K.H., Haitjema, H.M., 1998. Numerical experiments on the residence time distributions of heterogeneous groundwatersheds. J. Hydrol., 207(1-2): 1-17. doi:10.1016/S0022-1694(98)00112-7.

Maiss, M., Brenninkmeijer, C., 1998. Atmospheric SF_6 : Trends, sources and prospects. Environmental Science and Technology, 32(20): 3077-3086. doi:10.1021/es9802807.

Maloszewski, P., Zuber, A., 1982. Determining the turnover time of groundwater systems with the aid of environmental tracers, 1. Models and their applicability. J. Hydrol., 57(3-4): 207-231.

Maloszewski, P., Zuber, A., 1991. Influence of matrix diffusion and exchange reactions on radiocarbon ages in fissured carbonate aquifers. Water Resour. Res., 27(8): 1937-1945.

Masoud, A., Koike, K., 2005. Remote sensing and GIS integration for groundwater potential mapping in Sinai Peninsula, Egypt. In: Cheng, Q., BonhamCarter, G. (Eds.), Annual Conference of the International-Association-for-Mathematical-Geology. GIS and Spatial Analysis, Vol 1 and 2. York University, Toronto, pp. 440-445.

Massoudieh, A., Ginn, T.R., 2011. The theoretical relation between unstable solutes and groundwater age. Water Resour. Res., 47, W10523. doi:10.1029/2010WR10039.

Matthess, G., 1982. The properties of groundwater. John Wiley & Sons In, New York, 420 pp.

Mattle, N., Kinzelbach, W., Beyerle, U., Huggenberger, P., Loosli, H.H., 2001. Exploring an aquifer system by integrating hydraulic, hydrogeologic, and environmental tracer data in a three-dimensional hydrodynamic transport model. J. Hydrol., 242: 183-196.

Mayer, J.R., Sharp, J.M.J., 1998. Fracture control of regional ground-water flow in a carbonate aquifer in a semi-arid region. Geological Society of America Bulletin, 110(2): 269-283. doi:10.1130/0016-7606(1998)110<0269:FCORGW>2.3.CO;2.

McMahon, P.B., Carney, C.P., Poeter, E.P., Peterson, S.M., 2010. Use of geochemical, isotopic, and age tracer data to develop models of groundwater flow for the purpose of water management, northern High Plains aquifer, USA. Applied geochemistry, 25: 910-922. doi:10.1016/j.apgeochem.20120.04.001.

Meigs, L.C., Beauheim, R.L., 2001. Tracer tests in a fractured dolomite 1. Experimental design and observed tracer recovery. Water Resour. Res., 37: 1113-1128.

Murphy, H.D., Tester, J.W., Grigsby, C.O., Potter, R.M., 1981. Energy extraction from fractured geothermal-reservoirs in low-permeability crystalline rock. Journal of Geophysical Research, 86(NB8): 7145-7158. doi:10.1029/JB086iB08p07145.

Naik, P.K., Awasthi, A.K., Anand, A.V.S.S., Mohan, P.C., 2001. Hydrogeologic framework of the Deccan terrain of the Koyna River basin, India. Hydrogeol. J., 9(3): 243-264. doi:10.1007/s100400100123.

Narayana, G.S., Lakshmaiak, N., Goud, P.V.P., 1996. Hydrogeomorphological study based on remote sensing of Mulug Taluk, Warangal district, Andhra Pradesh, India. Hydrological Sciences Journal - Journal des Sciences Hydrologiques, 41(2): 137-151. doi:10.1080/02626669609491488.

Negrel, P., Pauwels, H., Dewandel, B., Gandolfi, J.M., Mascre, C., Ahmed, S., 2011. Understanding groundwater systems and their functioning through the study of stable water isotopes in a hard-rock aquifer (Maheshwaram watershed, India). J. Hydrol., 397(1-2): 55-70. doi:10.1016/j.jhydrol.2010.11.033.

Neretnieks, I., 1990. Diffusion in the rock matrix - an important factor in radionuclide retardation. Journal of Geophysical Research, 85(NB8): 4379-4397.

Neupauer, R., Wilson, J., 1999. Adjoint Method for Obtaining Backward-in-Time Location and Travel Time Probabilities of a Conservative Groundwater Contaminant. Water Resources Research, 35(11): 3389-3398.

Neupauer, R., Wilson, J., 2001. Adjoint-Derived Location and Travel Time Probabilities for a Multidimensional Groundwater System. Water Resources. Research, 37(6): 1657-1668.

Neves, M.A., Morales, N., 2007. Structural control over well productivity in the Jundiaí River catchment, Southeastern Brazil. Anais da Academia Brasileira de Ciências, 79(2): 307-320.

Newman, B.D., Osenbrück, K., Aeschbach-Hertig, W., Solomon, D.K., Cook, P.G., Rozanski, K., Kipfer, R., 2010. Dating of 'young' groundwaters using environmental tracers: advantages, applications, and research needs. Isotopes in Environmental and Health Studies, 46(3): 259-278.

Oh, H.J., Kim, Y.S., Choi, Y.-S., Park, E., Lee, S., 2011. GIS mapping of regional probabilistic groundwater potential in the area of Pohang City, Korea. J. Hydrol., 399(3-4): 158-172. doi:10.1016/j.jhydrol.2010.12.027.

Osenbrück, K., Fiedler, S., Knöller, K., Weise, S.M., Sültenfuβ, J., Oster, H., Strauch, G., 2006. Timescales and development of groundwater pollution by nitrate in drinking water wells of Jahna-Aue, Saxonia, Germany. Water Resour. Res., 42(W12416). doi:10.1029/2006WR004977.

Oster, H., Sonntag, C., Munnich, K.O., 1996. Groundwater age dating with chlorofluorocarbons. Water Resources Research, 32(10): 2989-3001.

Ozyurt, N.N., Bayari, C.S., 2003. LUMPED : a Visual Basic code of lumped-parameter models for mean residence time analyses of groundwater systems. Computers and Geosciences, 29(1): 79-90. doi:10.1016/S0098-3004(02)00075-4.

Ozyurt, N.N., Bayari, C.S., 2005. LUMPED Unsteady : a Visual Basic code of unsteady-state lumped-parameter models for mean residence time analyses of groundwater systems. Computers and Geosciences, 31(3): 329-341. doi:10.1016/j.cageo.2004.09.024.

Park, E., Bethke, C.M., Torgersen, T., Johnson, T.M., 2002. Transport modeling applied to the interpretation of groundwater Cl-36 age. Water Resour. Res., 38(5). doi:10.1029/2001wr000399.

Pearson, F.J.J., White, D.E., 1967. Carbon 14 ages and flow rates of water in Carrizo sand, Atascosa County, Texas. Water Resour. Res., 3(1): 251-261.

Perumal, A., 1990. Hydromorphogeological investigations in parts of Athur Valley, Tamilnadu, India, using remote sensing data. PhD (unpublished) Thesis, University of Roorkee.

Philips, F.M., Castro, M.C., 2003. Groundwater Dating and Residence-time Measurements. In: Drever, J.I., and, H.D.H., Turekian, K.K. (Eds.), Treatise on Geochemistry. Elsevier, pp. 451-497.

Plummer, L.N., Busenberg, E., Böhlke, J.K., Nelms, D.L., Michel, R.L., Schlosser, P., 2001. Groundwater residence times in Shenandoah National Park, Blue Ridge Moutains, Virginia USA : a multi-tracer approach. Chemical Geology, 179(1-4): 93-111. doi:10.1016/S0009-2541(01)00317-5.

Plummer, L.N., Busenberg, E., Drenkard, S., Schlosser, P., Ekwurzel, B., Weppernig, R., McConnell, J.B., Michel, R.L., 1998a. Flow of river water into a karstic limestone aquifer- 2. Dating the young fraction in groundwater mixtures inthe Upper Floridan aquifer mear Valdosta, Georgia. Applied Geochemistry, 13(8): 1017-1043.

Plummer, L.N., Busenberg, E., McConnell, J.B., Drenkard, S., Schlosser, P., Michel, R.L., 1998b. Flow of river water into a karstic limestone aquifer- 1. Tracing the young fraction in groundwater mixtures in the Upper Floridan Aquifer near Valdosta, Georgia. Applied Geochemistry, 13(8): 995-1015.

Plummer, L.N., Prestemon, E.C., Parkhurst, D.L., 1991. An interactive code (NETPATH) for modeling net geochemical reactions along a flow path. U.S. Geological Survey Water Resources Investigation, 91-4078, 120 pp.

Plummer, L.N., Sprinkle, C.L., 2001. Radiocarbon dating of dissolved inorganic carbon in groundwater from confined parts of the Upper Floridan aquifer, Florida, USA. Hydrogeol. J., 9: 127-150. doi:10.1007/s100400000121.

Portniaguine, O., Solomon, D.K., 1998. Parameter estimation using groundwater age and head data, Cape Cod, Massachusetts. Water Resour. Res., 34(4): 637-645.

Qin, D., Qian, Y., Han, L., Wang, Z., Li, C., Zhao, Z., 2011. Assessing the impact of irrigation water on groundwater recharge and quality in arid environment using CFCs, tritium and stable isotopes, in the Zhangye Basin, Northwest China. J. Hydrol., 405: 194-208. doi:10.1016/j.jhydrol.2011.05.023.

Rao, N.S., 2006. Groundwater potential index in a crystalline terrain using remote sensing data. Environmental Geology, 50(7): 1067-1076. doi:10.1007/s00254-006-0280-7.

Reilly, T.E., Plummer, L.N., Phillips, P.J., Busenberg, E., 1994. The use of simulation and multiple environmental tracers to quantify groundwater flow in a shallow aquifer. Water Resour. Res., 30(2): 421-433.

Robertson, W.D., Cherry, J.A., 1989. Tritium as an indicator of recharge and dispersion in a groundwater system in Central Ontario. Water Resour. Res., 25(6): 1097-1109. doi:10.1029/WR025i006p01097.

Ruelleu, S., Moreau, F., Bour, O., Gapais, D., Martelet, G., 2010. Impact of gently dipping discontinuities on basement aquifer recharge: An example from Plœmeur (Brittany, France). Journal of Applied Geophysics, 70(2): 161-168. doi:10.1016/j.jappgeo.2009.12.007.

Sander, P., 2007. Lineaments in groundwater exploration : a review of applications and limitations. Hydrogeol. J., 15: 71-74. doi:10.1007/s10040-006-0138-9.

Sanford, W.E., 2011. Calibration of models using groundwater age. Hydrogeol. J., 19: 13-16.

Sanford, W.E., Aeschbach-Hertig, W., Herczeg, A.L., 2011. Preface: Insights from environmental tracers in groundwater systems. Hydrogeol. J., 19: 1-3.

Sanford, W.E., Plummer, L.N., McAda, D.P., Bexfield, L.M., Anderholm, S.K., 2004. Hydrochemical tracers in the middle Rio Grande Basin, USA: 2. Calibration of a groundwater-flow model. Hydrogeol. J., 12(4): 389-407. doi:10.1007/s10040-004-0326-4.

Shapiro, A.M., 2011. The challenge of interpreting environmental tracer concentrations in fractured rock and carbonate aquifers. Hydrogeol. J., 19: 9-12.

Shapiro, S.D., Rowe, G.L., Schlosser, P., Ludin, A., Stute, M., 1998. Tritium-helium 3 dating under complex conditions in hydraulically stressed areas of a buried-valley aquifer. Water Resour. Res., 34(5): 1165-1180.

Shapiro, S.D., Schlosser, P., Smethie Jr., W.M., Stute, M., 1997. The use of ^{3}H and tritiogenic ^{3}He to determine CFC degradation and vertical mixing rates in Framvaren Fjord, Norway. Marine chemistry, 59(1-2): 141-157. doi:10.1016/S0304-4203(97)00007-8

Sheets, R.A., Scott Bair, E., Rowe, G.L., 1998. Use of $^{3}H/^{3}He$ ages to evaluate and improve groundwater flow models in a complex buried-valley aquifer. Water Resour. Res., 34(5): 1077-1089.

Siddiqui, S.H., Parizek, R.R., 1971. Hydrogeologic Factors Influencing Well Yields in Folded and Faulted Carbonate Rocks in Central Pennsylvania. Water Resour. Res., 7(5): 1295-1312.

Singhal, B.B.S., Gupta, R.P., 1999. Applied hydrogeology of fractured rocks, First Edition. Kluwer Academic Publishers (Springer) Dordrecht, Netherlands, 400 pp.

Singhal, B.B.S., Gupta, R.P., 2010. Applied hydrogeology of fractured rocks, Second Edition. Kluwer Academic Publishers (Springer) Dordrecht, Netherlands, 428 pp.

Solomon, D.K., Genereux, D.P., Plummer, L.N., Busenberg, E., 2010. Testing mixing models of old and young groundwater in a tropical lowland rain forest with environmental tracers. Water Resour. Res., 46(W04518). doi:10.1029/2009WR008341.

Solomon, D.K., Poreda, R.J., Cook, P.G., Hunt, A., 1995. Site characterization using $^{3}H/^{3}He$ groundwater ages, Cape Cod, MA. Groundwater, 33(6): 988-996.

Solomon, D.K., Poreda, R.J., Schiff, S.L., Cherry, J.A., 1992. Tritium and helium 3 as groundwater age tracers in the Borden aquifer. Water Resour. Res., 28(3): 741-755.

Starn, J.J., Bagtzoglou, A.C., Robbins, G.A., 2010. Using atmospheric tracers to reduce uncertainty in groundwater recharge areas. Groundwater, 48(6): 858-868. doi:10.1111/j.1745-6584.2010.00674.x.

Stichler, W., Maloszewski, P., Bertleff, B., Watzel, R., 2008. Use of environmental isotopes to define the capture zone of a drinking water supply situated near a dredge lake. J. Hydrol., 362: 220-233. doi:10.1016/j.jhydrol.2008.08.024.

Stotler, R.L., Frape, S.K., El Mugammar, H.T., Johnson, C.T., Judd-Henrey, I., Harvey, F.E., Drimmie, R., Jones, J.P., 2011. Geochemical heterogeneity in a small, stratigraphically complex moraine aquifer system (Ontario, Canada): interpretation of flow and recharge using geochemical parameters. Hydrogeol. J., 19: 101-115. doi:10.1007/s10040-010-0628-7.

Stotler, R.L., Harvey, F.E., Gosslin, D., 2010. A Black Hills-Madison aquifer origin for Dakota aquifer groundwater in Northeastern Nebraska. Groundwater, 48(3): 448-464. doi:10.1111/j.1745-6584.2009.00636.x.

Sturchio, N.C., Du, X., Purtschert, R., Lehmann, B.E., Sultan, M., Patterson, L.J., Lu, Z.-T., Müller, P., Bigler, T., Bailey, K., O'Connor, T.P., Young, L., Lorenzo, R., Becker, R., El Alfy, Z., El Kaliouby, B., Dawood, Y., Abdallah, M.A.A., 2004. One million year old groundwater in the Sahara revealed by krypton-81 and chlorine-36. Geophysical Research Letters, 31.

Sültenfuβ, J., Purtschert, R., Führböter, J.F., 2011. Age structure and recharge conditions of a coastal aquifer (northern Germany) investigated with ^{39}Ar, ^{14}C, ^{3}H, He isotopes and Ne. Hydrogeol. J., 19: 221-236. doi:10.1007/s10040-010-0663-4.

Szabo, Z., Rice, D.E., Plummer, L.N., Busenberg, E., Drenkard, S., Schlosser, P., 1996. Age dating of shallow groundwater with chlorofluorocarbons, tritium/helium 3, and flow path analysis, southern New Jersey coastal plain. Water Resour. Res., 32(4): 1023-1038.

Taylor, R., Howard, K., 2000. A tectono-geomorphic model of the hydrogeology of deeply weathered crystalline rocks : Evidence from Uganda. Hydrogeol. J., 8: 279-294.

Tiedeman, C.R., Hsieh, P.A., 2004. Evaluation of longitudinal dispersivity estimates from simulated forced- and natural-gradient tracer tests in heterogeneous aquifers. Water Resour. Res., 40(W12411). doi:10.1029/2004WR003313.

Touchard, F., 1999. Caractérisation hydrogéologique d'un aquifère en socle fracturé : Site de Plœmeur (Morbihan). PhD Thesis, University of Rennes 1, France, 343 pp.

Troldborg, L., Jensen, K.H., Engesgaard, P., Refsgaard, J.C., Hinsby, K., 2008. Using environmental tracers in modeling flow in a complex shallow aquifer system. J. Hydrol. Eng., 13(11): 1037-1048. doi:10.1061/(asce)1084-0699(2008)13:11(1037).

Troldborg, L., Refsgaard, J.C., Jensen, K.H., Engesgaard, P., 2007. The importance of alternative conceptual models for simulation of concentrations in a multi-aquifer system. Hydrogeol. J., 15(5): 843-860. doi:10.1007/s10040-007-0192-y.

Tsang, C.-F., Neretnieks, I., 1998. Flow channeling in heterogeneous fractured rocks. Reviews of Geophysics, 36(2): 275-298. doi:10.1029/97RG03319

Tsang, Y.W., Tsang, C.F., Hale, F.V., Dverstorp, B., 1996. Tracer transport in a stochastic continuum model of fractured media. Water Resour. Res., 32(10): 3077-3092. doi:10.1029/96WR01397.

UNESCO, 1972. Groundwater studies. In: Brown, R.H., Konoplyantsev, A.A., Ineson, J., Kovalevski, V.S. (Eds.). Unesco, Paris.

UNESCO, 1979. Water in crystalline rocks SC-77/WS/71, Unesco, Paris.

UNESCO, 1984. Groundwater in hard rocks, Studies and reports in Hydrology 33, Paris.

UNESCO, 2009. Water in a changing world, United Nations World Water Development Report, 3rd edition, 5th World Water Forum, Istanbul.

Vandenbohede, A., Hinsby, K., Courtens, C., Lebbe, L., 2011. Flow and transprot model of a polder area in the Belgian coastal plain: example of data integration. Hydrogeol. J., 19: 1599-1615. doi:10.1007/s10040-011-0781-7.

Vandermeer, L.G.H., 1995. The CO_2 storage efficiency of aquifers. Energy conversion and management, 36(6-9): 513-518. doi:10.1016/0196-8904(95)00056-J.

Varni, M., Carrera, J., 1998. Simulation of groundwater age distributions. Water Resour. Res., 34(12): 3271-3281. doi:10.1029/98WR02536.

von Buttlar, H., Libby, W.F., 1955. Natural distribution of cosmic-ray produced tritium II. Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry, 1(1-2): 75-91. doi:10.1016/0022-1902(55)80070-X.

Walker, D.D., Gylling, B., Ström, A., Selroos, J.O., 2001. Hydrogeologic studies for nuclear-waste disposal in Sweden. Hydrogeol. J., 9: 419-431. doi:10.1007/s100400100156.

Wassenaar, L.I., Aravena, R., Hendry, j., Fritz, P., 1991. Radiocarbon in Dissolved Organic Carbon, a possible groundwater dating method : case studies from Western Canada. Water Resour. Res., 27(81975-1986).

Weissmann, G.S., Zhang, Y., LaBolle, E.M., Fogg, G.E., 2002. Dispersion of groundwater age in an alluvial aquifer system. Water Resour. Res., 38(10). doi:10.1029/2001wr000907.

White, A.F., Bullen, T.D., Schulz, M.S., Blum, A.E., Huntington, T.G., Peters, N.E., 2001. Different rates of feldspar weathering in granitic regoliths. Geochimica et Cosmochimica Acta, 65(6): 847-869.

White, B.A., Burbey, T.J., 2007. Evidence for structurally controlled recharge in the Blue Ridge Province, Virginia, USA. Hydrogeol. J., 15: 929-943. doi:10.1007/s10040-006-0150-0.

Wilson, G.B., McNeill, G.W., 1997. Noble gas recharge temperatures and the excess air component. Applied geochemistry, 12(6): 747-762. doi:10.1016/S0883-2927(97)00035-8.

Winberg, A., Andersson, P., Hermanson, J., Byegård, J., Cvetkovic, V., Birgersson, L., 2000. Äspö Hard Rock Laboratory. Final report of the first stage of the tracer retention

understanding experiments. SKB TR-00-07, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management.

Woolfenden, L.R., Ginn, T.R., 2009. Modeled ground water age distributions. Groundwater, 47(4): 547-557.

Wright, E.P., 1988. Basement quifer project (Discussion on radon surveys and exploration drilling in Zimbabwe), Unpublished report of the British Geological Society.

Wright, E.P., Burgess, W.G., 1992. The Hydrogeology of Crystalline Basement Aquifers in Africa. Geological Society Special Publication n°66. The Geological Society, London, 262 pp.

Wyns, R., Baltassat, J.M., Lachassagne, P., Legchenko, A., Vairon, J., Mathieu, F., 2004. Bulletin de la Société Géologique de France. Application of SNMR soundings for groundwater reserves mapping in weathered basement rocks (Brittany, France), 175(1): 21-34.

Zhou, Y., Haitjema, H.M., 2012. Approximate solutions for radial travel time and capture zone in unconfined aquifers. Groundwater, 50(5). doi:10.1111/j.1745-6584.2011.00883.x.

Zoellmann, K., Kinzelbach, W., Fulda, C., 2001. Environmental tracer transport (^3H and SF_6) in the saturated and unsaturated zone and its use in nitrate pollution management. J. Hydrol., 240: 187-205.

Zuber, A., Rozanski, K., Kania, J., Purtschert, R., 2011. On some methodological problems in the use of environmental tracers to estimate hydrogeologic parameters and to calibrate flow and transport models. Hydrogeol. J., 19: 53-69.