



HAL
open science

Contrôles physiques, chimiques et biologiques des flux de gaz à l'interface sol-atmosphère

Clément Alibert

► **To cite this version:**

Clément Alibert. Contrôles physiques, chimiques et biologiques des flux de gaz à l'interface sol-atmosphère. Sciences de la Terre. Université Paris sciences et lettres, 2020. Français. NNT : 2020UPSLE014 . tel-03224875v2

HAL Id: tel-03224875

<https://theses.hal.science/tel-03224875v2>

Submitted on 12 May 2021

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

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



THÈSE DE DOCTORAT
DE L'UNIVERSITÉ PSL

Préparée au Laboratoire de Géologie de l'ENS, au CEA/ DAM Île-De-France
et au CEREEP-Ecotron ÎleDeFrance

**Contrôles physiques, chimiques et biologiques
des flux de gaz à l'interface sol-atmosphère**

Soutenue par

Clément ALIBERT

Le 09 Octobre 2020

Ecole doctorale n° 560

**Sciences de la Terre et de
l'Environnement et
Physiques de l'Univers de
Paris**

Spécialité

Terre et Environnement

Composition du jury :

Florence, HABETS Dr., ENS	<i>Présidente</i>
Laurent, CHARLET Prof., ISTERre Grenoble	<i>Rapporteur</i>
Corinne, LOISY Prof., ENSEGID Bordeaux	<i>Rapporteuse</i>
Marina, GILLON Dr., UAPV-INRAE	<i>Examinatrice</i>
Samuel, ABIVEN Prof., ENS	<i>Invité</i>
Eric, PILI Dr., CEA, DAM, DIF	<i>Directeur de thèse</i>
Pierre, BARRE Dr., ENS	<i>Co-encadrant de thèse</i>



Remerciements

Je tiens à remercier dans un premier temps les deux personnes qui m'ont confié ce sujet alors que je n'étais encore qu'étudiant ingénieur. Je remercie mon directeur de thèse Eric Pili et mon co-encadrant Pierre Barré. Je vous suis pleinement reconnaissant, tant pour votre confiance, votre justesse d'encadrement, votre bienveillance, votre disponibilité que pour vos conseils toujours avisés. Cette aventure de plus de quatre ans sur ce sujet finalise mon parcours d'ingénieur et de chercheur. J'ai l'intime conviction qu'avoir travaillé avec vous a été une chance. Votre aide et nos échanges n'ont fait qu'amplifier ma curiosité et ma volonté de poursuivre dans le domaine de la recherche, et pour cela je vous dis merci.

Mes remerciements vont ensuite à Laurent Charlet et Corinne Loisy, qui ont accepté de rapporter sur ce manuscrit, ainsi qu'à Florence Habets, Marina Gillon et Samuel Abiven, qui complète mon jury de soutenance de thèse. Je suis honoré que ce travail soit jugé par vos soins. Je souhaite remercier par la même occasion les membres de mon comité de suivi de thèse : Jean-François Le Galliard, Florent Barbecot et Sophie Guillon. Chacune de nos réunions annuelles a été riche de discussions, de conseils et d'encouragements.

Ce projet provenant de la collaboration entre le Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives (CEA) et l'Ecole Normale Supérieure (ENS) au sein du Laboratoire de Recherche Conventionné (LRC) Yves-Rocard, je tiens à remercier solennellement ces deux organismes de m'avoir donné l'opportunité et les moyens de travailler sur ce sujet. Plus particulièrement, au CEA, à la Direction des Applications Militaires (DAM-Île de France), mes remerciements vont au Département Analyse, Surveillance, Environnement, au Service Radioanalyses, Chimie, Environnement et au Laboratoire Hydrogéochimie et Études de Sites. À l'ENS, mes remerciements vont au Département de Géosciences et au Laboratoire de Géologie. Dans ces deux organismes, les échelons de directions, les personnels administratifs, les chercheurs et techniciens ont rendu ce projet possible. Bien que mes passages au sein de vos établissements fussent ponctuels, je vous remercie pour votre disponibilité, votre aide sur divers problèmes ainsi que sur votre soutien pour participer à différents congrès.

Grâce à ce projet, j'ai pu bénéficier de plusieurs collaborations. Merci à Jérôme Corvisier et au Centre de Géosciences de MINES ParisTech (Fontainebleau) pour leur intérêt concernant mon sujet et leur aide à la prise en main du code HYTEC. Merci à Charles Carrigan et Yunwei Sun Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL, Californie) pour leur intérêt concernant mes expériences et

leur aide à la prise en main du code NUFT. Par la même occasion je souhaite remercier Charles et Suzanne pour leur hospitalité durant mon passage d'un mois au LLNL. Ce fût un réel plaisir de partager ces semaines en votre compagnie.

Vient alors l'expression de mes remerciements les plus chaleureux envers le personnel de l'Unité Mixte de Service CEREEP Ecotron-ÎleDeFrance (Saint Pierre-lès-Nemours). Merci à Jean-François Le Galliard d'avoir accepté ma présence permanente au sein de son unité durant tout ce temps. Partager mon quotidien avec vous depuis Février 2016 a été un privilège immense. Que de péripéties à Nemours en votre compagnie, en passant des inondations au déménagement de l'unité, des projets de recherche variés aux sorties QVT, les formations, les cafécoms. Mes souvenirs de toutes ces années à vos côtés ne sont remplis que de bons moments. Je n'aurai que peu de mots pour exprimer mes amitiés envers chacun d'entre vous. Je suis sincèrement reconnaissant envers votre bienveillance. Je souhaite à tout le monde de connaître un environnement de travail aussi stimulant et agréable, en si bonne compagnie.

À tous les bons moments passés en votre compagnie ainsi qu'à nos discussions diverses, tant sérieuses que complètement ... décalées (dira-t-on !), merci à Jean-François le Galliard, Gérard Lacroix, Béatriz Decencière, Amandine Hansart, Simon Agostini, Alexis Millot, Stephane Paolillo, Damien Delanoë, Simon Chollet, Florent Massol, Sarah Fiorini, Francis Dohou, Corentin Souton, Alexis Cros ainsi que les autres membres de l'unité.

Je tiens à exprimer à nouveau ma gratitude plus particulièrement envers l'équipe de l'Ecotron. Merci pour votre aide sur ce projet. Merci d'avoir apporté chacun vos compétences pour la réalisation de ce projet. Cette opportunité a rendu ces années de recherche agréables et stimulantes à vivre. Je suis plus que ravi d'avoir pu partager avec vous mes plus grandes frustrations ainsi que mes plus grandes fiertés. Vos encouragements, vos compétences ainsi que vos esprits critiques n'ont fait qu'améliorer mes réflexions et ma perception du sujet tout au long du projet. J'espère sincèrement que l'achèvement de ma thèse ne fait qu'ouvrir la porte à d'autres opportunités de recherches futures en votre compagnie ! A Simon Chollet, merci pour ton aide sur les développements informatiques et ton savoir inégalable en électronique. A Florent Massol, merci pour ton aide sur la mise en place des expériences et tes conseils toujours avisés. À Sarah Fiorini, merci pour ta bonne humeur et ton soutien infaillible au cours de ces années. À vous trois, merci pour tous ces moments d'amitié et de franches rigolades.

Parce que ce doctorat parachève à la fois mon parcours d'étudiant mais aussi mon développement

personnel, il m'est impossible de ne pas remercier toutes les personnes qui m'ont soutenu jusqu'ici. Je suis reconnaissant envers toutes les personnes qui ont contribué à ce parcours. Merci à tous les professeurs qui ont transmis leur passion pour leur matière ainsi que leur soutien (du lycée Etienne-Oehmichen, des classes préparatoires de Clémenceau, et de l'EOST). J'estime avoir eu la chance d'avoir connu des années d'études heureuses et stimulantes, m'ayant permis d'arriver jusqu'ici. Merci à tous mes camarades de promos d'avoir rendu ces années mémorables.

Merci à Gabriel, au plaisir de te retrouver sur des congrès et en dehors.

Merci à Benoît, au plaisir de rejouer à World Of Warcraft avec toi à l'occasion.

Merci à Corentin, Romane, Bertrand, au plaisir de se refaire des soirées jeux de société.

Merci à Nicolas, au plaisir de continuer nos sessions raclettes / bières belges (je lève mon poêlon de raclette à l'opportunité de travailler avec toi sur un projet commun).

Je souhaite aussi remercier mes amis d'enfance pour leur présence depuis toutes ces années. Merci à vous de réussir à faire en sorte que nos retrouvailles, bien que trop rares, se déroulent comme si nous nous étions quittés la veille. Merci à Babas, Lilian, Kévin, Jordan, Yannick, Paul, Youness, Antoine, Rémi, Baptiste et Quentin.

Enfin, je tiens intimement à remercier en dernier lieu ma famille, mes parents et mon frère sans qui tout cela n'aurait jamais été possible. Merci à mon père, ma mère et mon frère pour leur soutien indéfectible et inconditionnel. Merci à vous trois d'avoir participé à mon épanouissement, au développement de ma curiosité et à mon bonheur depuis toujours. Je vous en serai à jamais reconnaissant. J'espère que ce manuscrit saura vous rendre aussi fier que je le suis de vous.

*À toi, Seb', source d'inspiration et de motivation,
mon meilleur ami, parti trop tôt.*

« En vrai c'est trop classe, je pourrai dire que j'ai un ami Docteur ! » - S.S. (2017)

Sommaire

1. Introduction aux contextes et aux enjeux des flux de gaz à l'interface sol-atmosphère	17
1.1. Importance de l'interface sol-atmosphère pour les émissions de gaz.....	22
1.1.1. Flux de gaz en contextes anthropiques.....	22
1.1.2. Flux de gaz en contextes naturels	26
1.1.3. Rôle du sol dans les émissions de gaz à l'atmosphère	30
1.1.4. Objectif de la thèse	34
1.2. Étude des flux de gaz à l'échelle mésoscopique en laboratoire	35
1.2.1. Expériences de transport de gaz en colonne : état de l'art.....	41
1.2.2. Mesures de flux de gaz par chambre d'accumulation : état de l'art.....	43
1.3. Mécanismes de migration et modélisation des flux de gaz	48
1.3.1. Mécanismes de transport du gaz émis du sol vers l'atmosphère.....	48
1.3.2. Utilisation des codes de transport réactif dans la modélisation des flux de gaz...	53
1.4. Conclusion.....	56
2. Développement d'un dispositif expérimental innovant pour le suivi à long-terme et haute-résolution des flux de gaz.....	57
2.1. Nécessité d'un dispositif innovant et cahier des charges	57
2.2. Développement technique du dispositif	59
2.1.1. Choix de la colonne	60
2.1.2. Garantie de l'étanchéité des colonnes	62
2.1.3. Injection de traceur à faible gradient de pression : Débit constant ou pression constante	68
2.1.4. Mesure des flux de gaz traceurs à la surface	71
2.1.5. Suivi de l'humidité du milieu poreux dans la colonne	80
2.2. Contrôle des conditions expérimentales	82
2.2.1. Utilisation de l'ECOLAB pour une régulation fine des conditions environnementales	82
2.2.2. Choix du milieu poreux et détermination de ses caractéristiques	88
2.2.3. Protocole de mise en place du système expérimental.....	91
2.2.4. Contrôle de la quantité d'eau dans le système	93
2.2.5. Ajout des plantes au système.....	96
2.3. Suivi des expériences	97

2.3.1.	Systèmes d'acquisition	97
2.3.2.	Traitement des données	103
2.3.3.	Calcul des flux de gaz à partir des mesures de concentrations avec la chambre d'accumulation	104
2.4.	Conclusion	109
3.	Processus physiques, chimiques et biologiques contrôlant les flux de gaz dans les colonnes de sol	111
3.1.	Introduction	111
3.2.	Influence biologique sur les flux de gaz révélée par un suivi à haute résolution de colonnes de sol en conditions non saturées	111
3.2.1.	Résumé de l'article	111
3.2.2.	Biologically-influenced gas fluxes revealed by high-resolution monitoring of unsaturated soil columns (article)	113
3.3.	Discussions complémentaires	126
3.3.1.	Importance de l'utilisation d'au moins deux colonnes	126
3.3.2.	Importance de la teneur en eau	127
3.3.3.	Facteur commun aux deux colonnes : les variations de pression barométrique	128
3.3.4.	Optimisation de la mesure de flux	128
3.3.5.	Importance de la modélisation	130
3.4.	Autres résultats expérimentaux acquis durant thèse	131
3.4.1.	Étude préliminaire d'une percolation de gaz durant un cycle gel-dégel d'une colonne de sol non-saturé en eau	131
3.4.2.	Étude préliminaire d'une percolation de gaz à travers deux colonnes de sol non-saturé en eau avec le spectromètre de masse (ESCAPE v2)	137
3.5.	Conclusion	144
4.	Modélisation de la migration d'un gaz à travers une colonne de sol non-saturé	146
4.1.	Comparaison au premier ordre du flux mesuré à la surface de la colonne avec le flux imposé à la base	146
4.1.1.	Description du calcul de bilan de masse	146
4.1.2.	Application aux expériences	147
4.2.	Modélisation 1D en utilisant les variations des conditions des colonnes	149
4.3.	Modélisation 2D à symétrie cylindrique en utilisant des codes de transport réactif	156
4.3.1.	Présentation de la méthode	157
4.3.2.	Établissement du profil de saturation en eau dans une colonne de sol non-saturé avec double perméabilité	158
4.3.3.	Modélisation d'une percolation de SF ₆ à travers une colonne de sol non-saturée en eau à double-perméabilité	159

4.3.4.	Étude de la sensibilité du flux de SF ₆ à différents paramètres	161
4.4.	Conclusion.....	162
5.	Conclusion générale et perspectives	164
5.1.	Flux de gaz émis du sol vers l'atmosphère : des mécanismes de contrôle couplés	164
5.2.	La création d'un « Géotron » : les développements techniques moteurs de ce projet 165	
5.3.	Contrôles physiques, chimiques et biologiques des sols sur les flux de gaz	166
5.4.	Modélisation des expériences en Géotron	167
5.5.	Perspectives.....	168
5.5.1.	Aide à la détection et à la surveillance de sites	168
5.5.2.	Mise en place de nouvelles expériences ou de nouveaux développements	170
5.5.3.	Développement d'un modèle robuste	172
	Référence :.....	175
	ANNEXE 1	183

Liste des figures

Figure I-1 : Schématisation des grands réservoirs de la planète Terre et de leurs interactions. Ces interactions sont permanentes via des échanges de matières ou d'énergie (doubles flèches). L'interface dont il sera question au cours de ce travail est l'interface sol-atmosphère, à la croisée de l'atmosphère, de la biosphère et de la géosphère et représentée graphiquement par le marqueur rouge. Ce système de représentation ne permet pas de figurer une petite composante de l'hydrosphère présente dans les sols..... 17

Figure I-2 : Représentation des principaux éléments constitutifs d'un sol, à l'interface entre atmosphère, géosphère, biosphère et hydrosphère. Schéma de gauche : représentation à l'échelle centimétrique à décimétrique : sous-sol composé de roches inaltérées, sol issu de l'altération des roches par des réactions biogéochimiques, la présence de végétation et de l'atmosphère. Schéma de droite : représentation à l'échelle millimétrique à micrométrique montrant le caractère multiphasique des sols avec des solides (minéraux, matière organique), des liquides (majoritairement de l'eau, solution du sol, mais possiblement des phases non aqueuses immiscibles) et du gaz. 18

Figure I-3 : Différents contextes pour lesquels la compréhension des flux de gaz à l'interface sol-atmosphère est un enjeu important. Certains contextes sont d'origines anthropiques (essai nucléaire souterrain, séquestration du CO₂, contaminations du sol ou du sous-sol), d'autres sont naturels (respiration des écosystèmes terrestres, émissions de radon, activité volcanique, fonte du permafrost...)..... 20

Figure I-4 : Émission de gaz radioactif (¹³³Xe) et transport atmosphérique après un essai nucléaire souterrain fictif qui aurait été réalisé à 200 m de profondeur au Nevada National Security Site avec une énergie de 5 kt, d'après Carrigan et al. (2019). a) Simulation numérique (code NUFT) de la concentration en ¹³³Xe en fonction du temps dans la porosité du sol en contact avec l'atmosphère après migration des gaz depuis la cavité nucléaire. Les moteurs de la migration sont le gradient thermique (courbe en tirets noirs) sur lequel s'ajoute le pompage barométrique (courbe verte). Le rejet est tardif et diffus : il est effectif pendant 10 à 100 jours et concerne une surface au sol constituant un disque de 500 m de diamètre. b) Simulation numérique (code FLEXPART couplé au code NUFT) de la quantité de ¹³³Xe émise à l'atmosphère et transportée à partir de la zone d'émission. Une quantité d'environ 10¹⁰ Bq a été émise, soit une fraction de 0,1 ppm (10⁻⁷) du terme source total généré dans la cavité nucléaire pour ce type d'essai nucléaire. Malgré cette très faible émission, le panache reste détectable à des distances supérieures à 1000 km, avec des activités volumiques en ¹³³Xe de l'ordre de 1 mBq.m⁻³..... 23

Figure I-5 : Représentation des différentes réponses d'un système à des variations environnementales pouvant influencer un flux de gaz émis à la surface. Trois contextes différents d'un même milieu poreux sont représentés en trois zones : (A) le milieu homogène simple, (B) le milieu avec la présence de plantes, (C) le milieu avec la présence de fractures. Chaque zone aura des réponses différentes aux différentes variations physiques, chimiques et biologiques en fonction de leurs caractéristiques. Cette différence de réponses, propres aux différentes régions, fait qu'il est difficile d'intégrer dans l'espace et dans le temps des mesures de flux de gaz effectuées à la surface en fonction de la taille du terrain étudiée. 32

Figure I-6 : Exemple de mesures effectuées avec une chambre d'accumulation « closed-dynamic ». La concentration de CO₂ (ronds bleus) est mesurée lorsque la chambre est fermée et augmente transitoirement. Une approximation (courbe rose) de cette accumulation transitoire permet de calculer un flux de CO₂. Entre deux périodes de mesures, la cloche est ouverte, ce qui lui permet de se rincer. Dans cet exemple adapté d'une figure du manuel LI-COR, deux fréquences d'acquisition sont représentées sur le graphique. Sur la mesure de gauche, la fréquence est plus faible que sur la mesure de droite (nombre de ronds bleus). Cette différence peut influencer la précision de l'approximation utilisée (écart entre la courbe rose et les ronds bleus). 45

Figure I-7 : Deux chambres d'accumulation « closed-dynamic » déployées sur le terrain pour effectuer des mesures de flux de CO₂. La chambre de gauche est transparente, permettant de mesurer le flux net de CO₂ (respiration + photosynthèse) en laissant passer les radiations du soleil. La chambre de droite est opaque, empêchant la photosynthèse lors de la mesure. Chaque chambre est reliée à un analyseur de CO₂ qui fonctionne par absorption infrarouge. 46

Figure I-8 : Schéma de l'advection dispersion entre un milieu poreux fracturé et l'atmosphère. Dans le cas général, les flux de gaz vont du compartiment à la pression la plus élevée vers le compartiment à la pression la plus faible. Les grosses flèches rouges représentent les flux ascendants lorsque la pression du sol (P_{sol}) est supérieure à la pression atmosphérique (P_{atm}). Dans le cas contraire, les grosses flèches vertes représentent les flux descendants. Sur cette figure est aussi représenté le pompage barométrique dans le temps. Les écarts de phases entre les variations de pressions de l'atmosphère et celles de la pression du sol engendrent des variations de sens du flux. Lorsque la pression est plus élevée dans l'atmosphère, le gaz passe dans le sol par les fractures par advection et se disperse dans la matrice et inversement. Les petites flèches rouges représentent le flux de gaz de la matrice poreuse vers les fractures, les petites flèches vertes les flux de gaz des fractures vers la matrice poreuse. 49

Figure II-1 : Schéma de la première version du dispositif expérimental ESCAPe v1 développé au cours du projet de thèse. Ce dispositif comprend un système d'injection contrôlé de gaz traceur à la base d'une colonne de sol non-saturé en eau possédant un couvert végétal. Une mesure de flux est effectuée à la surface via une chambre d'accumulation et deux analyseurs (LI-COR et Innova1412i). 60

Figure II-2 : Vue éclatée de la colonne utilisée couramment à l'Ecotron. Chaque section de tube en PEHD fait 36 cm de haut pour 36,5 cm de diamètre interne et est équipée de brides de serrage en PEHD. Chaque section possède latéralement 12 trous de dimension 12 mm pour permettre l'insertion de capteurs. Les sections peuvent être fixées entre elles de façon étanche grâce à des joints plats en EPDM serrés dans des brides par 12 boulons. 61

Figure II-3 : Coupe transversale d'un écrou à double-bague Swagelok® garantissant une étanchéité importante à l'eau et au gaz. Lors du serrage de l'écrou, la bague avant est sertie sur le tube et forme un joint primaire. La bague arrière, qui pousse sur la bague avant, garantie l'étanchéité sur le tube. D'après le catalogue Swagelok®. 63

Figure II-4 : Coupe transversale de la paroi d'une colonne au niveau d'une insertion de capteur. Ce montage est nécessaire pour faire passer la gaine électrique du capteur à travers

la paroi de la colonne de manière étanche. Les différents éléments garantissant l'étanchéité y sont représentés..... 64

Figure II-5 : Exemple d'un test d'étanchéité réalisé sur les premières colonnes (identiques au modèle de la Figure II-2) équipées des raccords Swagelok®, d'un analyseur Innova1412i mesurant les concentrations de SF₆, CO₂ et CH₄ ainsi que d'un capteur de pression absolu. Les figures A et B présentent le test d'étanchéité réalisé respectivement sur la concentration des différents traceurs et la pression. De 0 à 10 minutes la colonne est à son état initial. Après 10 minutes et jusque 420 minutes, du SF₆ à 10 000 ppm dans du N₂ est injecté dans la colonne. Pendant cette période la concentration en SF₆ augmente jusqu'à être constante à 10 000ppm, inversement pour le CO₂ et le CH₄ qui tendent vers 0 ppm (A). La pression, quant à elle, augmente et se stabilise instantanément, mettant la colonne en légère surpression de 10 mbar par rapport à l'atmosphère (B). Après 420 minutes, l'injection est coupée pour que l'analyseur mesure l'évolution des différents paramètres avec le temps. Une légère décroissance est visible sur la courbe de SF₆ au cours du temps (A). La pression retombe à la valeur atmosphérique après 20 minutes d'analyse (B). Ces observations indiquent la présence d'une fuite. Ici la fuite était due à l'analyseur qui avait des joints détériorés au niveau de sa pompe d'échantillonnage..... 66

Figure II-6 : Mise en évidence de fuite (cercle rouge) grâce au liquide de détection de fuite. La photo a été prise au cours des premiers tests d'étanchéité sur les mêmes colonnes que sur la Figure II-2..... 67

Figure II-7 : Mise en place du support délimitant l'unité d'injection et le reste de la colonne. Sur la photo A se trouve le caillebotis sur un support PVC en place dans la colonne. Sur la photo B figure le caillebotis et le support PVC usiné pour permettre une homogénéisation du gaz dans le volume d'injection. Sur la photo C se trouve l'ensemble formé par le géotextile et les grilles en silicone une fois en place, garantissant la séparation entre unité d'injection et le sol venant peser au-dessus..... 68

Figure II-8 : Explication de la boucle de régulation de la pression d'injection en fonction du débit grâce au dispositif PID. Cette régulation s'effectue en trois étapes. 70

Figure II-9 : Mise en place d'une chambre d'accumulation sur une colonne de sol. Chaque chambre d'accumulation est connectée à un multiplexeur permettant d'alterner les mesures entre l'une et l'autre colonne. Le tube reliant le multiplexeur à l'analyseur infrarouge (IRGA), mesurant le flux de CO₂, est équipé d'un raccord en « T ». Ce raccord permet d'effectuer en simultanée des mesures de concentration de SF₆ avec le spectromètre photoacoustique Innova1412i..... 73

Figure II-10 : Usinage du support de chambre d'accumulation : support avant (A) et après usinage (B). L'usinage permet un meilleur éclairage de la surface de la colonne en réduisant la surface couverte par le support et ainsi permettre un développement végétal plus important..... 75

Figure II-11 : Schéma du dispositif expérimental ESCAPe v2 développé au cours du projet de thèse. Ce dispositif permet la percolation, la mesure de flux ainsi que de profils de concentration de nombreux traceurs gazeux tels que les gaz rares, l'O₂, les NO_x et les SO_x en plus des traceurs utilisés dans le dispositif ESCAPe v1. Ceci est possible grâce au spectromètre de masse à faible débit connecté à la colonne à 4 profondeurs différentes en

plus de la chambre d'accumulation via une vanne multivoies. Cette nouvelle version permet aussi un bilan complet de la masse d'eau grâce à deux balances, une pour la masse totale, l'autre pour l'eau de drainage..... 77

Figure II-12 : Adaptation des passe-cloisons pour tube 6 mm Swagelok® afin d'y insérer des capillaires gaz 1/16 de pouce connectés au spectromètre de masse. Les capillaires sont figés de manière étanche dans les passe-cloisons grâce à un assemblage de silicone et de résine Epoxy durcissant. 79

Figure II-13 : Mise en place de l'embout d'échantillonnage de gaz pendant le remplissage/la compaction d'une colonne de sable non-saturée en eau. L'embout est constitué de 3 capillaires Membrana, d'un raccord Swagelok® 1/8 de pouce serti sur le capillaire inox 1/16 de pouce connecté à la vanne multivoies. Le raccord est équipé d'un manchon souple protégeant le point de fixation étanche des 3 capillaires Membrana..... 80

Figure II-14 : Dispositif expérimental (ESCAPE v1 pour l'exemple) doté d'un système de siphon satisfaisant trois objectifs : (i) permettre le drainage de la colonne sans que l'unité d'injection ne se remplisse, (ii) réguler la pression d'injection en imposant une hauteur d'eau, (iii) réaliser un bilan de masse complet et précis de l'eau dans le système grâce à une balance de précision. 82

Figure II-15 : Schéma conceptuel d'un ECOLAB constitué d'une thermo-frigo-pompe (1) permettant la régulation de la température atmosphérique des modules (2) et (3). Le module (2) est constitué d'un laboratoire de supervision (a) et d'une cellule climatique (b,d,e). Le module (3) est constitué de deux cellules climatiques (b,d,e). Chaque cellule climatique est accompagnée d'un module de régulation de la composition et de la distribution de l'air (c). D'après Verdier et al. (2014)..... 83

Figure II-16 : Dispositif de percolation de gaz à travers une colonne de sable pendant un cycle de gel et dégel. La colonne est équipée d'un tube enroulé tout autour d'elle. Ce tube, rempli de liquide calorifique, permet d'imposer une température au sol différente de celle de l'atmosphère. Ici la température du sol a été imposée de -5 à +25°C alors que l'atmosphère était régulée de +5 à +25°C..... 85

Figure II-17 : Caractéristiques physico-chimiques du sable de Fontainebleau utilisé dans le cadre de mes expériences (d'après la fiche technique fournie par Sibelco). 89

Figure II-18 : (A) Mise en place d'une colonne de sol dans la cellule climatique à l'aide d'un chariot élévateur. (B) Installation terminée des deux colonnes de sol dans la cellule climatique en présence des bouteilles de gaz utilisées pour les injections et les calibrations. 93

Figure II-19 : Vue du dispositif d'arrosage automatique de la surface des colonnes grâce à la mise en place d'un tube équipé de 6 goutte-à-goutte disposé en spirale à la surface de la colonne, à l'extérieur comme à l'intérieur de la collerette de la chambre d'accumulation. 95

Figure II-20 : Différence de densité des pousses des plantes entre l'intérieur et l'extérieur de la collerette. Cette différence est due principalement à la présence du support initial de la chambre d'accumulation. Afin d'homogénéiser le couvert végétal entre l'intérieur et l'extérieur de la collerette dans les futures expériences nous avons ajouré les supports de chambre d'accumulation (cf. Figure II-10). 97

<i>Figure II-21 : Gestion de l'acquisition des différents instruments en fonction de l'horloge de référence utilisée. Les capteurs BaroDiver et le LI-COR (analyseur IRGA + chambre d'accumulation) sont lancés à t_0 grâce à une fonction de départ différé. L'acquisition via le Pyrocontrol est lancée manuellement en avance d'un pas de temps Δt (5 minutes). L'acquisition des analyseurs Innoval412i est lancée manuellement lorsque la première mesure d'accumulation est initiée par le LI-COR à t_0.</i>	100
<i>Figure II-22 : Structure matérielle de la nouvelle chaîne de contrôle-commande, d'acquisition et de sauvegarde du dispositif expérimental v2.</i>	101
<i>Figure II-23 : Étude comparative des flux de CO_2 calculés par le système LI-COR et par la méthode générale développée sous Matlab et appliquée aux concentrations de CO_2 mesurées par l'analyseur Innoval412i. La période d'essais de 12 jours a utilisé le dispositif expérimental ESCAPe_v1 présenté dans la Figure II-2 en présence de plantes. Les flux négatifs de CO_2 correspondent aux périodes de jour et de photosynthèse. Les flux positifs de CO_2 correspondent aux périodes de nuit et de respiration.</i>	107
<i>Figure III-1 : Dispositif utilisé pour l'injection de gaz à la base d'une colonne de sable non saturée en eau lors d'un cycle gel-dégel. Un couvert végétal sénescents est présent à la surface de la colonne. Des tuyaux dans lesquels circulent du fluide calorifique sont enroulés autour de la colonne. La température dans les tuyaux était réglée à $-10^\circ C$ pour les 10 premiers centimètres et $-5^\circ C$ pour les 30 derniers centimètres.</i>	132
<i>Figure III-2 : Variations du débit de gaz injecté à la base de la colonne et de la température du sol mesurée à 5cm de profondeur lors d'un cycle gel-dégel. La sonde utilisée n'a pas permis d'enregistrer les températures négatives qui ont été fixées à $-2^\circ C$ ici. Le débit a atteint sa capacité maximale durant la période 4.</i>	134
<i>Figure III-3 : Variations du débit en fonction de la pression d'injection imposée par le régulateur. La pression consigne était imposée à +20mbar sur toute la période. Le débit a atteint sa capacité maximale durant la période 4, ne pouvant plus garantir la pression d'injection imposée initialement durant cette période.</i>	134
<i>Figure III-4 : Évolution des flux de CO_2 et de SF_6 durant le cycle de gel et de dégel. Les flux injectés sont calculés à partir des conditions expérimentales représentées dans les Figures III-2 et III-3.</i>	135
<i>Figure III-5 : (a) Évolution du débit d'injection du mélange de gaz Xe-SF_6 au cours du temps à la base de 2 colonnes de sable non saturé en eau et sans plantes. (b) Évolution des pressions d'injection au cours du temps à la base de 2 colonnes de sable non saturé en eau et sans plantes.</i>	139
<i>Figure III-6 : Cycles de mesures de concentration en SF_6 au cours du temps (heures) pour les deux colonnes (A et B) dans la chambre d'accumulation et à différentes profondeurs (5, 16, 28, 45 cm) par le spectromètre de masse. Entre chaque cycle de mesures de chaque colonne est réalisée une analyse de l'atmosphère extérieure ainsi que l'analyse d'une bouteille de gaz N_2 à 100% destinée à garantir l'absence d'effet mémoire d'une voie sur l'autre.</i>	140

<i>Figure III-7 : Évolution des concentrations en O₂, CO₂, Xe et SF₆ aux différents niveaux de la colonne A. Les traits en pointillés noirs représentent la concentration du traceur dans le mélange injecté à la base de la colonne. Chaque point sur ce graphique représente une valeur moyennée de 10 mesures réalisées par niveau.</i>	<i>141</i>
<i>Figure III-8 : Évolution des concentrations en O₂, CO₂, Xe et SF₆ aux différents niveaux de la colonne B. Les traits en pointillés noirs représentent la concentration du traceur dans le mélange injecté à la base de la colonne. Chaque point sur ce graphique représente une valeur moyennée de 10 mesures réalisées par niveau.</i>	<i>142</i>
<i>Figure III-9 : Évolution du flux de CO₂, SF₆ et Xe au cours du temps pour (a) la colonne A et (b) la colonne B.</i>	<i>143</i>
<i>Figure IV-1 : Représentation des deux zones à la surface de la colonne : en vert, la surface utilisée pour la mesure du flux de SF₆ à l'intérieur de la collerette ; en rouge, la surface sans mesure de flux. Une différence de densité du couvert végétal est notable avec plus de plantes à l'intérieur de la collerette.</i>	<i>149</i>
<i>Figure IV-2 : Géométrie utilisée pour le modèle 1D. La colonne est découpée en 3 mailles entre le sommet de la frange capillaire et l'atmosphère. Dans chaque maille sont calculées une valeur de la perméabilité relative au gaz (k_{rg}, dépendante de la saturation en eau moyenne dans la maille, $S(t)$) ainsi qu'une concentration en SF₆ (C_{SF6}). Chaque maille comporte une sonde de teneur en eau. En rose sont représentées les conditions aux limites.</i>	<i>150</i>
<i>Figure IV-3 : Profils de concentrations en SF₆ calculés en fonction du temps dans 3 mailles, à 5, 15 et 25 cm de profondeur dans la colonne, dans le cas de l'expérience décrite dans le Chapitre 3 et objet de l'article Alibert et al. (2020).</i>	<i>153</i>
<i>Figure IV-4 : Comparaison des différents flux de SF₆, mesurés et modélisés, dans le cas de l'expérience objet de l'article Alibert et al. (2020) décrite dans le Chapitre 3. En rouge, le flux injecté calculé à partir de l'équation (4.2). En bleu, le modèle en régime permanent en prenant l'équation (4.9) dans le Cas 1. En cyan, le modèle utilisant l'équation (4.11) dans le Cas 2. En vert, le flux mesuré. En insert, un agrandissement permet de mieux visualiser les améliorations apportées par le modèle 1D (courbes en cyan et en bleu) par rapport à la courbe en rouge.</i>	<i>153</i>
<i>Figure IV-5 : Profil de teneur en eau modélisé dans la colonne de sable avec le code NUFT. En vert dans les fractures, en bleu dans la matrice et en rouge la mesure expérimentale.</i>	<i>159</i>
<i>Figure IV-6 : Comparaison des flux de SF₆ sortant par les fractures (vert), par la matrice (bleu) avec le flux imposé en injection (rouge). Modélisation réalisée pour une colonne de sable avec le code NUFT.</i>	<i>161</i>

Liste des tableaux

<i>Tableau I-1 : Principales caractéristiques des contextes pour lesquels la compréhension des flux de gaz à l'interface sol-atmosphère est un enjeu important (en violet les contextes d'origines anthropiques et en vert ceux d'origines naturelles).....</i>	<i>21</i>
<i>Tableau I-2 : Sensibilité aux variations environnementales des différentes zones (A ,B et C) présentées dans la figure I-5.....</i>	<i>33</i>
<i>Tableau I-3 : Principales caractéristiques de différentes expériences en colonne étudiant le transport de gaz dans les milieux poreux</i>	<i>36</i>
<i>Tableau II-1 : Paramètres utilisés pour la détermination des flux de gaz. Comparaison de la méthode utilisée par le système LI-COR pour le CO₂ avec la méthode générale que j'ai développée pour le CO₂ et le SF₆.....</i>	<i>108</i>
<i>Tableau III-1 : Résumé des conditions expérimentales et des mesures durant le cycle de gel et de dégel.).....</i>	<i>133</i>
<i>Tableau III-2 : Mélange de gaz injecté à la base des deux colonnes A et B. Dans la deuxième colonne se trouve la composition indiquée par le fournisseur. Dans la troisième colonne se trouve la composition indiquée par le spectromètre de masse.</i>	<i>138</i>
<i>Tableau IV-1 : Valeur de la saturation en eau résiduelle (S_{wr}) imposée au modèle pour l'obtention du meilleur calcul de flux de SF₆ à la surface de la colonne.....</i>	<i>154</i>
<i>Tableau IV-2 : Paramètres hydrodynamiques (perméabilité intrinsèque k e coefficients de Van Genuchten a et m) utilisés pour décrire le milieu poreux à double perméabilité, composé d'une matrice et de fractures.....</i>	<i>159</i>
<i>Tableau IV-3 : Masses de SF₆ (kg) dans une colonne de sol non saturé en eau dans les différents compartiments (Fracture, Matrice) et dans les différentes phases (gaz, eau) et comparaison avec les flux injectés et sortants.</i>	<i>161</i>

1. Introduction aux contextes et aux enjeux des flux de gaz à l'interface sol-atmosphère

Une façon pratique de caractériser la planète Terre et son fonctionnement est de la décrire par ses grands systèmes ou réservoirs que sont l'atmosphère (l'air), l'hydrosphère (l'eau), la biosphère (le vivant) et la géosphère (le minéral). Chacun de ces réservoirs possède des caractéristiques physiques, chimiques et biologiques qui leurs sont propres. Bien que ces réservoirs soient bien définis, ils n'en restent pas moins dynamiques dans l'espace et le temps et tous interagissent entre eux en permanence (Figure I-1). En plus des transferts d'énergie, le transport et la transformation de matière au sein de ces réservoirs, mais aussi entre eux, sont un exemple d'interactions dynamiques. Tout cela se traduit notamment dans les grands cycles biogéochimiques, comme ceux de l'eau ou du carbone (Rotmans et den Elzen, 1999). Leur compréhension est une nécessité qui s'est intensifiée ces dernières décennies du fait des changements globaux amorcés et leurs relations étroites avec les êtres humains et leurs activités. Le sol, compartiment physiquement rattaché à la géosphère, constitue une interface particulièrement riche de ces interactions et comporte des composants de la biosphère (plantes, microorganismes, etc.), de l'hydrosphère (eau du sol) et de l'atmosphère (gaz du sol).

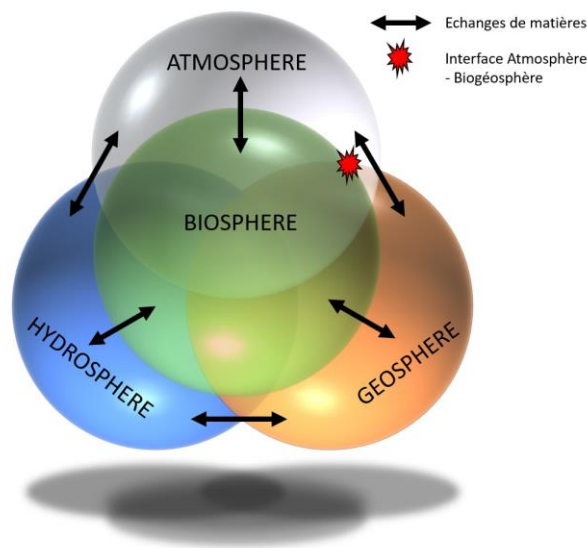


Figure I-1 : Schématisation des grands réservoirs de la planète Terre et de leurs interactions. Ces interactions sont permanentes via des échanges de matières ou d'énergie (doubles flèches). L'interface dont il sera question au cours de ce travail est l'interface sol-atmosphère, à la croisée de l'atmosphère, de la biosphère et de la géosphère et représentée graphiquement par le marqueur rouge. Ce système de représentation ne permet pas de figurer une petite composante de l'hydrosphère présente dans les sols.

Les interfaces régissent les échanges entre les réservoirs. Dans le cadre de ce projet de thèse, je me suis intéressé uniquement à l'interface entre le sol et l'atmosphère (Figure I-2) :

- L'atmosphère s'étend sur une hauteur d'environ 800 kilomètres et constitue l'enveloppe gazeuse en contact avec la surface de la Terre (sol et océans). Bien qu'essentiellement constituée de gaz, on y trouve aussi du liquide (en particulier la pluie) et des particules solides (glace, poussières ou aérosols). La Troposphère, d'une épaisseur de 7 à 16 km en contact avec le sol, est la couche de l'atmosphère qui nous intéresse plus particulièrement ici.

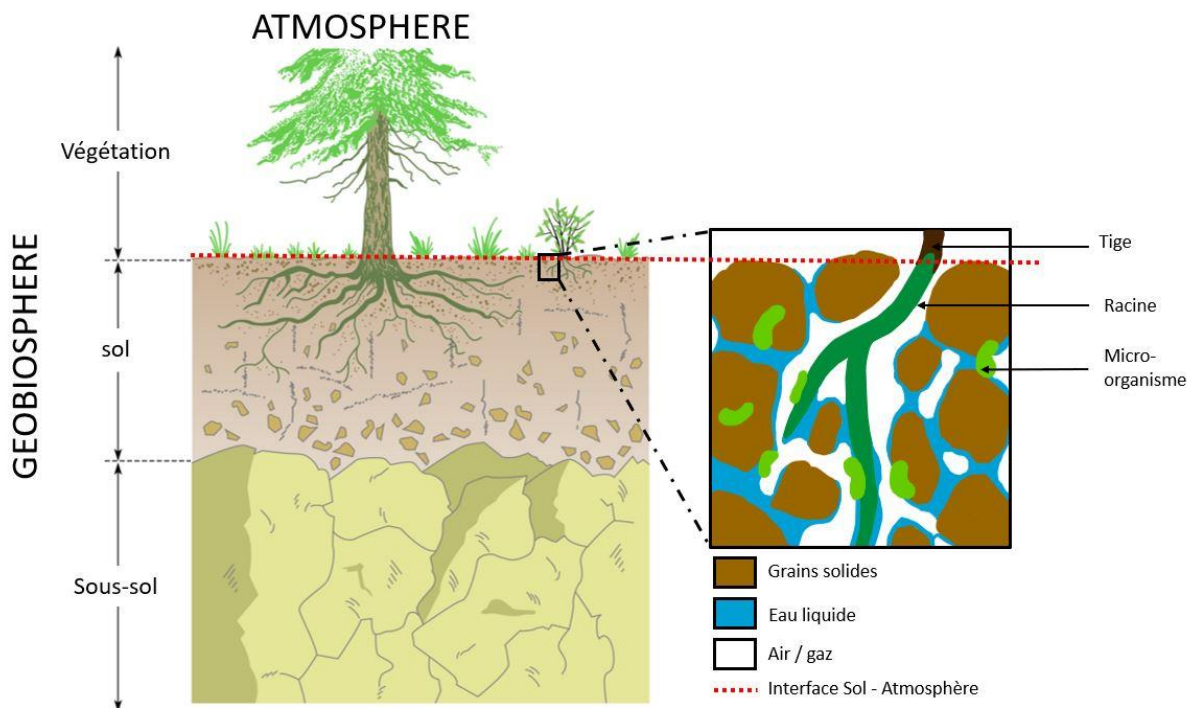


Figure I-2 : Représentation des principaux éléments constitutifs d'un sol, à l'interface entre atmosphère, géosphère, biosphère et hydrosphère. Schéma de gauche : représentation à l'échelle centimétrique à décimétrique : sous-sol composé de roches inaltérées, sol issu de l'altération des roches par des réactions biogéochimiques, la présence de végétation et de l'atmosphère. Schéma de droite : représentation à l'échelle millimétrique à micrométrique montrant le caractère multiphasique des sols avec des solides (minéraux, matière organique), des liquides (majoritairement de l'eau, solution du sol, mais possiblement des phases non aqueuses immiscibles) et du gaz.

- Les sols résultent de la transformation des roches de la croûte terrestre au voisinage de la surface sous l'action de processus physiques, chimiques et biologiques. D'une épaisseur pouvant être nulle jusqu'à atteindre plusieurs mètres, ce compartiment de la géosphère inclut non seulement des minéraux et de la matière organique mais également un biome, les êtres vivants associés au sol tels que les plantes, les champignons, les algues et autres micro-organismes (bactéries, virus), jusqu'aux prions (Charlet *et al.*, 2008). Les sols comportent

également de l'eau, sous forme liquide ou vapeur et d'autres gaz, d'origines biotiques (respiration, fermentation) ou abiotiques, produits in-situ ou transportés depuis des réservoirs adjacents (gaz magmatiques ou gaz atmosphériques par exemple).

Des échanges, sous la forme des trois états de la matière, sont possibles entre le sol et l'atmosphère. Je traiterai ici seulement des échanges gazeux. De nombreux éléments et composés chimiques gazeux sont transportés entre le sol et l'atmosphère, dans les deux sens. Ces échanges sont appelés émissions vers l'atmosphère, assimilations vers le sol. Seules les émissions de gaz du sol vers l'atmosphère seront considérées dans ce travail. On quantifie l'émission d'une quantité d'un gaz donné, rapportée à une surface de sol et à une période de temps, par le flux de cette espèce gazeuse. Comme cela sera détaillé plus loin, ces flux peuvent avoir une origine naturelle (par exemple les émissions de CO₂ dues à l'activité volcanique) ou une origine anthropique (flux de xénon-133 à la surface issue d'un essai nucléaire souterrain). Certains flux d'origine naturelle peuvent être influencés par l'activité humaine. C'est notamment le cas de l'augmentation des émissions de méthane du permafrost vers l'atmosphère engendrée par le changement climatique.

Sous son apparente simplicité, cette réduction drastique du problème cache en fait une grande diversité de contextes dont la présentation permet de discuter les multiples enjeux ainsi que les processus-clefs qui ont été étudiés dans ce travail (Figure I-3 et Tableau I-1). Anthropiques ou naturels, ces contextes regroupent des échelles de temps et d'espace très variées. Pour chacun de ces contextes, les enjeux essentiels de la compréhension des flux de gaz à l'interface sol-atmosphère sont présentés ci-après et récapitulés dans le Tableau I-1.

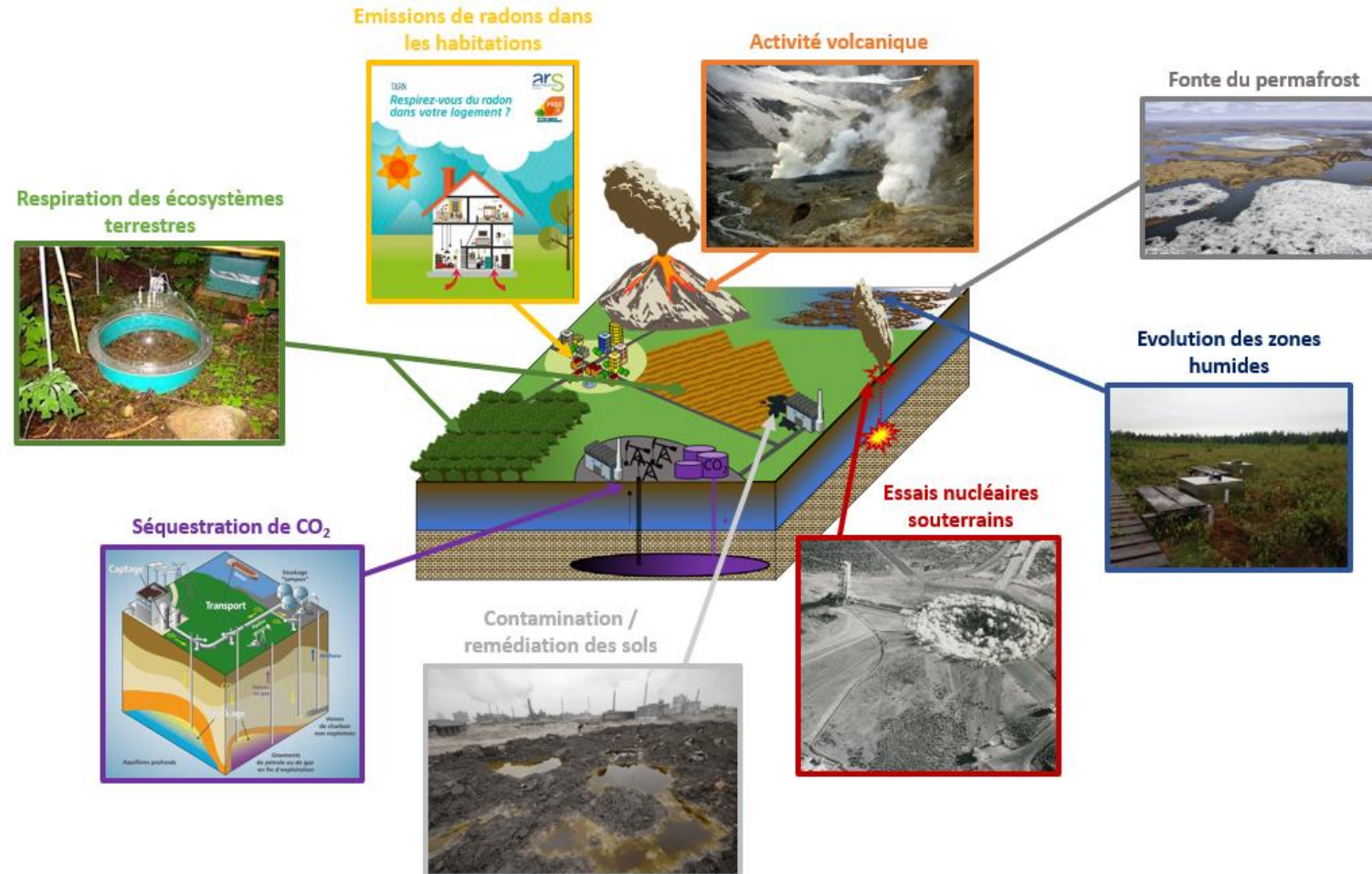


Figure I-3 : Différents contextes pour lesquels la compréhension des flux de gaz à l'interface sol-atmosphère est un enjeu important. Certains contextes sont d'origines anthropiques (essai nucléaire souterrain, séquestration du CO₂, contaminations du sol ou du sous-sol), d'autres sont naturels (respiration des écosystèmes terrestres, émissions de radon, activité volcanique, fonte du permafrost...).

Tableau I-1 : Principales caractéristiques des contextes pour lesquels la compréhension des flux de gaz à l'interface sol-atmosphère est un enjeu important (en violet les contextes d'origines anthropiques et en vert ceux d'origines naturelles)

Contexte	Gaz d'intérêt	Géométrie de la source (Profondeur, Étendue)	Moteurs principaux de transport	Échelle d'espace	Échelle de temps
Essais nucléaires souterrains	Radioxénon ^{131m}Xe , ^{133}Xe , ^{133m}Xe , ^{135}Xe	Plusieurs centaines de mètres, Ponctuelle	Advection, Diffusion	Plusieurs centaines de m ²	De l'explosion à plusieurs semaines après
Séquestration de CO ₂	CO ₂ Traceurs inertes	Plusieurs centaines de mètres, Ponctuelle	Advection, Diffusion	Plusieurs km ²	De la centaine au millier d'années
Contamination / remédiations des sols	COV	Dizaine de mètres, Diffuse	Diffusion	Plusieurs km ²	Jusqu'à plusieurs décennies
Respiration des écosystèmes terrestre	CO ₂ , H ₂ O, CH ₄ , N ₂ O, COV	Quelques mètres, Diffuse	Diffusion	Du m ² à l'échelle globale	Du cycle diurne à plusieurs années
Fonte du permafrost	CO ₂ , H ₂ O, CH ₄ , N ₂ O, COV	Quelques mètres, Diffuse	Diffusion	Du m ² à l'échelle globale	Du cycle saisonnier à plusieurs années
Activité volcanique	CO ₂ , SO ₂	Plusieurs kilomètres, Ponctuelle à diffuse	Advection, Diffusion	Plusieurs km ²	Plusieurs décennies
Évolution des zones humides	CO ₂ , CH ₄	Quelques mètres, Diffuse	Diffusion	Du m ² à l'échelle globale	Du cycle diurne à plusieurs années
Émissions de radon	Radon 222	Quelques mètres, Diffuse	Diffusion	m ²	Plusieurs années

1.1. Importance de l'interface sol-atmosphère pour les émissions de gaz

1.1.1. Flux de gaz en contextes anthropiques

1.1.1.1. Détection des essais nucléaires souterrains clandestins

Dans le cadre du Traité d'interdiction complète des essais nucléaires (TICE), un régime de vérification basé sur un réseau de surveillance mondial, appelé International Monitoring System (IMS), et un régime d'inspection sur site (On-Site Inspection, OSI) ont été établis. L'Organisation du traité d'interdiction complète des essais nucléaires (OTICE) opère à l'échelle du globe le réseau des stations de l'IMS, qui permet de détecter les essais nucléaires quel que soit le milieu où ils seraient réalisés. Ce réseau utilise plusieurs technologies complémentaires : les infrasons, les ondes hydroacoustiques, les ondes sismiques et les radionucléides (aérosols ou gaz). Ce sont les gaz radioactifs qui nous ont intéressés tout particulièrement dans ce travail.

En effet, quatre isotopes radioactifs du xénon (^{131m}Xe , ^{133}Xe , ^{133m}Xe et ^{135}Xe , appelés radioxénon) font notamment partie des produits de fission générés par un essai nucléaire. Dans certaines conditions liées aux caractéristiques géologiques du site (perméabilité, porosité, fracturation, teneur en eau...) comme à celle de l'essai nucléaire réalisé (profondeur, énergie), une fraction de ces gaz peut être émise à l'atmosphère sur des échelles de temps pouvant aller de quelques minutes à quelques mois (Carrigan *et al.*, 2019 ; Jordan *et al.*, 2015 ; Sun et Carrigan, 2016). Quand ils sont détectés dans l'atmosphère par les stations de l'IMS, ces isotopes du xénon et en particulier leurs proportions (ou rapports isotopiques) peuvent renseigner sur l'occurrence d'un essai nucléaire souterrain (Kalinowski *et al.*, 2010). Pour cela, la modélisation du transport atmosphérique est utilisée pour établir des rétro-trajectoires depuis les stations de mesures vers les possibles sources d'émission de ce radioxénon (voir notamment Ringbom *et al.*, 2014). Ces techniques de détection et d'inversion sont toutefois rendues difficiles par la présence de radioxénon dans l'atmosphère due à d'autres activités nucléaires (centrales nucléaires, usines de production d'isotopes médicaux) comme cela a été quantifié à l'échelle du globe (Achim *et al.*, 2016). Pour améliorer les performances de ces modélisations, il devient nécessaire de mieux connaître à quel moment l'émission de radioxénon se produit après un essai nucléaire ainsi que la dynamique du rejet (continu ou pulsé). Il faut donc mieux comprendre quels sont les processus physiques, chimiques et biologiques qui pourraient exercer un contrôle sur les émissions de radioxénon à l'atmosphère. Parce que les processus de génération de gaz dans la cavité nucléaire et de migration de radioxénon dans les milieux géologiques profonds ont déjà fait l'objet d'une recherche active (Carrigan *et al.*, 1996, 2019, 2020a, 2020b ; Guillon, 2013 ; Guillon *et*

al., 2013 ; *Jordan et al.*, 2015 ; *Mourzenko et al.*, 2014 ; *Sun et Carrigan*, 2016.; *Stroujkova et al.*, 2020), nous nous sommes concentrés sur les processus qui pourraient avoir le plus d'influence à l'interface sol-atmosphère. En effet, la modélisation du transport atmosphérique jouant un rôle important dans la détection des essais nucléaires souterrains par leurs éventuelles émissions de gaz, il est important de bien comprendre le couplage qui peut s'opérer entre le milieu géologique et l'atmosphère. En particulier, comme résumé dans la Figure I-4, les travaux de *Carrigan et al.* (2019) ont montré que le couplage géosphère-atmosphère permettrait une détection avec les moyens existants même pour de faibles émissions de gaz après un essai nucléaire. Une simulation numérique a ainsi montré que le processus important lors de la détection à une station du réseau de surveillance était l'intégration sur un temps long des flux de gaz, certes faibles, mais qui seraient émis sur une grande surface au sol après leur migration depuis une cavité nucléaire souterraine. Ainsi, une meilleure compréhension des variations temporelles et/ou spatiales des flux de gaz à l'interface sol-atmosphère pourraient améliorer la détectabilité des essais nucléaires souterrains. Il est donc important de bien comprendre quels sont les processus qui pourraient en être la cause, afin de les prendre en compte dans les modèles et dans les interprétations lors d'études de cas réels.

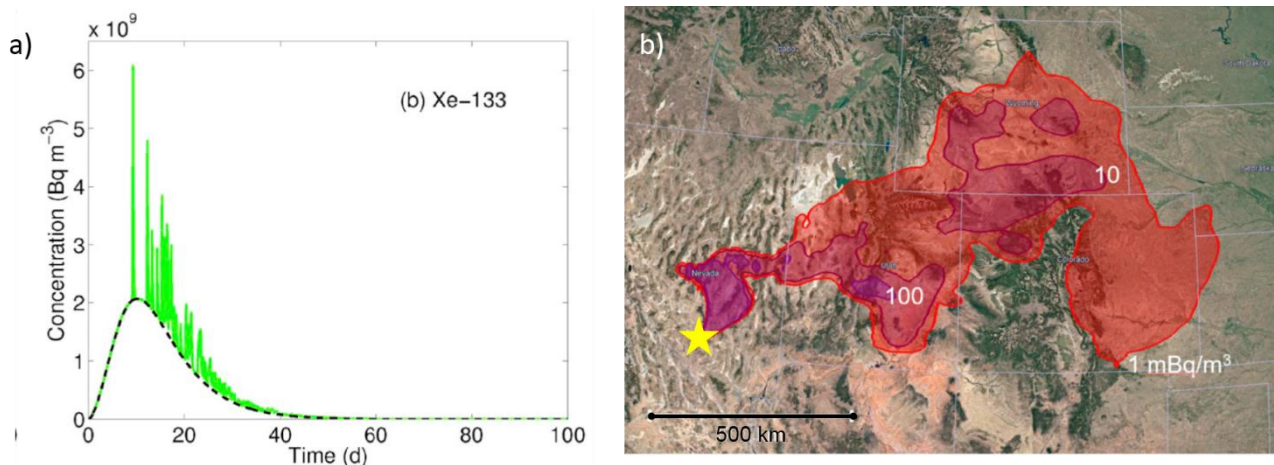


Figure I-4 : Émission de gaz radioactif (^{133}Xe) et transport atmosphérique après un essai nucléaire souterrain fictif qui aurait été réalisé à 200 m de profondeur au Nevada National Security Site avec une énergie de 5 kt, d'après *Carrigan et al.* (2019). a) Simulation numérique (code NUFT) de la concentration en ^{133}Xe en fonction du temps dans la porosité du sol en contact avec l'atmosphère après migration des gaz depuis la cavité nucléaire. Les moteurs de la migration sont le gradient thermique (courbe en tirets noirs) sur lequel s'ajoute le pompage barométrique (courbe verte). Le rejet est tardif et diffus : il est effectif pendant 10 à 100 jours et concerne une surface au sol constituant un disque de 500 m de diamètre. b) Simulation numérique (code FLEXPART couplé au code NUFT) de la quantité de ^{133}Xe émise à l'atmosphère et transportée à partir de la zone d'émission. Une quantité d'environ 10^{10} Bq a été émise, soit une fraction de 0,1 ppm (10^{-7}) du terme source total généré dans la cavité nucléaire pour ce type d'essai nucléaire. Malgré cette très faible émission, le panache reste détectable à des distances supérieures à 1000 km, avec des activités volumiques en ^{133}Xe de l'ordre de 1 mBq.m^{-3} .

1.1.1.2. Surveillance des sites de séquestration de CO₂

Le CO₂ émis dans l'atmosphère provient essentiellement de l'exploitation de carbone fossile (pétrole, gaz, charbon) (Marland *et al.*, 2003 ; Lin *et al.*, 2020). Pour lutter contre le changement climatique, des industriels cherchent à développer des procédés permettant la capture du CO₂ en sortie d'usine pour le stocker dans des réservoirs géologiques profonds (gisements d'hydrocarbure en fin d'exploitation, aquifères salins profonds ou encore des veines de charbon non-exploitées) (IPCC, 2005, Risk *et al.*, 2015).

Dans le cas d'une fuite, le CO₂ quitterait le réservoir pour passer à travers les différentes couches de roche (sous-sol) avant d'atteindre le sol puis l'atmosphère. De nombreuses simulations numériques montrent qu'une séquestration de CO₂ peut être garantie sans émissions à l'atmosphère sur des centaines d'années voire une dizaine de milliers d'années (Oldenburg et Unger, 2003 ; Metz *et al.*, 2005 ; Hepple *et al.*, 2005 ; Alcade *et al.*, 2018). Pour compléter cette approche, des sites expérimentaux et des sites pilotes ont permis de reproduire diverses situations. Sur certains sites, après une caractérisation fine du milieu, une source de CO₂ est générée en profondeur et les flux de CO₂ et autres gaz émis à l'interface sol-atmosphère ont fait l'objet d'une surveillance. Parmi les études les plus complètes, on trouve : (i) le site ZERT (Zero Emission Research Technology, Bozeman, Montana, États-Unis) où une fuite de CO₂ a été simulée expérimentalement grâce à un tube enterré à faible profondeur (Spangler *et al.*, 2009, 2010), (ii) le site de Weyburn-Midale (Saskatchewan, Canada) relié aux plus grandes activités de capture et de stockage de CO₂ (Romanak *et al.*, 2014), (iii) les flancs du volcan Etna qui dégaze abondamment du CO₂ et est utilisé comme proxy d'un réservoir de stockage de CO₂ fuyant jusqu'à la surface (Giammanco *et al.*, 1998), iv) le site de Saint Émilion (Gironde), où diverses injections de gaz traceurs, CO₂, CH₄ ou gaz rares, ont illustré les difficultés d'un suivi en surface et différents contrôles exercés par la zone non saturée sur les flux de gaz (Cohen *et al.*, 2013 ; Rhino *et al.*, 2018).

L'ensemble de ces études a permis de décrire de nombreux mécanismes d'origine physique, chimique ou biologique qui contrôlent les flux de gaz à l'interface sol-atmosphère, par-delà les moteurs classiques qui contrôlent le transport des gaz : advection selon le gradient de pression et diffusion selon le gradient de concentration.

La présence d'eau dans les pores des zones non-saturées peuvent avoir de multiples conséquences sur les flux de CO₂ en surface telles que : l'atténuation partielle de la fuite par dissolution du CO₂ dans l'eau jusqu'à la précipitation de carbonates, les variations de perméabilité relative au gaz dues aux infiltrations d'eau, ou encore des modifications de gradient de pression via le pompage barométrique (Oldenburg et Unger, 2003, 2004). La présence de plantes et de micro-organismes dans les sols est

aussi une contrainte à prendre en compte dans la détection d'une fuite de CO₂. Par la respiration de l'écosystème dans le sous-sol au-dessus d'un réservoir de CO₂, une production de CO₂ naturelle est générée et induit un flux de CO₂ du sol vers l'atmosphère. Or ce signal naturel se retrouve mélangé avec le CO₂ fuyant d'un réservoir de stockage, ce qui peut rendre la détection compliquée s'il n'est pas possible de distinguer les deux signaux. À ce titre, l'étude de Romanak *et al.* (2014) montre l'importance de mesurer le flux de CO₂ à la surface ainsi que sa signature isotopique. La signature isotopique du CO₂ stocké étant différente de celle produite par le vivant, il est alors possible de déterminer l'amplitude de chacun des deux signaux dans le cas de fuite de CO₂ de forte intensité, car la teneur en CO₂ biogénique des sols peut atteindre 30,000 ppm.

Le CO₂ injecté dans les réservoirs est parfois mélangé à un traceur inerte (Xe, SF₆, ...). Ce traceur interagira peu avec l'environnement comparativement au CO₂, permettant sa détection en premier en cas de fuite (Ju *et al.*, 2020). Le but de ce mélange est de maximiser les chances de détecter une fuite avant que le CO₂ stocké ne se propage de trop, garantissant une meilleure prise de décision. Pour cela des mesures de flux à la surface sont faites régulièrement afin de détecter le traceur s'il venait à migrer. Avant de pouvoir appliquer cette méthode à chaque site d'intérêts, les zones volcaniques ont souvent servi de modèle afin de la tester et l'améliorer (Romanak *et al.*, 2014).

Il apparaît donc important, dans le cadre de la séquestration du CO₂, de prendre en compte tous les processus physiques, chimiques et biologiques ayant lieu dans le sol pour avoir une meilleure compréhension de la signification des mesures de flux effectuées à la surface. Ceci nécessite le développement de modélisations appropriées contraintes par des données de terrain précises, données qui ne sont pas simples à acquérir. Outre ces mesures de flux permettant de mieux comprendre les flux de CO₂ dans le sous-sol et le sol, il y a également un enjeu sur la mesure du CO₂ à différentes échelles temporelles et spatiales pour détecter les fuites en cas d'incident et vérifier la pérennité des sites sur plusieurs centaines voire milliers d'années.

Comme les modèles de transport numérique sont utilisés pour choisir et dimensionner les futures zones de stockages de CO₂ et définir les stratégies de surveillance, il semble crucial de disposer de modèles bien contraints par des mesures pertinentes de flux de gaz à l'interface sol-atmosphère et capables de simuler tous les processus pouvant opérer un contrôle des flux de gaz.

1.1.2. Flux de gaz en contextes naturels

1.1.2.1. Caractérisation et compréhension des écosystèmes terrestres

La Terre est recouverte à 20% de sa superficie par un couvert végétal (écosystèmes terrestres), soit 102 millions de km² avec la répartition suivante : terres agricoles 50%, zones forestières 37%, prairies 11%, zones urbaines 1% (Ritchie et Roser, 2019). De manière générale les écosystèmes terrestres sont à l'origine de flux de gaz importants à l'interface entre le sol et l'atmosphère principalement liés à leur activité biologique (Xu et Shang, 2016). Les principaux flux sont : (i) des flux d'O₂, (ii) des flux de CO₂ et (iii) des flux de vapeur d'eau. Ces flux sont directement liés aux organismes vivants dans le sol (champignons, bactéries, etc.) et au couvert végétal. La production primaire brute associée à la photosynthèse va non seulement consommer du CO₂ et produire de l'O₂ mais aussi émettre de la vapeur d'eau dans l'atmosphère par transpiration, ajoutée à l'évaporation physique de l'eau contenue dans le sol (Fischer et al., 1996). La respiration aérobie consomme de l'O₂ et produit du CO₂. Elle provient principalement des végétaux, et des micro-organismes présents dans les sols. Certaines conditions impliquent que certains micro-organismes en condition anaérobies produisent du CH₄.

Dans le cadre particulier de l'agriculture, les écosystèmes terrestres sont modifiés par l'Homme pour favoriser la croissance de plantes spécifiques. Ces modifications peuvent perturber les flux de gaz émis dans ces zones au cours du temps, suite à différents procédés : la déforestation / reforestation, l'aération des sols consécutive à un labour, l'humidification des sols (irrigation), l'apport de matières organiques ou d'engrais azotés (favorisant des émissions de N₂O).

Les trois premiers mètres du sol représentent un réservoir d'environ 2,500 GtC organique pouvant générer des émissions importantes de CO₂ ou de CH₄ vers l'atmosphère. Dans ce contexte, les mesures de flux de gaz sont effectuées pour améliorer la compréhension des cycles du carbone et de l'azote, les deux étant liés (Davies-Barnard et al., 2020). Les enjeux sont multiples. D'une part, ces flux de gaz d'origine naturelle sont à prendre en compte lors de recherches de fuites dans des contextes anthropiques, comme nous l'avons vu précédemment avec la séquestration du CO₂. D'autre part, une meilleure compréhension des flux de gaz intervenant dans les cycles du carbone et de l'azote au niveau des écosystèmes terrestres permet d'optimiser une agriculture raisonnée sans appauvrissement des sols (Chenu et al., 2014). Dans le cadre du changement climatique global, cette meilleure compréhension des cycles du carbone et de l'azote permettrait de limiter fortement les émissions des gaz à effet de serre tels que le CO₂, le CH₄, le N₂O en contexte agricole (Chenu et al., 2014 ; Davies-Barnard et al., 2020).

Les échanges entre le sol et l'atmosphère sont également suivis pour la quantification et la caractérisation des composés organiques volatiles (COV). Les écosystèmes terrestres sont à l'origine de 90% des composés organiques volatiles émis dans l'atmosphère tels que les isoprenoïdes (Niinemets *et al.*, 2011) ou encore les terpenoïdes dans les régions arctiques (Ghirardo *et al.*, 2020). Les COV, qu'ils soient d'origine naturelle ou industrielle, sont des éléments importants à étudier à l'échelle globale car ils peuvent provoquer des événements de pollutions atmosphériques en influençant la capacité oxydative de l'atmosphère ou en formant des particules en suspensions (Staudt *et al.*, 2004).

La difficulté de la compréhension des flux de CO₂ réside dans la variété et la complexité des sols où se trouvent à la fois des composantes physiques, chimiques et biologiques pouvant simultanément produire, consommer, dissoudre et échanger des espèces gazeuses.

Les mesures de flux de gaz sur le terrain sont importantes pour comprendre les quantités de gaz qui sont échangées à l'interface sol-atmosphère dans les différentes régions du globe (forêt tropicales ou tempérées, zones humides, permafrost, sols agricoles, prairie, etc.). Ajoutées à des mesures de conditions atmosphériques ou de concentrations, il s'avère que les flux de gaz à l'interface sol-atmosphère varient grandement entre chacune de ces régions une fois les données extrapolées, que ce soit spatialement (Peylin *et al.*, 2005 ; Parazoo *et al.*, 2016 ; El Yazidi, 2018) et/ou temporellement (Machado *et al.*, 2016). De plus, ces variations sont influencées par les différences de conditions environnementales. Une meilleure précision des mesures et une meilleure compréhension de la dynamique des flux de gaz à l'interface sol-atmosphère constituent un enjeu important car ces mesures, souvent ponctuelles, sont extrapolées dans le temps et dans l'espace (Chen *et al.*, 2020 ; Han *et al.*, 2020).

1.1.2.2. Surveillance des zones émettrices de gaz à effet de serre

1.1.2.2.1. Anticipation de la fonte du permafrost

Le permafrost (ou pergélisol) occupe une surface de 18 millions de km² (soit 20% des zones terrestres) se trouvant dans les régions arctiques polaires et subpolaires. La particularité de ce type de sol est qu'il est partiellement ou entièrement gelé. Bien que cette région ne corresponde qu'au cinquième des terres émergées, elle constitue un réservoir de carbone organique très important d'environ 1,035 ± 150 GtC dans les 3 premiers mètres du sol, représentant presque 50 % de la teneur globale en carbone organique pour la même profondeur (Schuur *et al.*, 2015). Comme ce sol est gelé, le flux de

C de la surface vers l'atmosphère (CO₂ ou CH₄) est réduit pour deux raisons : (i) Le sol gelé est très peu perméable, la présence d'eau gelée empêchant les gaz d'être émis, (ii) le C organique est minéralisé plus lentement dans le permafrost car le froid ralentit l'activité des micro-organismes du sol.

Cependant, dans le cadre du changement climatique global, il s'avère que ces régions sont fortement touchées avec des augmentations de température pouvant être deux fois plus importantes que les autres régions (Turetsky *et al.*, 2020 ; Ghirardo *et al.*, 2020). La conséquence directe est l'accélération du dégel de ces régions et l'augmentation des émissions de gaz à effet de serre dans l'atmosphère. En période de dégels, les sols deviendront plus perméables ; les gaz seront transportés plus rapidement et en plus grande quantité. L'augmentation de température augmentera le métabolisme des micro-organismes présents dans les sols de ces régions. Cette stimulation de l'activité des micro-organismes produira plus de gaz issus de la respiration (CO₂ et CH₄) qui sont aussi des gaz à effet de serre. Les prédictions estiment qu'une masse de près de 610 GtC (soit 59% du carbone stocké) sera émise du permafrost vers l'atmosphère avant 2100 (Schuur *et al.*, 2015).

Les modèles d'évolution du permafrost au 21^e siècle sont en réalité assez incertains. Ils résultent de simulations numériques effectuées à grande échelle réalisées à partir de modèles calibrés à l'aide de mesures de flux effectuées sur le terrain. Les mesures réalisées sur le terrain présentent de nombreuses limites mal prises en compte dans les modèles prédictifs, telles que : (i) les différences de biomes et de sols entre les différentes régions où se trouve le permafrost (Zhang *et al.*, 2020), (ii) la faible couverture tant spatiale que temporelle des mesures de flux de gaz à la surface du permafrost qui rend incertaines les extrapolations réalisées à partir de ces mesures (Masyagina et Menyailo, 2020). De plus, il est difficile de déterminer si les augmentations de flux sont dues à l'augmentation de la température, à la stimulation de l'activité microbienne (Schuur *et al.*, 2015 ; Adamczyk *et al.*, 2019) ou à des variations de teneur en eau dans les sols en raison de la fonte de la glace (Masyagina et Menyailo, 2020). Afin d'améliorer les modèles, et ainsi garantir une meilleure prédiction de l'évolution des émissions de CO₂ et CH₄ du permafrost, il est donc nécessaire de mieux mesurer les flux de gaz et en particulier leur dynamique temporelle, en comprenant mieux chacun des processus physiques, chimiques et biologiques en jeu.

1.1.2.2.2. Surveillance de l'activité volcanique

Les volcans sont des chemins préférentiels d'émission de gaz stockés en profondeur (plusieurs kilomètres) vers l'atmosphère tels que le CO₂ et le SO₂ (Fischer *et al.* 2019). Il existe deux mécanismes différents par lesquels un volcan émet des gaz dans l'atmosphère : (i) les fumeroles qui se comportent comme des conduits canalisant des flux forts et ponctuels de gaz, (ii) un dégazage plus diffus via des flux de plus faible intensité par les flancs du volcan. Les différences de surface et d'intensité de flux entre les flancs et les conduits font que les deux processus (i) et (ii) sont du même ordre de grandeur en termes d'émission de gaz dans l'atmosphère (Allard *et al.*, 1991).

Les flux de CO₂ constituent deux enjeux dans le cadre de la surveillance de l'activité volcanique : (i) les volcans représentent 183 MtC par an émis vers l'atmosphère sous forme de CO₂, (ii) les flux de gaz sont des marqueurs d'activités volcaniques (Camarda *et al.*, 2017). Les flux de CO₂ sont modulés par l'activité volcanique et seront d'intensités différentes selon que le volcan est actif ou quiescent. Comme il a été montré par Boudoire *et al.* (2017), il existerait une corrélation entre la chute des émissions de CO₂ sur les flancs du volcan du Piton de la Fournaise et son entrée en éruption.

La plupart des observations se font sur le terrain via des mesures de flux (Chiodini *et al.*, 1998) ou de concentrations (Boudoire *et al.*, 2017 ; Aiuppa *et al.*, 2019). Les sites volcaniques sont en moyenne peu mesurés car ils sont souvent difficiles d'accès et les mesures sont réalisées avec une faible couverture spatiale et temporelle (Camarda *et al.*, 2017), ce qui rend les extrapolations de flux de gaz des volcans vers l'atmosphère parfois approximatives (Aiuppa *et al.*, 2019). De plus, les flux de CO₂ à l'interface entre le sol et l'atmosphère sur les flancs des volcans possèdent une forte variabilité spatio-temporelle car de nombreux processus peuvent les influencer : (i) le changement des conditions météorologiques (pression, pluie, température atmosphérique) (Boudoire *et al.*, 2017), (ii) les caractéristiques pétrophysiques du sol et du sous-sol (Camarda *et al.*, 2017), (iii) l'activité du volcan (Boudoire *et al.*, 2017 ; Giammanco *et al.*, 1998). Une meilleure compréhension de ce que représente une mesure de flux de gaz à la surface d'un volcan permettrait une meilleure surveillance et une estimation des flux de gaz associés à ces systèmes.

1.1.2.2.3. Surveillance des zones humides

Les zones humides sont des régions terrestres où le sol est partiellement à complètement saturé en eau au cours de l'année (certaines définitions englobent même les lacs) (Tootchi *et al.*, 2019). Les tourbières constituent un cas typique de zone humide. De manière générale, les zones humides sont

des zones d'échanges importants de gaz que ce soit via l'évapotranspiration ou les émissions de gaz à effet de serre (CO₂, CH₄, N₂O) générés dans les zones humides (Tootchi *et al.*, 2019).

Le changement climatique couplé à l'activité humaine perturbe les zones humides et de fait les émissions de gaz qui leurs sont associées. En effet, 20% des tourbières ont été drainées pour des raisons agricoles, ce qui a favorisé l'activité métabolique aérobie et conduit à la minéralisation d'une partie importante des grandes quantités de matière organique contenue dans ces zones provoquant des émissions significatives de gaz à effet de serre (CO₂, N₂O) (Hu *et al.*, 2017). Par ailleurs, pendant les périodes de crues et de fortes précipitations, le sol devient anaérobie ce qui favorise la production et l'émission de méthane (Arneeth *et al.*, 2010). Ces processus sont notamment suivis sur le terrain via des mesures ponctuelles de concentrations in-situ ou de flux à la surface des sols.

La compréhension de la dynamique temporelle de ces zones en fonction des conditions climatiques est donc un enjeu essentiel afin d'améliorer les simulations d'évolution de concentrations de gaz à effet de serre dans l'atmosphère.

1.1.3. Rôle du sol dans les émissions de gaz à l'atmosphère

À travers tous les exemples énoncés précédemment (Tableau I-1), il apparaît que les flux de gaz à l'interface sol-atmosphère constituent des enjeux importants. Ces gaz concernés peuvent l'être en quantités très variables. Ils peuvent être générés dans les sols superficiels (par exemple les émissions de CO₂ issues de la respiration des sols ou de CH₄ issues de la fonte du permafrost) ou plus profondément dans le sous-sol (gaz issus d'essais nucléaires souterrains ou de la séquestration du CO₂). Dans tous les cas, ils traversent au moins en partie le sol non saturé en eau avant d'être émis dans l'atmosphère. Comme présenté dans les contextes ci-dessus, les flux de gaz à l'interface sol-atmosphère sont difficilement mesurables et interprétables.

Les flux de gaz sont dépendants à la fois de la source du gaz ainsi que de leur moteur de migration. Ces deux caractéristiques, qui ont à la fois des dimensions spatiales et temporelles, varient selon les contextes d'étude. La taille caractéristique de l'objet d'étude peut être (Figure I-3 et Tableau I-1) : l'échelle métrique (Zhang *et al.*, 2020) à hectométrique d'un sol contaminé aux COV ou d'un essai nucléaire souterrain (Carrigan *et al.*, 2020) ; l'échelle kilométrique du volcanisme, des réservoirs de stockages de CO₂ (Romanak *et al.*, 2014), des parcelles agricoles ou forestières, jusqu'à l'échelle globale (émissions de gaz à effet de serre (Chen *et al.*, 2020), fonte du permafrost (Schuur *et al.*, 2015), cycle du carbone et de l'azote (Davies-Barnard *et al.*, 2020), évapotranspiration et effets sur le climat). Les échelles de temps auxquelles il est pertinent d'étudier les flux de gaz sont également

très diverses : de la journée (cycle respiration/photosynthèse (Han *et al.*, 2020), évapotranspiration, événements météorologiques (Marchado *et al.*, 2016)), jusqu'à plusieurs dizaines voire centaines d'années (fonte du permafrost (Schuur *et al.*, 2015), fuite d'un stockage de CO₂, sols contaminés). Une autre notion de temporalité à prendre en compte dans une étude de flux de gaz se trouve dans le fait que les émissions de gaz peuvent être continues au cours du temps ou discontinues en suivant des cycles de différentes durées (pompage barométrique à l'échelle journalière (Mourzenko *et al.*, 2014), activités magmatiques à l'échelle mensuelle (Boudoire *et al.*, 2017), gel et dégel à l'échelle saisonnière (Zhang *et al.*, 2020)).

Les moteurs de ces flux peuvent être diffusifs ou advectifs. Le transport diffusif intervient lorsqu'il y a un gradient de concentration entre deux zones pour un élément chimique donné. Le transport advectif intervient lorsqu'il y a un gradient de pression entre deux zones (Tableau I-1). Cependant selon les conditions, il peut arriver qu'un flux de gaz passe de diffusif à advectif et inversement. Pour cela, nous pouvons citer deux exemples : (i) les variations de teneur en eau dans les zones non-saturées peuvent changer la pression de la phase gaz dans les sols en augmentant ou réduisant le volume poral disponible pour le gaz, (ii) les variations rapides et d'amplitudes significatives de la pression barométrique créent des gradients de pression entre le sol et l'atmosphère avant qu'elle ne s'homogénéise, produisant ainsi le transport par pompage barométrique.

La diversité des facteurs caractérisant ou influençant les flux de gaz complique l'interprétation des mesures faites sur le terrain. La taille de la porosité et l'existence de chemins préférentiels, variables d'un sol à un autre, peuvent influencer la migration du gaz. Le degré de saturation en eau de la porosité du sol contrôle les chemins et les vitesses de migration. De plus, les conditions appliquées à la surface du sol sont variables dans le temps (pression barométrique, pluie, évaporation/évapotranspiration, température), tout comme l'activité des organismes du sol. En particulier, les processus physiques, chimiques et biologiques peuvent être directement responsables d'une émission de gaz (respiration, oxydation de matière organique, etc.) ou indirectement en modifiant le milieu poreux (perméabilité modifiée par les réseaux racinaires, changement de la répartition de l'eau, etc.). À cette dynamique viennent aussi s'ajouter les réactions biogéochimiques dépendantes des conditions du sol (teneur en eau, pH, aérobie/anaérobie, chimie des minéraux) amenant soit à : (i) émettre directement des gaz d'intérêt, (ii) émettre ou retenir indirectement des gaz d'intérêt en modifiant le milieu poreux par dissolution/précipitation par exemple. Tous ces processus possibles et leurs conséquences sont résumés dans la figure I-5 et le tableau I-2. Cette figure a pour but de montrer qu'une mesure ponctuelle est dépendante de la zone qui lui est associée et que d'une mesure à l'autre il est possible d'avoir des réponses en flux de gaz différentes en fonction du contexte. J'ai représenté 3 contextes

différents et simplifiés d'un milieu poreux non-saturé en eau : (A) homogène, (B) avec la présence de plantes, (C) avec la présence de fractures/chemins préférentiels. Selon la zone étudiée sur le terrain, ces trois contextes peuvent être présents et sont donc à prendre en compte lors de l'interprétation des mesures de flux de gaz.

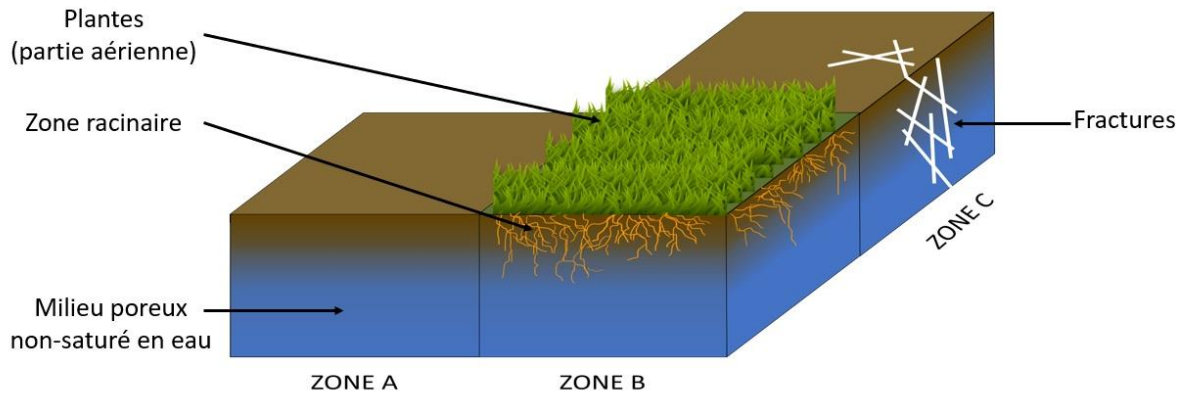


Figure I-5 : Représentation des différentes réponses d'un système à des variations environnementales pouvant influencer un flux de gaz émis à la surface. Trois contextes différents d'un même milieu poreux sont représentés en trois zones : (A) le milieu homogène simple, (B) le milieu avec la présence de plantes, (C) le milieu avec la présence de fractures. Chaque zone aura des réponses différentes aux différentes variations physiques, chimiques et biologiques en fonction de leurs caractéristiques. Cette différence de réponses, propres aux différentes régions, fait qu'il est difficile d'intégrer dans l'espace et dans le temps des mesures de flux de gaz effectuées à la surface en fonction de la taille du terrain étudiée.

Tableau I-2 : Sensibilité aux variations environnementales des différentes zones (A ,B et C) présentées dans la figure I-5.

<i>Variations environnementales</i>	<i>ZONE A Milieu homogène</i>	<i>ZONE B Présence de plantes</i>	<i>ZONE C Présence de fractures</i>
<i>Pression barométrique</i>	+	++ <i>Influence de la zone racinaire modifiant la perméabilité du milieu Possibilité de pompage barométrique</i>	+++ <i>Influence forte des fractures sur la perméabilité du milieu Pompage barométrique fort probable</i>
<i>Précipitation / évaporation</i>	+ <i>Modification de la porosité, perméabilité et tortuosité relative aux gaz</i>	+++ <i>Influence importante des plantes sur le drainage et l'évapotranspiration Impact des plantes sur les variations de teneurs en eau, de la porosité, perméabilité et tortuosité relative aux gaz</i>	+ <i>Modification de la porosité, perméabilité et tortuosité relative aux gaz</i>
<i>Dissolution</i>	+ <i>Dépendance du traceur et de la teneur en eau</i>	+ <i>Dépendance du traceur et de la teneur en eau</i>	+ <i>Dépendance du traceur et de la teneur en eau</i>
<i>Cycle de lumière</i>	+ <i>Variations de température liées aux rayonnements du soleil</i>	+++ <i>Partie aérienne : Cycle respiration / photosynthèse & évapotranspiration</i>	+ <i>Variations de température liées aux rayonnements du soleil</i>
<i>Biogéochimie organique</i>	+ <i>Dépendance des micro-organismes présents Influence des conditions aérobies ou anaérobies</i>	+++ <i>Respiration racinaire importante Dépendance des micro-organismes présents Influence des conditions aérobies ou anaérobies</i>	+ <i>Dépendance des micro-organismes présents Influence des conditions aérobies ou anaérobies</i>

1.1.4. Objectif de la thèse

La migration d'un gaz provenant d'une source en subsurface ou en surface sera soumise à des contrôles physiques, chimiques et biologiques dans les sols avant son émission à l'atmosphère. La compréhension de l'interface sol-atmosphère constitue un enjeu scientifique important. Du fait de la complexité du système, la pleine signification de mesures de flux en surface ne peut être comprise qu'en prenant en compte la diversité des processus opérant dans les sols. Il est nécessaire pour cela de disposer de mesures précises permettant de caractériser finement le sol et son fonctionnement. Pourtant, les modifications d'un flux de gaz lors de son passage à travers un sol ont été relativement peu étudiées. Mon projet de thèse a pour objectif de réduire cette lacune de connaissance.

Dans ce cadre, mon projet s'est attaché plus spécifiquement à répondre aux questions suivantes :

- Quels sont les mécanismes physiques, chimiques et biologiques pouvant contrôler les flux de gaz à l'interface sol - atmosphère ?
- Comment décorrélérer chacun des processus pour les identifier, les quantifier et les hiérarchiser ?
- Comment rendre compte des modulations de flux dans les codes de simulation numérique ?

Il s'agit du cœur de mon travail de thèse. Étant donné la complexité du milieu « sol » et la diversité des processus qui s'y déroulent pouvant modifier un flux de gaz, nous avons opté pour une approche résolument réductionniste et hautement contrôlée afin de se donner toutes les chances de pouvoir décorrélérer les différents processus jouant sur les flux de gaz dans le sol, permettant *in fine* de les hiérarchiser. De plus, une telle approche permet de disposer d'une caractérisation fine du sol, caractérisation indispensable à l'implémentation des processus identifiés dans les codes numériques. Pour ce faire, nous avons travaillé à l'aide d'expériences en colonne de sol à l'échelle métrique. Cette méso-échelle permet l'étude de mésocosmes terrestres, colonne de sol représentative des systèmes naturels à l'échelle du laboratoire.

1.2. Étude des flux de gaz à l'échelle mésoscopique en laboratoire

Lorsque les contraintes des mesures sur le terrain deviennent trop importantes pour permettre la compréhension d'un phénomène, il est souvent choisi de réduire l'échelle du système étudié, voire de le simplifier. Cette méthode réductionniste est utilisée pour diminuer la complexité des conditions trouvées sur le terrain afin de pouvoir identifier, décorréler et quantifier les différents processus mis en jeu et leurs interactions.

Les études en laboratoire présentent des avantages et des inconvénients liés à la taille des systèmes étudiés ainsi qu'aux différentes possibilités de conditions expérimentales. Dans le cadre de notre projet nous nous intéressons plus particulièrement à des expériences en colonnes de milieux poreux. Ce type de dispositif est utilisé depuis plusieurs siècles maintenant en hydrologie et géochimie. La plus vieille colonne aurait été utilisée en 1703 (Lewis et Sjöstrom, 2010), mais l'une des expériences en colonne la plus connue (bien qu'il s'agisse d'eau et non de gaz) est bien évidemment celle de Darcy en 1856 au cours de ses recherches sur les fontaines de Dijon (Darcy, 1856). À l'heure actuelle, il existe une grande variété d'expériences en colonnes visant à étudier une diversité de processus : théorie des transports de phase liquide/gaz (Alzaydi et al., 1993 ; Costanza-Robinson et Brusseau, 2002 ; Harrison et al., 2016), transport de contaminants et des COV dans la phase liquide/gaz (Fischer et al., 1996 ; Altevogt et al., 2003 ; Khan et al., 2016 ; Ghirardo et al., 2020), vérification de modèles de transports réactifs (Hibi et al., 2012 ; Hibi et Kashihara, 2018), d'adsorption, de dissolution (Plampin et al., 2014) et autres réactions. Pour cela, différentes stratégies de mesure peuvent être mises en place (méthode invasive, non invasive, directe, indirecte) et sont parfois comparées (Evans et al., 2001 ; Yang et al., 2018). Le tableau I-3 permet de présenter un panel de différentes expériences en colonnes étudiant le transport de gaz dans les milieux poreux.

Dans le cadre de mon travail de thèse, j'ai réalisé des expériences consistant à imposer un flux de gaz à la base d'une colonne de sol soumise à des conditions variables d'éclairement, de pression barométrique et d'infiltration en eau, afin de comprendre quels sont les processus qui peuvent être responsables des modulations des flux de gaz à l'atmosphère. Une mesure de flux est réalisée à la surface de chaque colonne. Cette partie détaille les choix techniques possibles pour mettre en place un tel dispositif expérimental (de la colonne à la mesure de flux). Grâce à cette revue bibliographique, j'ai pu développer un dispositif expérimental innovant décrit dans le Chapitre 2.

Tableau I-3 : Principales caractéristiques de différentes expériences en colonne étudiant le transport de gaz dans les milieux poreux

Sujet	Géométrie D (cm) H / L (cm)	Matériel de la colonne	Remplissage	Saturation en eau	Traceurs	Conditions d'injection	Température (°c)	Mesures	Auteurs
Remédiation des sols contaminés (effet densité et pression sur le transport de la phase gaz)	7,7 40	Inox	Sable sec Par couche et vibration	Biphasique (1%)	Freon-113	Advection Diffusion	25	GC*	Altevogt <i>et al.</i> , 2003
Vérification des équations de transports	6 90	Verre	Sable Ou Kaolinite	Monophasique	CO ₂ CH ₄	Advection Diffusion	25	Pression totale et partielle	Alzaydi <i>et al.</i> , 1973
Emission de gaz radiogénique pendant les déformations	3,8 8	Uréthane durcissant + Polyoléfine	Échantillon de granite	Monophasique	⁴ He ⁴⁰ Ar ²⁸ N ₂	Diffusion	N.A.***	SMQ** + Décteur de fuite d'Hélium	Bauer <i>et al.</i> , 2016
Détection de fuite de CO ₂	20 - 40 100 - 200	Perspex	Trucal 5	Biphasique	CO ₂	Advection Diffusion	15	Méthode acoustique	Caraman <i>et al.</i> , 2003
Migration des gaz en fonction des conditions de la colonne et de l'atmosphère	35 x 55 x 10	N.A.***	Sable	Biphasique	CH ₄	Diffusion	22 – 35	GC	Chamindu Deepagoda <i>et al.</i> , 2016

Tableau I-3 : (suite)

Advection dispersion gaz à différents teneurs en eau	7 N.A.***	Inox	Sable	Biphasique	CH ₄ DFM TCE	Advection Diffusion	N.A.***	Détecteur à ionisation de flamme	Costanza - Robinson et Brusseau , 2002
Observation des courbes de percée de différents gaz	8 280	PVC	Sable volcanique	Monophasique	He, H ₂ , O ₂ , N ₂ , CO, CH ₄ , CO ₂	Advection Diffusion	20	GC	Di Martino et al., 2016
Transport de gaz par analyse de gaz nobles	56 40	Polyéthylène	Sable sec	Biphasique (2%)	CO ₂ , Xe, Ne, Kr, ³⁶ Ar, ⁴⁰ Ar	Advection Diffusion	20	SMQ	Ding et al., 2016
Dégazages à faible pression	56 40	Polyéthylène	Sable sec	Monophasique	CO ₂	Advection Diffusion	20	IRGA***	Evans et al., 2001
Transport de COV à différents teneurs en eau	80 x 66 x 5	Inox Verre Teflon	Sable	Biphasique	COV	Diffusion	22	GC	Fischer et al., 1996
Piégeage de l'O ₂ dans la zone non-saturée en eau	7.6 50	PVC	Sable	Biphasique	Phase gaz	Advection Diffusion	N.A.	Conductivité électrique	Fry et al., 1997
Assimilation du ¹³ C dans les COV	18 x 18 x 10	Polyéthylène téréphtalate	Excavée	Biphasique	COV	Diffusion	5 – 15	SMQ	Ghirardo et al., 2020

Tableau I-3 : (suite)

Influence de la géométrie de la source sur la percolation de gaz	6 50	Plexiglass	Billes de verre	Monophasique	N ₂ , O ₂	Advection Diffusion	N.A.	Électrode à oxygène	<i>Gimmi et Flühler, 1996</i>
Émissions de gaz en fonction des cycles de gel et dégel	17 15 - 30	Plexiglass	Excavée	Biphasique	CO ₂ , N ₂ O, NO	Advection Diffusion	-13 - +5	IRGA INNOVA SM	Goldberg et al., 2008
Évolution du CO ₂ dans une colonne incubée	15 30	PVC	Excavée	Biphasique	CO ₂	Diffusion	30	IRGA	Guo et al., 2015
Émission de gaz à effet de serre dans la tourbière	7 30-40	PVC	Excavée	Biphasique	CO ₂ , CH ₄	Diffusion	20	GC	Hu et al., 2017
Interaction minéral-fluide-gaz en zone non-saturée	25 90	Acrylique	Sable	Biphasique	CO ₂	Advection Diffusion	21	Spectroscopie laser	Harrison et al., 2016
Validation des coefficients de Knudsen pour les modèles Dusty Gas Model	5 90	Acrylique	Billes de verre	Monophasique	CO ₂ , N ₂	Advection Diffusion	N.A.	GC	Hibi et al., 2012 Hibi et Kashihara, 2018
Migration des COV dans la zone non-saturée	4.6 35	Verre Chronoflex	Billes de verre	Biphasique	VOC	Diffusion	24	GC	Khan et al., 2016
Traçage d'un flux de CO ₂ avec gaz rares	3.8 7	N.A.	Sable	Monophasique	CO ₂ , He, Ne, Ar, Kr, Xe, SF ₆	Advection Diffusion	20	SMQ	Kilgallon et al., 2018

Tableau I-3 : (suite)

Traçage d'un flux de CO ₂ avec gaz rares	3.8 7	N.A.	Sable	Monophasique	CO ₂ , He, Ne, Ar, Kr, Xe, SF ₆	Advection Diffusion	20	SMQ	Kilgallon et al., 2018
Effet de variations de pression et température sur les flux de gaz	30 140	PVC	Billes de polystyrène	Monophasique	CO ₂	Diffusion	11 – 17	IRGA	Levintal et al., 2017
Remédiation du compost sur le méthane durant des cycles gel-dégel	25 60	Plexiglass	Compost	Biphasique	CH ₄	Advection	-9 - +23	GC	Moghbel et Fall, 2016
Émission de radon en zone non-saturée	15 70	PVC	Échantillonnage	Biphasique	Radon-222, CO ₂	Diffusion	N.A.	Durridge RAD7 GC	O'Brien et al., 2014
Diffusion Xe et SF ₆ en fonction du taux de saturation	5 100	N.A.	Sable	Biphasique	Xe, SF ₆	Advection Diffusion	N.A.	SM	Paul et al., 2014
Émissions de N ₂ O pendant un cycle gel-dégel	10 50	Acier	Excavée	Biphasique	N ₂ O	Diffusion	-5 - +20	GC	Peng et al., 2019
Migration de CO ₂ gazeux et dissous	5.7 450	N.A.	Sable	Biphasique	CO ₂	Diffusion	18 – 20	Conductivité électrique IRGA	Sakaki et al., 2013 Plampin et al., 2014

Tableau I-3 : (fin)

Détection d'une fuite de CO ₂ séquestré via les gaz rares	1 122	Verre	Sable	Biphasique	CO ₂ , Ar, CH ₄	Advection Diffusion	N.A.	GC	Sathaye et al., 2016
Emission de CO ₂ et N ₂ O durant des cycles de gel-dégel	14.5 16	N.A.	Excavée	Biphasique	CO ₂ , N ₂ O	Diffusion	-16 - +8	GC	Teepe et al., 2001
Emission de vapeur d'eau	10 20	Tube ABS	Échantillonnage	Biphasique	H ₂ O vapeur	Diffusion	20 – 25	Balance	Yanful et Choo, 1997
Comparaison méthode des gradients et chambre d'accumulation	25 40	N.A.	Échantillonnage	Biphasique	CO ₂	Diffusion	N.A.	IRGA	Yang et al., 2018

1.2.1. Expériences de transport de gaz en colonne : état de l'art

Quelle que soit l'étude de transport de gaz en colonne, la mise en place du dispositif va nécessiter de réaliser 4 choix : le choix de la colonne (matériaux, dimension), le choix du milieu poreux, le choix du gaz d'intérêt ainsi que celui des conditions expérimentales.

1.2.1.1. Différents types de colonnes

Selon l'échelle du processus étudié, les colonnes peuvent avoir des dimensions allant de quelques centimètres jusque plusieurs mètres (Tableau I-3). La géométrie cylindrique est la plus souvent choisie afin de minimiser les effets de bords par rapport à un bac rectangulaire. Le choix des matériaux est un paramètre important. Les principaux matériaux utilisés sont l'inox, le verre, l'acrylique plexiglass (60% des expériences d'après l'article de revue de [Lewis et Sjöstrom, \(2010\)](#)). Il est aussi possible de trouver des colonnes en PTFE, PVC, polybutyrate, fibre de verre ou encore en béton. Le choix du matériau utilisé va notamment prendre en compte les contraintes de solidité du dispositif ainsi que les interactions chimiques possibles et souvent non souhaitées avec le milieu poreux ou les traceurs. De ce fait, l'inox est à privilégier pour des dispositifs volumineux soumettant la colonne à de fortes contraintes. Les matériaux plastiques sont moins coûteux et plus faciles à manipuler pour des systèmes moins volumineux. Dans certains cas, des matériaux transparents comme le plexiglass ou le verre seront privilégiés pour les traçages avec des colorants ou pour de l'imagerie.

Afin de minimiser les chemins préférentiels le long des bords de la colonne lors du transport des traceurs, il a été observé dans certains cas un traitement de la surface interne des colonnes afin de créer une rugosité supérieure ou au moins égale à celle du milieu poreux ([Lewis et Sjöstrom, 2010](#)).

1.2.1.2. Différents types de milieu poreux et leur mise en place

Le choix du milieu poreux dépend du processus que l'on souhaite étudier. La colonne peut être utilisée pour travailler aussi bien sur un sol naturel (qui aurait été excavé) qu'un milieu poreux très simplifié (billes de verre par exemple ([Khan *et al.*, 2016](#)), ou encore un milieu poreux issu d'impression 3D ([Fee *et al.*, 2014](#))). Les colonnes de sol excavées permettent de travailler sur un système proche de la réalité du terrain puisqu'il n'y a pas (ou peu) de destruction/modification du milieu étudié. Le gros avantage de ce type de système est qu'il permet de conserver la structure du sol et en particulier tous les macropores qui se sont formés dans le milieu. Cependant cette hétérogénéité structurelle peut aussi être un inconvénient si le milieu n'est pas finement caractérisé en amont, à moins de travailler sur un grand nombre de colonnes afin d'obtenir une information moyenne représentative. L'une des

contraintes de ce type de colonnes est qu'il peut être difficile d'excaver des monolithes de sol, en particulier pour des colonnes de grande taille. Cependant il est parfois possible de laisser la colonne en terre et de venir l'instrumenter directement *in situ*, c'est ce qu'on appelle plus couramment des lysimètres (Pütz *et al.*, 2018).

L'autre solution consiste à reconstruire entièrement une colonne en la remplissant par couches. Cette méthode est souvent utilisée lorsque l'on souhaite contrôler le milieu poreux que l'on veut étudier ou avoir des colonnes homogènes. Lorsqu'on souhaite travailler sur des principes fondamentaux du transport, il est souvent recommandé d'utiliser des billes de verres. La première raison réside dans le fait que les billes fabriquées industriellement sont identiques. Le milieu poreux ainsi formé est purement homogène. Cette homogénéité rend l'étude et l'analyse du transport beaucoup plus simples. Si l'on souhaite se diriger vers une structure plus proche du sol, il est possible d'utiliser différents types de terres ayant des caractéristiques d'intérêt déterminées, telle la granulométrie ou la composition chimique ou minéralogique. Selon le protocole de remplissage, il est donc possible de créer une colonne homogène d'un seul et même sol. Cependant, il est aussi possible de remplir les colonnes en créant plusieurs couches différentes, chacune pouvant être constituées à partir d'un matériau différent, créant ainsi des différences de perméabilité ou encore de chimie. Enfin, il est aussi possible d'envisager de reconstruire un sol naturel. Après échantillonnage sur le terrain, il est possible de remplir la colonne en reconstruisant le profil de sol initial, horizon par horizon, si l'expérimentateur souhaite se rapprocher au mieux d'un sol naturel.

Concernant la méthode de remplissage, il est impératif de compacter le sol afin d'obtenir une masse volumique de sol avoisinant celle d'un sol naturel. La compaction peut se faire mécaniquement en appuyant sur la surface de chaque couche ou encore par vibrations après chaque ajout de couche de sol. Si l'expérience ne doit pas se faire sur un sol sec mais sur un sol non saturé, il est recommandé de remplir la colonne par sédimentation en rinçant plusieurs fois la colonne avec un excès d'eau (Lewis et Sjöstrom, 2010 ; Oliveira *et al.*, 1996).

1.2.1.3. Différents types de traceurs et de conditions expérimentales

Le choix du gaz traceur va dépendre de l'étude, il en existe 4 catégories : (i) les traceurs naturels présents ou produits naturellement dans le système tels que le CO₂ (Guo *et al.*, 2015 ; Yang *et al.*, 2018 ; Hu *et al.*, 2017), les gaz rares (Ding *et al.*, 2017) ou les COV (Khan *et al.*, 2016), (ii) les traceurs artificiels absents naturellement dans les systèmes étudiés tels que des traceurs isotopiques (Ghirardo *et al.*, 2020) ou certains gaz rares (Sathaye *et al.*, 2016), (iii) les traceurs inertes minimisant les interactions biogéochimiques tels que les gaz rares ou le SF₆ (Di Martino *et al.*, 2016 ; Kilgallon

et al., 2018), (iv) les traceurs réactifs intervenant dans des réactions biogéochimiques tels que le CO₂, l'O₂ ou le CH₄ (Di Martino *et al.*, 2016). Si le traceur est présent naturellement dans le système étudié, il n'est pas nécessaire d'avoir à injecter un gaz. Par exemple si le processus étudié concerne l'évapotranspiration (vapeur d'eau), le CO₂ ou le CH₄, un suivi du flux de ces gaz dans des conditions expérimentales choisies peut suffire. L'étude peut également s'intéresser à un processus pouvant être mis en évidence en injectant un traceur artificiel ou en injectant une concentration plus élevée d'un gaz déjà présent. L'injection se fait généralement à une extrémité de la colonne et peut être contrôlée : (i) par la pression d'injection (Hibi et Kashihara, 2018), (ii) par le débit d'injection (Ding *et al.*, 2016), ou (iii) les deux à la fois (Ding *et al.*, 2017). Le cas (ii) reste le plus communément utilisé car plus simple à mettre en place.

En dehors de l'injection, les études en laboratoire peuvent permettre de contrôler ou *a minima* de réduire les variations des conditions environnementales comme la température de l'atmosphère, la température de la colonne, l'humidité du milieu poreux, le vent, les fréquences d'arrosages, la composition de l'atmosphère, les cycles de lumières etc. (Dusza *et al.*, 2019, Levintal *et al.*, 2017). Dans la grande majorité des cas, les paramètres contrôlés sont principalement la température, l'humidité et la teneur en eau du système. Selon les études, le terme « contrôlé » ne signifie pas forcément imposer une valeur d'un paramètre et la maintenir constante au cours du temps ; il peut s'agir aussi d'un enregistrement des variations observées. Les expériences en laboratoire permettent de reproduire sur des périodes de temps plus courtes des variations de conditions se déroulant plus lentement dans le milieu naturel, comme des cycles de gel-dégel (Goldberg *et al.*, 2008).

1.2.2. Mesures de flux de gaz par chambre d'accumulation : état de l'art

La plupart des études en colonne utilisent des analyseurs de concentration afin de quantifier la répartition de la concentration des traceurs en fonction de la hauteur de la colonne en établissant des profils. Cependant la méthode des chambres d'accumulations permet d'obtenir directement une mesure de flux émis depuis un sol vers l'atmosphère.

1.2.2.1. Introduction générale à la méthode

Dans une publication apparue en 2018, une équipe de 29 chercheurs a résumé les bonnes pratiques d'utilisation des différents types de chambres d'accumulations pour la mesure de CO₂, N₂O et CH₄ à la surface d'écosystème terrestre (Pavelka *et al.*, 2018). L'avantage de cette méthode est qu'elle est facile à mettre en place et s'adapte aux conditions dans lesquelles l'opérateur souhaite l'utiliser. En

dehors des chambres d'accumulation manuelles et portatives, il existe les chambres d'accumulation statiques et les chambres d'accumulation automatiques. Sans contraintes de temps pour l'opérateur, la chambre d'accumulation automatique permet d'enregistrer à haute-résolution une grande quantité de données sans avoir à perturber plusieurs fois le sol à la surface duquel la mesure est effectuée. Souvent, il est souligné que la chambre d'accumulation manuelle sert principalement à réaliser des mesures complémentaires aux chambres automatiques lorsque ces dernières ne sont pas en nombre suffisant pour recouvrir toute la zone d'étude ou encore lorsque les conditions sont beaucoup trop extrêmes pour envisager l'installation de chambres automatiques. Comme mon travail porte sur des mesures de flux à l'échelle du laboratoire, je ne vais pas discuter de la meilleure stratégie à adopter pour les mesures de flux sur de grandes superficies. Le lecteur peut se reporter pour cela à l'article de Pavelka *et al.* (2018).

L'article de Pavelka *et al.* (2018) présente les différentes approches qu'il est possible d'avoir sur le terrain et compare l'efficacité des chambres d'accumulation non-portatives et automatiques. Pour cela, les deux systèmes ont été soumis à des contraintes telles que l'impact d'une variation de pression, d'une variation de luminosité, d'une variation de pluviométrie, des tests de fuite ou d'une ventilation. Dans l'annexe de leur étude, Pavelka *et al.*, 2018 proposent des estimations de génération d'erreurs sur le calcul du flux en fonction de biais sur différents paramètres intervenant dans le calcul. Ci-après, est présenté un résumé des avantages et inconvénients de la méthode des chambres d'accumulation automatiques, méthode que j'ai utilisée dans mon travail de thèse.

Il existe deux types de chambres automatiques : les chambres « open-dynamic » et les chambres « closed-dynamic ». Concernant les chambres dites « open-dynamic », le gaz est échantillonné et analysé puis il est remplacé par un gaz à la concentration connue pour maintenir l'équilibre de pression dans la chambre. Concernant les chambres dites « closed-dynamic », l'air qui s'accumule sous la chambre est échantillonné pour analyse, puis réinjecté afin de garder un équilibre de pression. Une fois la chambre mise en place, le flux est calculé lorsque la concentration a atteint un équilibre. Les chambres dites « closed-dynamic » sont celles qui se sont imposées, que ce soit à travers des versions commercialisées ou des versions réalisées spécifiquement par des équipes techniques (Pavelka *et al.*, 2018). Dans le cadre de mon projet j'ai travaillé particulièrement avec une chambre d'accumulation « closed-dynamic » commercialisée par la société LI-COR Biogeosciences (modèle LI-8100 et 8104).

1.2.2.2. Utilisation de la chambre d'accumulation « closed-dynamic »

Les chambres « closed-dynamic » se basent sur le principe suivant :

- (i) un anneau en PVC (ou collerette) est inséré dans le sol afin de garantir l'étanchéité entre le compartiment de sol étudié et le volume d'accumulation délimité dans sa partie supérieure par une paroi appelée cloche,
- (ii) une fois la cloche positionnée et après la fermeture, l'air est échantillonné en continu et envoyé vers l'analyseur de gaz (le plus souvent un analyseur à infrarouge pour les mesures de CO₂ ou encore un chromatographe pour les autres gaz) avant d'être réinjecté dans la cloche,
- (iii) une mesure des concentrations des gaz est réalisée à haute fréquence sur une courte période,
- (iv) le flux est calculé à partir de la variation de la concentration au cours du temps sous la cloche (Figure I-6).

L'échantillonnage de l'air sous la cloche peut se faire automatiquement grâce à une pompe reliée à l'analyseur utilisé (la mesure étant alors faite en direct) ou manuellement avec plusieurs prélèvements à la seringue avant analyse en laboratoire. La première option semble de loin la meilleure si l'analyseur utilisé ne perturbe pas l'accumulation sous la cloche.

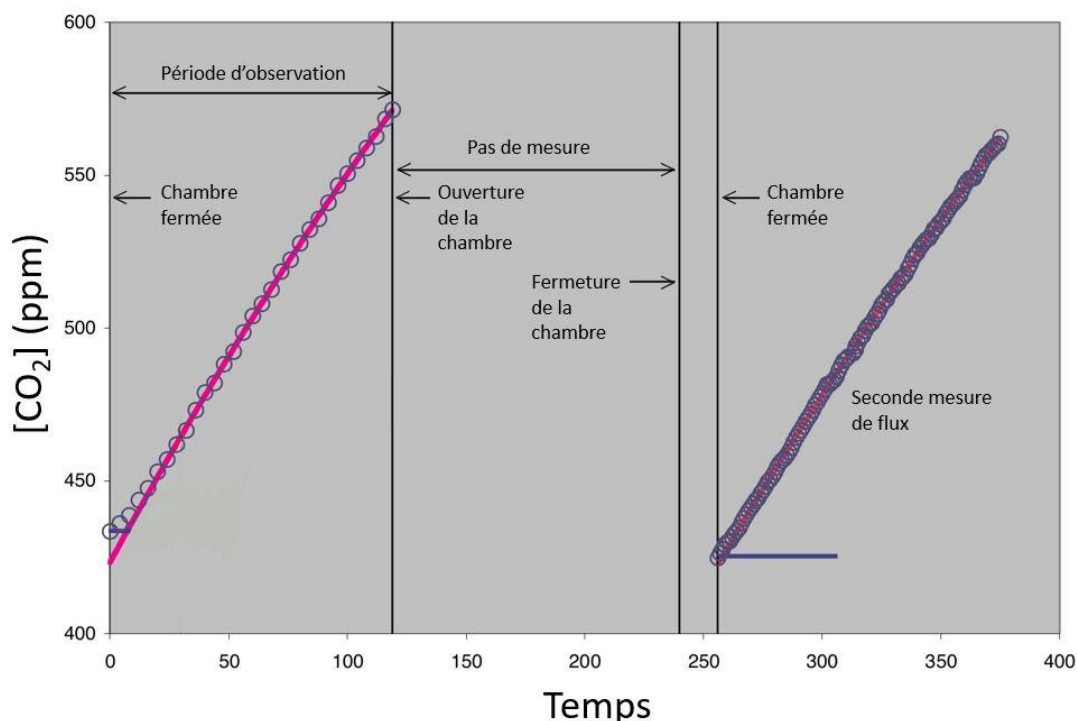


Figure I-6 : Exemple de mesures effectuées avec une chambre d'accumulation « closed-dynamic ». La concentration de CO₂ (ronds bleus) est mesurée lorsque la chambre est fermée et augmente transitoirement. Une approximation (courbe rose) de cette accumulation transitoire permet de calculer un flux de CO₂. Entre deux périodes de mesures, la cloche est ouverte, ce qui lui permet de se rincer. Dans cet exemple adapté d'une figure du manuel LI-COR, deux fréquences d'acquisition sont représentées sur le graphique. Sur la mesure de gauche, la fréquence est plus faible que sur la mesure de droite (nombre de ronds bleus). Cette différence peut influencer la précision de l'approximation utilisée (écart entre la courbe rose et les ronds bleus).

De manière générale, les caractéristiques de la chambre d'accumulation nécessiteront de s'adapter aux domaines d'étude (hauteur de la végétation présente sur place par exemple). L'opacité de la chambre d'accumulation est une des premières caractéristiques à prendre en compte. Une chambre opaque évitera l'augmentation de température par les radiations lorsqu'elle sera fermée. Pour l'opacité il est conseillé de recouvrir la cloche de peinture blanche mate afin de réfléchir au maximum la lumière du soleil. Une chambre transparente, quant à elle, génèrera un « effet de serre » en se refermant, même pour une période de fermeture inférieure à 5 minutes. Les cloches transparentes sont à privilégier afin de prendre en compte l'activité photosynthétique de l'écosystème dans le coefficient de l'échange net de l'écosystème (NEE) s'il y a de la végétation.

Bien que différentes géométries de chambre soient utilisables, il semble préférable de privilégier une section cylindrique et une forme en cloche pour un meilleur mélange (Pavelka *et al.*, 2018). Les matériaux utilisés lors de la conception devront être les plus inertes possibles afin de ne pas réagir avec le gaz mesuré (par exemple : PVC, PP, PE, ABS, PTFE-Téflon, PMMA). La structure doit pouvoir supporter les variations météorologiques des conditions de l'expérience. La chambre doit être munie d'un système de ventilation (vent), spécialement dimensionné en fonction du volume de la chambre, afin de prévenir toute perturbation de pression dans la chambre d'accumulation au cours de sa fermeture. Toutes ces caractéristiques sont visibles sur la photographie des chambres d'accumulation dont je dispose pour ce projet (Figure I-7).

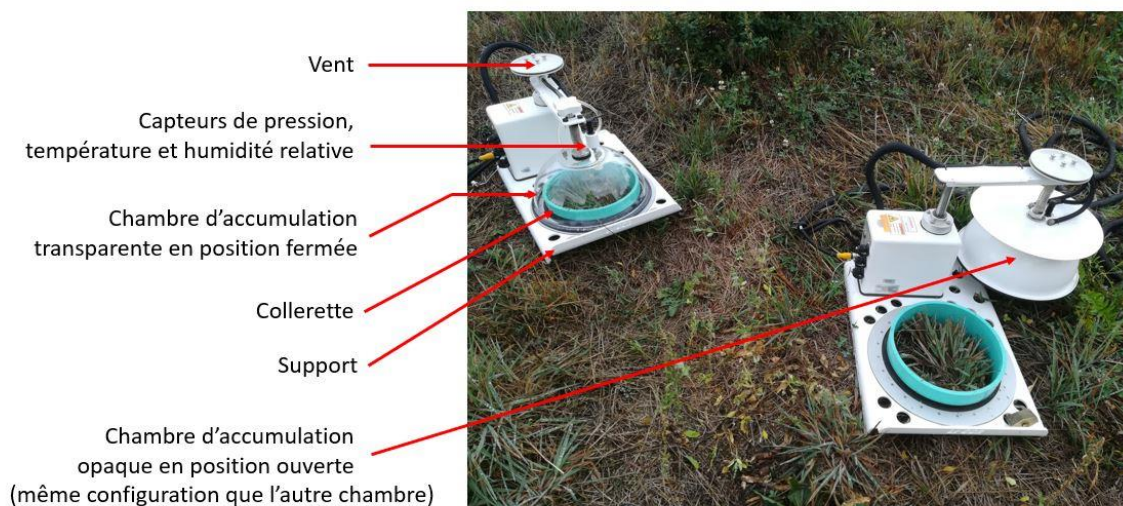


Figure I-7 : Deux chambres d'accumulation « closed-dynamic » déployées sur le terrain pour effectuer des mesures de flux de CO₂. La chambre de gauche est transparente, permettant de mesurer le flux net de CO₂ (respiration + photosynthèse) en laissant passer les radiations du soleil. La chambre de droite est opaque, empêchant la photosynthèse lors de la mesure. Chaque chambre est reliée à un analyseur de CO₂ qui fonctionne par absorption infrarouge.

Dans le cas idéal, la phase gaz sous la cloche devrait être autant mélangée qu'à l'extérieur de la chambre. Pour cela, il est possible de placer des ventilateurs pilotés par un anémomètre avec une puissance de fonctionnement proportionnelle au vent à l'extérieur de la chambre. Ce principe est également pertinent dans le cas d'un sol nu soumis à un effet venturi à cause de vents plus ou moins forts provoquant des variations de pression à la surface du sol. Cependant dans les conditions standards, une ventilation constante à chaque mesure est à favoriser pour ne pas ajouter de biais entre deux mesures d'accumulation.

La collerette doit être insérée suffisamment profondément dans le sol (environ 5 cm) afin de garantir la bonne étanchéité entre le volume d'accumulation et la surface du sol échantillonné. Il est important de faire attention, lors de l'insertion, de ne pas créer un effet de tranchage de la zone racinaire. L'insertion de la collerette dépend aussi du taux d'accumulation attendu des traceurs étudiés. Pour des accumulations longues dépassant les 30 minutes de fermeture, afin d'avoir suffisamment de signal (ex : CH₄, N₂O), il est parfois nécessaire d'augmenter la profondeur d'insertion de la collerette.

1.2.2.3. Mesures auxiliaires importantes

Il est recommandé que la température de l'air sous la cloche avoisine celle du sol afin d'éviter des effets de convection dus à un gradient de température entre l'air et le sol (ce qui peut être le cas si la cloche génère un effet de serre). La mesure de la température de l'air devra se faire, si possible, sous la cloche de sorte à prendre en compte les variations de températures durant la fermeture de la cloche. La température du sol devrait être mesurée dans la partie recouverte par la cloche dans la mesure du possible. Ces mesures permettront de savoir si la convection thermique participe au flux de gaz mesuré.

La teneur en eau est un facteur important à prendre en compte et doit être mesurée à une profondeur de 5 cm proche de la collerette. La teneur en eau est amenée à varier en fonction des conditions imposées. Ceci peut engendrer des variations sur les mesures de flux en modifiant les perméabilités relatives aux gaz ou en dissolvant du gaz dans la phase liquide.

Dans le cas d'une cloche transparente, une mesure du PAR (Photosynthetically Active Radiation) couplée à une mesure de l'humidité relative dans l'air peuvent s'avérer utiles pour la compréhension de l'activité du couvert végétal.

1.3. Mécanismes de migration et modélisation des flux de gaz

La précision des mesures obtenue grâce aux expériences en colonne permet de disposer de données implémentables dans les codes de transports, y compris les codes utilisés dans les simulations à grandes échelles. De plus, parce que les conditions sont contrôlées, les études en laboratoire permettent aussi la réalisation de tests comparatifs autour de mêmes cas d'étude balisés pour les différents codes de transports réactifs (Benchmarking). Il existe de nombreux codes de transport (réactifs ou non) capables de modéliser les écoulements de fluides et le transport des gaz. Cependant, le cadre d'une émission de gaz du sol vers l'atmosphère soulève des questions supplémentaires à prendre en compte telles que : le changement de milieu sol-atmosphère, la gestion du transport biphasique (eau-gaz) en zone non-saturée, la prise en compte de l'activité biologique (*a minima* la respiration racinaire). L'utilisation des données produites lors d'expériences en colonnes dans les codes de transport est donc loin d'être simple ou immédiate. Dans le cadre de ce projet, j'ai néanmoins travaillé sur la complémentarité entre la modélisation et les données expérimentales. Cette partie présente les principaux mécanismes et équations associées introduits dans les codes de modélisation des flux de gaz.

1.3.1. Mécanismes de transport du gaz émis du sol vers l'atmosphère

1.3.1.1. Transport du gaz selon le gradient de pression : l'advection-dispersion

L'écoulement laminaire d'un fluide newtonien (ici un gaz g) dans un milieu poreux sous l'effet des gradients de pression ∇P_g est décrit par la loi de Darcy (De Marsily, 1986) :

$$q_g = -k \frac{k_{rg} \cdot \rho_g}{\mu_g} (\nabla P_g - \rho_g \cdot g) \quad (1.1)$$

où q_g est le flux massique de la phase gaz g en $\text{kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, k la perméabilité intrinsèque de la roche en m^2 , k_{rg} la perméabilité relative de la phase gaz comprise entre 0 et 1, P_g la pression dans la phase gaz en Pa, ρ_g la masse volumique du fluide en $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$, μ_g sa viscosité dynamique en Pa.s et g l'accélération de la pesanteur en $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$. Cette formule est aussi applicable pour un liquide. Pour simplifier, on considère ici un milieu isotrope homogène, dans lequel la perméabilité est constante, et ne dépend pas de la direction de l'écoulement.

Le transport d'un gaz par advection suit l'écoulement de la phase dans laquelle il se situe. Le flux massique d'un gaz i dans la phase gaz g est donné par :

$$q_{gi} = X_{gi} * q_g \quad (1.2)$$

où X_{gi} est la fraction massique du constituant i dans la phase gaz g .

Lorsque la pression barométrique varie, le gradient de pression ∇P_g peut parfois s'inverser, modifiant le sens des flux à la surface (Figure I-8). Ce phénomène est à l'origine de ce qui est appelé « pompage barométrique ». Sur la Figure I-8, cette variation est approximée par une fonction sinusoïdale. Le sol constitué à la fois d'une matrice poreuse et parfois d'un réseau de fractures (ou de macropores) connecté avec l'atmosphère. Si une variation de pression s'opère dans l'atmosphère, elle va se propager rapidement par les réseaux de fractures dans le sol, lentement par la matrice. Cette propagation possède un certain délai de réponse qui engendre des écarts de phase entre les variations de la pression barométrique (P_{atm}) et la pression dans le sol (P_{sol}). Ces écarts ont pour conséquence la création de gradients de pression oscillants qui modifient le sens des flux de gaz dans le sol. Ceci a pu être observé à plusieurs reprises et a aussi pu être modélisé dans les milieux poreux fracturés (Chen, 1989 ; Massmann et Farrier, 1992 ; Mourzenko et al., 2014).

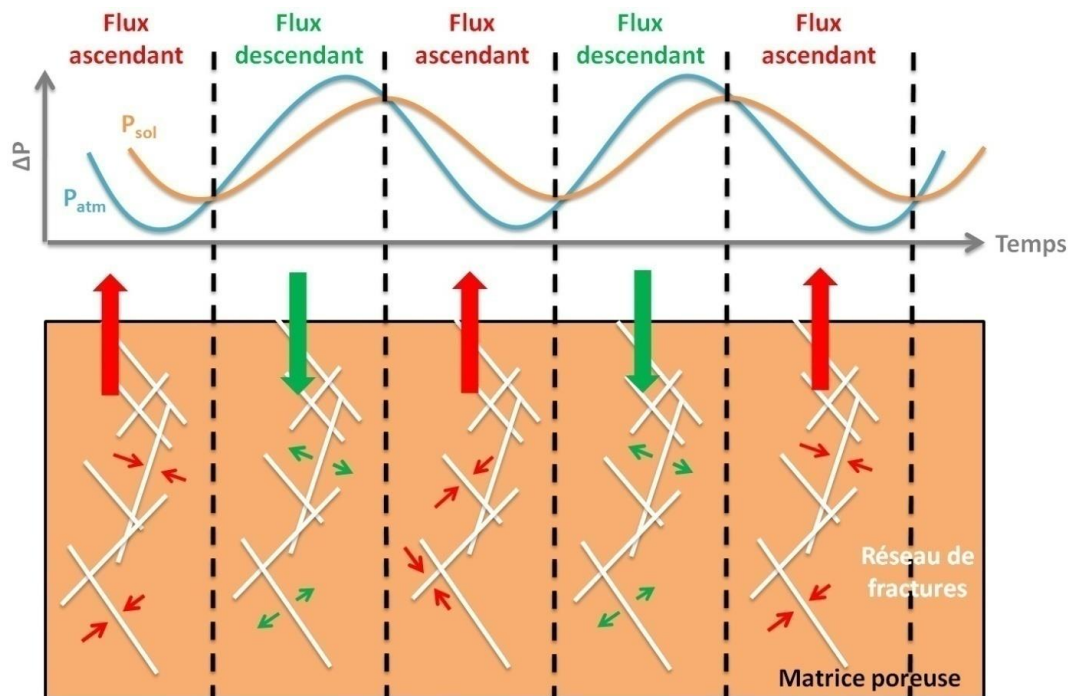


Figure I-8 : Schéma de l'advection dispersion entre un milieu poreux fracturé et l'atmosphère. Dans le cas général, les flux de gaz vont du compartiment à la pression la plus élevée vers le compartiment à la pression la plus faible. Les grosses flèches rouges représentent les flux ascendants lorsque la pression du sol (P_{sol}) est supérieure à la pression atmosphérique (P_{atm}). Dans le cas contraire, les grosses flèches vertes représentent les flux descendants. Sur cette figure est aussi représenté le pompage barométrique dans le temps. Les écarts de phases entre les variations de pressions de

l'atmosphère et celles de la pression du sol engendrent des variations de sens du flux. Lorsque la pression est plus élevée dans l'atmosphère, le gaz passe dans le sol par les fractures par advection et se disperse dans la matrice et inversement. Les petites flèches rouges représentent le flux de gaz de la matrice poreuse vers les fractures, les petites flèches vertes les flux de gaz des fractures vers la matrice poreuse.

1.3.1.2. Transport du gaz selon le gradient de concentration : la diffusion

La diffusion est un processus de transport de la matière depuis une zone à forte concentration vers une zone à faible concentration, et résulte du mouvement aléatoire des molécules. La diffusion ne fait pas intervenir de déplacement global du fluide vecteur liquide ou gaz. Le flux diffusif F_g^i du constituant i (en $\text{kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) dans la phase gazeuse g est donné par la première loi de Fick, modifiée pour un milieu poreux :

$$F_g^i = -\rho_g \varepsilon S_g \tau_g D_g^i \nabla X_g^i \quad (1.3)$$

où ε est la porosité de la roche, S_g la saturation en gaz, τ_g le coefficient de tortuosité de la phase gazeuse, D_g^i est le coefficient de diffusion moléculaire du constituant i dans l'air (en $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$), et X_g^i le gradient de concentration du constituant. Le modèle empirique de Millington et Quirk (1961) est fréquemment utilisé pour exprimer le coefficient de tortuosité dans les milieux poreux, sols ou roches :

$$\tau_g = S_g^{7/3} \varepsilon^{1/3} \quad (1.4)$$

Lorsque les gradients de pression et de concentration coexistent, le transport a lieu à la fois par advection et par diffusion. Le flux total est donné par :

$$J_i = X_g^i * q_g + F_g^i \quad (1.5)$$

La description quantitative du transport par advection et par diffusion dans un milieu poreux passe par la résolution de l'équation de conservation de la matière. Dans le cas le plus général, elle s'écrit :

$$\frac{dX_g^i}{dt} + \text{div}(J_i) + \Phi_i - \Lambda_i = 0 \quad (1.6)$$

où Φ_i et Λ_i sont respectivement les sources et les puits du constituant i .

1.3.1.3. Transport biphasique en zone non-saturée en eau

1.3.1.3.1. Processus physiques

Le transport du gaz dans un sol non-saturé va dépendre de la répartition de l'eau, contrôlée par les caractéristiques du sol.

La pression dans la phase liquide s'exprime en fonction de la pression capillaire $P_c (\leq 0)$ et de la pression dans la phase gazeuse :

$$P_l = P_g + P_c \quad (1.7)$$

Différents modèles existent pour exprimer les perméabilités relatives à l'eau et à l'air et la pression capillaire en fonction de la saturation en eau S_l de la roche. La saturation est définie comme la proportion du volume de pores occupée par le fluide, comprise entre 0 et 1.

Le modèle le plus utilisé pour exprimer la perméabilité relative à l'eau est celui de Van Genuchten-Mualem (Van Genuchten, 1980 ; Mualem, 1976), qui s'écrit :

$$k_{rl} = S_e^{1/2} \left[1 - (1 - S_e^{1/m})^m \right]^2 \quad (1.8)$$

avec

$$S_e = \frac{S_l - S_{lr}}{S_{lmax} - S_{lr}} \quad (1.9)$$

où m est un paramètre sans unité, S_e est la saturation effective en eau, S_{lmax} la saturation maximale de la roche et S_{lr} la saturation résiduelle en eau. La perméabilité relative à l'air est donnée par le modèle de Brooks et Corey (1966) :

$$k_{rg} = (1 - S_e)^2 (1 - S_e^{3-2m}) \quad (1.10)$$

Un autre modèle très simple est parfois utilisé pour exprimer la perméabilité relative à l'air :

$$k_{rg} = 1 - k_{rl} \quad (1.11)$$

mais il ne sera pas utilisé ici. Les données expérimentales obtenues au laboratoire sur des échantillons de roche sont bien reproduites par les modèles de Van Genuchten-Mualem et de Brooks et Corey (Dane et al., 1998).

Le modèle de Van Genuchten (Van Genuchten, 1980) est également le plus courant pour exprimer la pression capillaire :

$$P_{cap} = \frac{-1}{\alpha} (S_e^{-1/m} - 1)^{1-m} \quad (1.12)$$

où m est le même paramètre que précédemment, et α est l'inverse de la pression d'entrée d'air en Pa^{-1} . Pour un échantillon complètement saturé en eau, la perméabilité à l'eau correspond à la perméabilité intrinsèque de la roche. De la même manière, la perméabilité à l'air d'un échantillon complètement sec correspond à la perméabilité intrinsèque de la roche.

La présence d'une frange capillaire peut engendrer des chenaux si un gaz se trouvant à une plus grande profondeur est amené à la franchir pour atteindre l'atmosphère. En effet, même dans les milieux les plus homogènes, la répartition aléatoire des grains va créer des micro-hétérogénéités amenant au processus de « fingering » ou chenalisation (Islman et al., 2018). Ceci signifie qu'à un

endroit donné, le gaz atteindra la pression d'entrée d'air plus facilement qu'ailleurs, favorisant donc un passage préférentiel dans cette direction.

De plus, des variations extrêmes de teneur en eau à l'échelle locale peuvent créer des perturbations des flux de gaz dans les milieux poreux. Il a été montré, par exemple, qu'un sol s'asséchant ou recevant des pluies répétées crée une croûte à faible perméabilité en surface (Neave et Rayburg, 2007 ; Armenise et al., 2018). La perte d'eau du milieu poreux se fait par émission de vapeur d'eau à l'interface entre le sol et l'atmosphère. Cette émission peut se faire par deux mécanismes. Le premier mécanisme concerne l'évaporation physique qui va dépendre de la température de l'air, de la température de l'eau, des radiations à la surface du sol ainsi que des caractéristiques de ce sol (Fetzer et al., 2017). Le second mécanisme est la transpiration au niveau des feuilles du couvert végétal que nous allons décrire dans la partie suivante.

1.3.1.3.2. Processus biogéochimiques

La présence d'eau a aussi des effets de nature chimique sur les flux de gaz et notamment la dissolution des gaz dans la phase aqueuse. Ceci est souvent modélisé sous une forme dérivée de la loi de Henry (Sander, 2015) : La concentration maximale de gaz c_a pouvant passer dans la phase aqueuse (ou solubilisation) est proportionnelle à un coefficient de dissolution H^{cp} propre à chaque gaz ainsi qu'à sa pression partielle p :

$$H^{cp} = c_a/p \quad (1.13)$$

avec H^{cp} en $\text{mol} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{Pa}^{-1}$, c_a en $\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}$ et p en Pa.

Le coefficient de solubilité H^{cp} est aussi dépendant de la température, décrit par la loi de van't Hoff :

$$H^{cp}(T) = H_0^{cp} * \exp\left(\frac{d\ln H^{cp}}{d(1/T)}\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right) \quad (1.14)$$

avec $H^{cp}(T)$ le coefficient de solubilisation dépendant de la température en $\text{mol m}^{-3} \text{ Pa}^{-1}$, H_0^{cp} le coefficient de solubilisation standard en $\text{mol m}^{-3} \text{ Pa}^{-1}$, la constante $\frac{d\ln H^{cp}}{d(1/T)}$ déterminée expérimentalement en K, T la température réelle en K et T_0 la température de référence (298.15 K).

Les valeurs de H_0^{cp} et $\frac{d\ln H^{cp}}{d(1/T)}$ sont tabulées pour un grand nombre de gaz dans Sander (2015).

En combinant les deux équations (1.13) et (1.14), nous obtenons la formule de solubilisation suivante :

$$c_a(T) = p * H_0^{cp} * \exp\left(\frac{d\ln H^{cp}}{d(1/T)}\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right) \quad (1.15)$$

La présence d'un couvert végétal ou de micro-organismes dans le sol va engendrer une dynamique de teneur en eau et de concentrations de certains gaz via leur activité métabolique. Ici, l'exemple particulier de la respiration est présenté car ce cas nous intéressera plus particulièrement dans la suite du manuscrit. Bien entendu, ce raisonnement est valable aussi pour la méthanisation ou encore la minéralisation de la matière organique, etc.

La respiration aérobie (en présence d'oxygène) se fait principalement dans la rhizosphère. Cette zone de sol est directement influencée par les racines ainsi que par une forte activité des micro-organismes (bactéries, champignons). Au premier ordre, la respiration peut se décrire par le bilan de réaction net suivant :



Cette réaction va engendrer notamment des changements en concentration de gaz tels qu'un appauvrissement en oxygène. La pression partielle changeant localement et transitoirement modifie les gradients de pressions locaux et génère des perturbations sur les flux de gaz comme cela a été démontré par Freundt (2013). L'équation 1.16 montre que dans le cas inverse de la réaction (la photosynthèse), l'eau est nécessaire pour métaboliser le CO₂ et produire de l'O₂. Cette eau a pour origine les pores du sol dans la zone racinaire et finit transpirée à la surface des feuilles. La teneur en eau dans les sols diminue donc en période photosynthétique. La transpiration de l'eau par les plantes se fait par gradient de potentiels hydriques décroissant entre la zone racinaire et la surface des feuilles résultant de la circulation de la sève. Ce mécanisme couplé à l'évaporation physique est appelé évapotranspiration.

Pour aller plus loin sur la modélisation physique et biogéochimique des sols, un état de l'art des modèles de transports pour les sols et écosystèmes terrestres a été réalisé par Vereecken *et al.*, en 2016.

1.3.2. Utilisation des codes de transport réactif dans la modélisation des flux de gaz

1.3.2.1. Principes associés à l'utilisation de modèles

Afin de pouvoir utiliser les codes de transports dans les meilleures conditions, il est nécessaire d'utiliser des données expérimentales pour les calibrer et les valider en amont. Ceci est notamment illustré dans Druhan *et al.*, 2014 pour l'ajout des outils isotopiques dans le code de transport CRUNCHFLOW ; par Hou *et al.*, 2015 pour améliorer la simulation des profils de pression et par Ganzeveld, 2002 pour améliorer la précision des paramètres initiaux des modèles.

Tous les codes reprennent les équations décrites ci-dessus. Il est nécessaire d'initialiser un certain nombre de paramètres en fonction des conditions de l'étude. Tout d'abord, il faut décrire le milieu poreux, notamment avec les paramètres suivants : les perméabilités (intrinsèques ou relatives), les paramètres de Van Genuchten, la porosité, la tortuosité. Puis, il faut identifier et définir les traceurs et leur moteur de transport en implémentant dans le code : la pression de source et de l'atmosphère pour l'advection-dispersion, la concentration de la source et de l'atmosphère pour la diffusion, un débit de fuite de la source et les coefficients de dissolution des traceurs. Plus l'initialisation de ces paramètres sera précise et contrainte grâce à l'expérience, plus il sera facile de réaliser une modélisation appropriée. C'est pour cela que la réalisation d'expériences en milieu contrôlé au laboratoire permet de mieux gérer les conditions imposées au modèle avec des données précises. Cette méthode est souvent utilisée lors d'inter-comparaison (benchmarking) entre différents codes de transports (Porter *et al.*, 2015).

1.3.2.2. Codes de transports réactifs utilisés pour la simulation du transport de gaz

Tous les codes présentés ci-dessous permettent de simuler le transport biphasique liquide-gaz dans les milieux poreux. Dans le cadre de ma thèse, j'ai travaillé plus particulièrement avec les codes HYTEC et NUFT. Mes premiers essais avec HYTEC s'étant avérés infructueux, j'ai ensuite développé des scripts pour la simulation du transport de gaz dans une colonne de sol non-saturé en eau grâce au code NUFT.

1.3.2.2.1. NUFT

Le code NUFT (Nonisothermal Unsaturated-Saturated Flow and Transport) est développé au Lawrence Livermore National Laboratory aux États-Unis. Ce code permet plus généralement de traiter le transport de polluants dans les milieux poreux fracturés et aussi le transport de gaz en milieu non-saturé. Ce code prend également en charge les transferts de chaleur selon les gradients thermiques. Le code NUFT regroupe plusieurs modules permettant d'effectuer des calculs d'écoulement et de transport multi-phases et multi-éléments dans les milieux poreux fracturés (Nitao et Sun, 2015). Le code intègre une discrétisation spatiale en éléments finis pour résoudre les équations de bilans de masse et d'énergie en utilisant à chaque pas de temps la méthode de Newton-Raphson.

1.3.2.2.2. *HYTEC*

HYTEC est un code de transport réactif qui couple deux modules, un pour le transport et l'écoulement 2D (R2D2), l'autre pour les réactions géochimiques (CHESS). Il est développé par le centre de Géosciences de Fontainebleau de MINES ParisTech (Van Der Lee *et al.*, 2002 ; Lagneau, 2013). Son application première est de simuler la contamination des eaux dans le sous-sol ou encore de permettre la surveillance de sites de stockage de déchets nucléaires. Cependant, le code permet aussi l'étude du transport des gaz dans le cadre de la séquestration de CO₂ supercritique à grande profondeur. Le code a été parallélisé afin d'accélérer les temps de calculs.

1.3.2.2.3. *TOUGHREACT*

Ce code de transport réactif est développé par le Lawrence Berkeley National Laboratory aux États-Unis. Ce code a beaucoup été utilisé pour l'étude du stockage géologique de CO₂ (Oldenburg et Unger, 2003, 2004), l'exploration pétrolière, le stockage de déchets nucléaires ainsi que la géothermie (Xu *et al.*, 2014).

TOUGHREACT est une version améliorée du code de transport TOUGH2 qui réalise des calculs de transports et d'écoulements de fluides et de chaleurs à laquelle il a été rajouté un modèle de géochimie intégrant différentes conditions : pression, température, teneur en eau et force ionique.

1.3.2.2.4. *MIN3P*

Le code MIN3P est développé par l'Université British Columbia au Canada. Ce code a été principalement développé pour l'étude de la chimie inorganique avec la possibilité d'utiliser le fractionnement isotopique. MIN3P permet les calculs de transports multi-composants, de chaleur, d'écoulement dépendant de la densité pour les milieux poreux à saturation variable allant d'une à trois dimensions (Mayer *et al.*, 2017). Cependant, dans ce code, bien que l'écoulement de l'eau se fasse par advection-dispersion, le transport de gaz se fait par diffusion. Le transport est discrétisé avec une conservation de la masse gérée localement dans des volumes finis.

1.3.2.2.5. *Dusty Gas Model*

Le Dusty Gas Model est un code qui décrit le mouvement de mélanges de fluides dans les milieux poreux à plusieurs composants. Le milieu poreux est considéré comme un composant supplémentaire,

une particule géante, d'où le nom du modèle. Il est notamment utilisé afin de relier les équations d'advection et de diffusion des gaz couplées avec le coefficient de Knudsen (Ding et al., 2017). Ce coefficient de diffusion est supérieur à celui de la loi de Fick, classiquement utilisé, car il prend notamment en compte la diffusion due aux collisions entre les particules (Hibi et al., 2012 ; Hibi et Kashihara, 2018).

1.4. Conclusion

La mesure des flux de gaz du sol vers l'atmosphère est d'une importance majeure pour plusieurs questions sociétales à fort enjeu. En effet, la mesure de flux de gaz est essentielle pour la compréhension de changements globaux avec l'étude des zones émettrices de gaz à effet de serre (les volcans à l'échelle des temps géologiques ou le permafrost), pour la surveillance de sites à risque pour l'Homme (la détection d'une fuite d'un réservoir de séquestration de CO₂, la remédiation d'un sol contaminé, l'impact du radon-222 dans les habitations) mais aussi pour la détection des essais nucléaires souterrains dans le cadre de la lutte contre la prolifération nucléaire.

Toutefois, la signification d'une mesure de flux de gaz est un problème complexe. En effet, du fait de la variation d'un flux dans l'espace et le temps, il faut en permanence se poser la question de la représentativité de la mesure. Pour gagner en confiance sur la signification d'une mesure et être capable d'extrapoler la valeur mesurée dans l'espace et le temps, il est important de pouvoir comprendre les facteurs faisant varier ces flux. Une part significative de la variation d'un flux entre la surface et l'atmosphère provient des conditions (dynamiques) de transfert de gaz dans le sol. Pour mieux comprendre, quantifier et hiérarchiser le contrôle des différents processus physiques, chimiques et biologiques qui modifient les transferts de gaz dans les sols, une approche réductionniste en conditions hautement contrôlées s'impose. C'est ce que j'ai réalisé au cours de mon travail de thèse. La description du dispositif innovant que j'ai conçu et les résultats de l'utilisation de ce dispositif sont présentés respectivement dans les Chapitres 2 et 3. De plus, pour pouvoir comprendre et extrapoler des mesures de flux, il est nécessaire de pouvoir modéliser de manière convaincante ces mesures à l'aide de modèles de transfert de gaz en milieu poreux. C'est ce que j'ai essayé de réaliser en travaillant notamment avec les codes HYTEC et NUFT. Les résultats seront présentés dans le Chapitre 4.

2. Développement d'un dispositif expérimental innovant pour le suivi à long-terme et haute-résolution des flux de gaz

Dans le cadre de ce projet de thèse, j'ai développé un dispositif expérimental « ESCAPe » (pour Experimental Setup for Controlled Analyses of gas Percolation) permettant la percolation de gaz à travers une colonne de sol. L'objectif est d'étudier les processus physiques, chimiques et biologiques se déroulant dans le sol et pouvant faire varier le flux de gaz, généré dans le sous-sol ou le sol, et mesuré à l'interface sol-atmosphère. Dans ce chapitre, je vais présenter dans un premier temps les besoins auxquels le dispositif expérimental doit répondre, pour deux versions du dispositif (ESCAPe v1 et ESCAPe v2). Dans la deuxième partie, je présenterai les conditions expérimentales qui pourraient permettre de décorréler les actions des différents processus au cours des expériences. Enfin, nous terminerons par la présentation de notre système d'acquisition garantissant le meilleur traitement de données. Tous ces points pris dans leur ensemble constituent le dispositif expérimental à long-terme (plusieurs mois) et haute-résolution (minute) que j'ai développé dans le cadre de mon travail de thèse.

2.1. Nécessité d'un dispositif innovant et cahier des charges

Afin de concevoir le meilleur dispositif possible, nous avons établi un cahier des charges précis dès le départ. L'application première est de comprendre l'influence du sol sur les variations de flux de gaz mesurés en surface. Pour réaliser le cahier des charges, je me suis appuyé sur l'étude bibliographique faite dans le Chapitre 1, ainsi que sur l'expertise de l'équipe de l'Ecotron ÎleDeFrance. Bien qu'il existe plusieurs expériences mettant en jeu des colonnes de sols comme il a été montré dans le Tableau I-3 (Altevogt et al., 2003 ; Alzaydi et al., 1993 ; Costanza-Robinson et Brusseau, 2002 ; Evans et al., 2001 ; Fischer et al., 1996 ; Ghirardo et al., 2020 ; Harrison et al., 2016 ; Hibi et al., 2012 ; Hibi et Kashihara, 2018 ; Khan et al., 2016 ; Yang et al., 2018), il est difficile de tirer une conclusion sur les contrôles couplés de la physique, de la chimie et de la biologie sur le transport de gaz à partir de ces travaux. En effet, les géométries, les conditions initiales, les hypothèses et les limites expérimentales proposées dans ces études diffèrent énormément et ne sont pas contrôlées aussi finement que nous le souhaiterions. Nous avons donc choisi de réaliser notre propre montage. Après une étude fonctionnelle, j'ai déterminé les points-clefs que devait posséder ce dispositif : (i) permettre la percolation de gaz à travers une colonne de sol, (ii) assurer un contrôle important sur les conditions expérimentales, (iii) garantir une répétabilité et solidité dans le temps, (iv) être modulable afin de l'ajuster facilement selon l'étude, (v) avoir une acquisition long-terme et haute-résolution.

Afin de simuler à l'échelle du laboratoire une source de gaz en subsurface, il est possible d'injecter un gaz à la base des colonnes, généralement à l'aide d'un volume d'injection dédié. Pour induire les percolations de gaz à travers les colonnes, nous avons choisi d'utiliser un gradient de pression comme moteur de transport. Les gradients de pression imposés sont faibles (quelques millibars à dizaines de millibars, équivalents à des variations de pression barométrique) afin de ne pas masquer des variations que nous souhaitons observer au cours des expériences. Du fait de gradients de pression si faibles, le contrôle de l'injection doit être particulièrement fin. En parallèle, le dispositif a été pensé afin de laisser aussi l'opportunité du transport par diffusion, en l'absence de gradient de pression.

Afin d'optimiser le protocole et limiter les opérations à effectuer au cours des expériences, il était important pour nous d'avoir un dispositif ajustable et robuste avec lequel les expériences puissent se dérouler pendant plusieurs mois. Le dispositif a été pensé de sorte à assurer la possibilité d'ajuster les paramètres de contrôles sans avoir à stopper l'expérience (paramètres de climat, d'injection, de cycle jour-nuit, etc.).

Afin de limiter les variations pouvant être induites par les conditions expérimentales, nous avons pensé à contrôler les températures, la composition atmosphérique ainsi que les cycles d'arrosage ou d'éclairage. Un contrôle poussé des conditions expérimentales implique une forte instrumentation. Parce qu'il n'est pas facile, voire infaisable de tout contrôler, nous avons veillé à ce que lorsqu'une condition expérimentale ne peut être contrôlée, elle soit *a minima* surveillée avec des mesures fines. Il était aussi important, dans le cadre de mon projet de thèse, qu'un couvert végétal puisse se développer à la surface de la colonne.

Enfin, la mise en place d'une chaîne de mesure permettant l'acquisition et le traitement de données en temps réels avec une haute résolution était nécessaire. Ceci permet d'observer les variations à hautes fréquences qui ont lieu au cours d'une journée (respiration, photosynthèse, évaporation, évapotranspiration, variations de pression barométrique).

Il n'était pas concevable de travailler avec de nombreux réplicas au vu de toute l'instrumentation nécessaire pour nos expériences et du volume que cela occupe dans une chambre climatique. Nous avons donc fait le choix de travailler avec deux colonnes simultanément pour chaque expérience. Une colonne sert de témoin alors que l'autre possède une perturbation supplémentaire par rapport à la colonne témoin. Les deux colonnes ayant été préparées avec le même protocole et étant placées dans les mêmes conditions expérimentales, nous pourrons observer et discuter des éventuels effets de la perturbation ajoutée à la seconde colonne (exemple : une colonne sans plante, une colonne avec plantes ; une colonne sèche, une colonne en conditions non-saturées en eau).

Pour la conception du dispositif expérimental, j'ai été hébergé dans l'Unité Mixte de Service (UMS 3194 CNRS-ENS) du Centre de Recherche en Ecologie Expérimentale et Prédictive (CEREEP-Ecotron ÎleDeFrance). Ce centre possède une plateforme équipée de chambres climatiques appelées ECOLAB permettant un contrôle unique sur de nombreux paramètres en lien avec les conditions météorologiques et les gaz (Verdier *et al.*, 2014). J'ai aussi pu bénéficier de l'expérience acquise par cette équipe pour établir mon dispositif expérimental. De plus, les compétences de chacun des membres de l'équipe ont pu être sollicitées, que ce soit au niveau de la conception ou du montage de la colonne (choix des matériaux, usinages) et du système d'acquisition à long-terme et haute-résolution (contrôle commande, électronique...).

Dans la suite de ce chapitre, nous allons présenter tous les choix et les développements techniques qui ont été effectués, le contrôle des conditions expérimentales qui a été appliqué au dispositif ainsi que mon système d'acquisition et de traitement des données. Au cours de ce chapitre seront présentées deux versions du dispositif « ESCAPe » développées pendant mon projet de thèse. Les développements effectués pour la première version seront présentés dans un premier temps. Les ajustements et les nouveaux développements réalisés pour la seconde version seront expliqués dans une partie distincte. J'ai retenu ici un fort niveau de détail afin que les futurs utilisateurs du dispositif puissent disposer d'un protocole et d'informations leur permettant un usage satisfaisant.

2.2. Développement technique du dispositif

Dans cette partie, je vais décrire les différents développements réalisés pour la mise en place du dispositif ESCAPe v1 (Figure II-1). Ce dispositif a notamment servi à obtenir les résultats que nous présenterons dans le Chapitre 3.

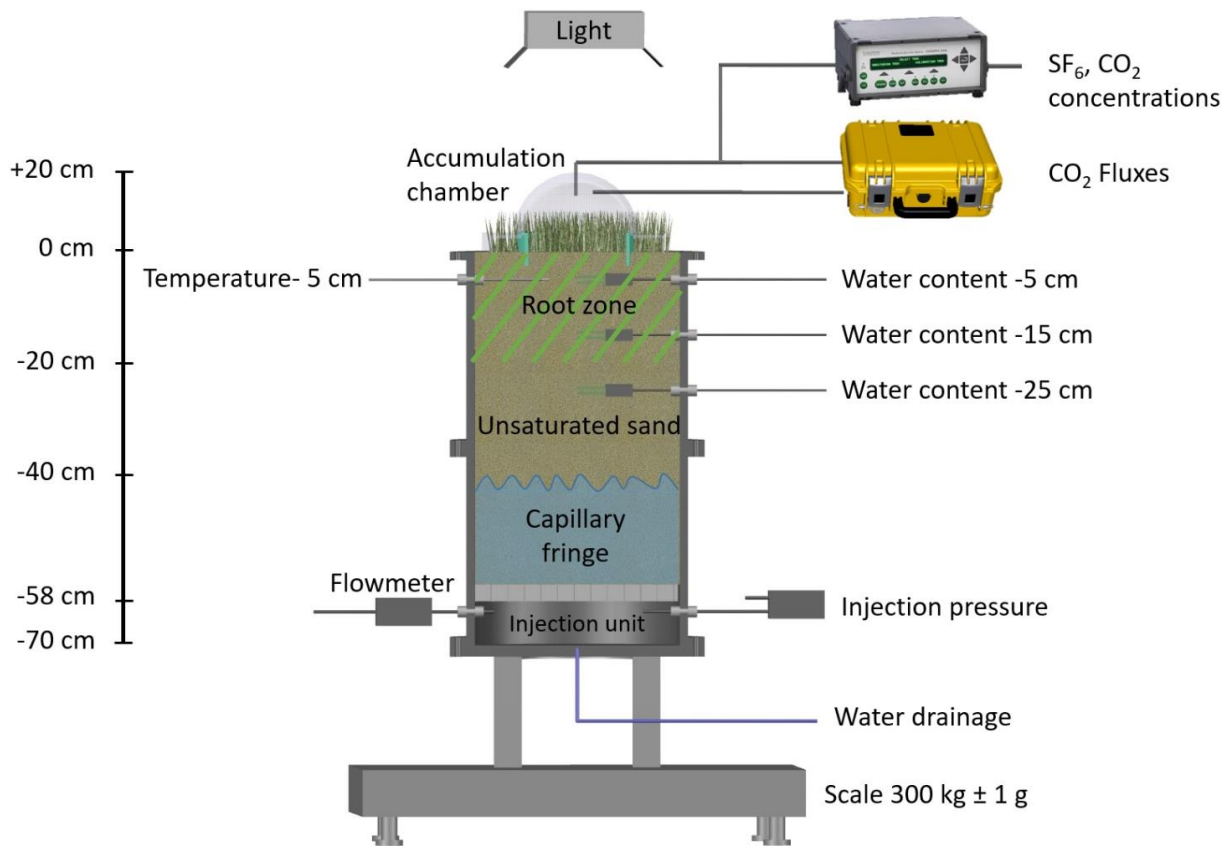


Figure II-1 : Schéma de la première version du dispositif expérimental ESCAPe v1 développé au cours du projet de thèse. Ce dispositif comprend un système d'injection contrôlé de gaz traceur à la base d'une colonne de sol non-saturé en eau possédant un couvert végétal. Une mesure de flux est effectuée à la surface via une chambre d'accumulation et deux analyseurs (LI-COR et Innova1412i).

2.1.1. Choix de la colonne

La conception de la colonne a été basée sur des critères scientifiques mais il a naturellement fallu tenir compte de certaines contraintes pratiques. L'Ecotron ayant déjà des colonnes à disposition provenant de leurs précédentes activités, nous avons décidé de partir sur ces mêmes colonnes et de les adapter à nos objectifs. Ces colonnes sont construites à partir d'un tube en polyéthylène haute densité (PEHD). Ce matériau possède de nombreuses propriétés physico-chimiques utiles : (i) bonne résistance chimique aux acides, solvants organiques, effluent légèrement radioactifs, (ii) bonne résistance thermique, (iii) faible conductivité thermique, (iv) bon isolant électrique. Ces caractéristiques ainsi que sa légèreté (comparé à de l'acier ou de l'inox) font de ce matériau un bon choix pour nos études.

Les colonnes couramment utilisées à l'Ecotron IleDeFrance sont modulables (Figure II-2), avec la possibilité d'assembler plusieurs sections de tubes de 36 cm de haut (et 36,5 cm de diamètre interne) pour former une colonne de la hauteur désirée. Les sections peuvent être solidarisiées entre elles grâce à des vis et un joint plat en élastomère (EPDM, éthylène-propylène-diène monomère) afin de garantir

l'étanchéité à l'eau et au gaz. Le fond est fermé grâce à un plateau en PEHD, un joint plat EPDM et des boulons (comme pour l'assemblage entre deux sections). Chaque section a aussi été conçue pour pouvoir insérer jusqu'à 12 capteurs à l'aide de trous taraudés de 12 mm de diamètre. Ces trous sont répartis latéralement en deux groupes de six sur un même côté du tube PEHD. Chaque fond possède un trou central de même dimension pour évacuer l'eau ou le gaz à la base de la colonne (Figure II-2).

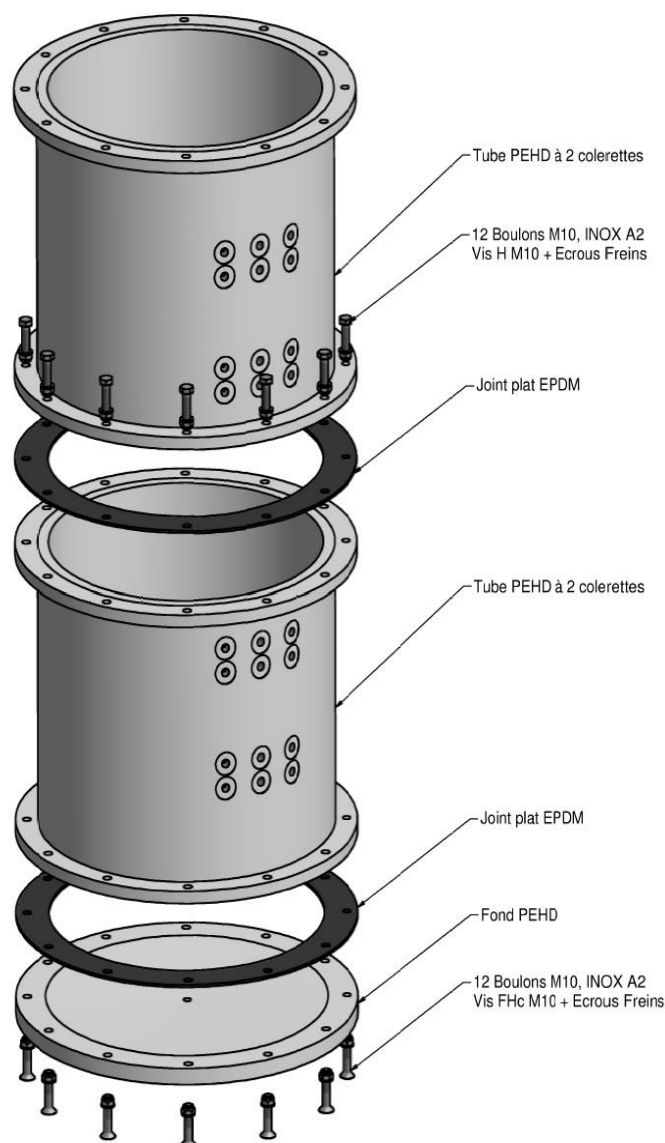


Figure II-2 : Vue éclatée de la colonne utilisée couramment à l'Ecotron. Chaque section de tube en PEHD fait 36 cm de haut pour 36,5 cm de diamètre interne et est équipée de brides de serrage en PEHD. Chaque section possède latéralement 12 trous de dimension 12 mm pour permettre l'insertion de capteurs. Les sections peuvent être fixées entre elles de façon étanche grâce à des joints plats en EPDM serrés dans des brides par 12 boulons.

Les dimensions de la colonne ont été ajustées à nos besoins expérimentaux. Tout d'abord, nous avons choisi de travailler avec des colonnes à l'échelle métrique afin de limiter les effets de bords par rapport au diamètre. La colonne a été placée par la suite dans une cellule climatique qui a un volume de 13m³,

avec tous les éléments nécessaires à son instrumentation. L'encombrement du dispositif (colonne + instrumentation) est donc une contrainte qu'il a fallu prendre en compte, ce qui a conduit à limiter la taille de la colonne utilisée. Nous avons donc travaillé avec des colonnes en PEHD de 72 cm de hauteur et de 36,5 cm de diamètre. Les premiers développements et tests de validité ont donc été effectués avec l'assemblage de deux sections décrites précédemment.

Une fois la taille de la colonne validée, cette configuration en deux sections de tube assemblées, le nombre de trous latéraux et leur répartition sont apparus comme des problèmes pour l'étanchéité de la colonne. Afin de limiter les risques de fuites nous avons donc conçu une nouvelle colonne en une seule section de tube de 70 cm de haut et 36,5 cm de diamètre. À la place des 24 trous présents initialement sur les 2 sections de tubes, nous avons choisi de réduire le nombre de trous au strict nécessaire pour nos expériences, soit 14 trous. Les trous ont été répartis hélicoïdalement le long de la colonne afin de limiter l'hétérogénéité induite dans la colonne par le déploiement des capteurs. Nous avons, de plus, choisi d'ajouter des brides métalliques au fond de la colonne permettant une meilleure répartition des forces le long de la bride en PEHD lors du serrage du fond de la colonne. Ces brides évitent de déformer le joint ou la bride en PEHD au niveau des vis suite à un éventuel serrage trop important. À ce sujet, je recommande l'usage d'une clef dynamométrique pour garantir un serrage équilibré sur chaque vis.

2.1.2. Garantie de l'étanchéité des colonnes

Notre étude nécessite des niveaux élevés d'étanchéité aux gaz et à l'eau. L'injection du gaz se faisant par advection, le système doit, en outre, être étanche à une légère surpression.

Le dispositif possède trois zones à risque pour l'étanchéité qu'il faut traiter avec une attention particulière : (i) la jonction fond – colonne, (ii) l'insertion des capteurs le long de la colonne ainsi que (iii) les connexions gaz entre chaque élément de la chaîne expérimentale (de la bouteille de gaz servant de source jusqu'à l'analyseur pour la mesure de flux).

Comme nous l'avons indiqué, le fond est fixé à la colonne grâce à un joint plat EPDM, des boulons et des plaques en métal pour un serrage homogène sur l'ensemble de la bride. Par précaution supplémentaire, j'ai choisi d'ajouter de la graisse à vide au niveau du joint préalablement nettoyé à l'éthanol. Cette précaution s'est avérée nécessaire au cours des différents tests car elle permet d'éviter des fuites minimales pouvant être associées à une faible déformation du joint au cours du serrage.

Concernant tous les connecteurs utilisés, que ce soit pour raccorder les tubes de gaz ainsi que pour l'insertion des capteurs, j'ai choisi d'utiliser les raccords Swagelok® à double-bagues (Figure II-3). Ce système garantit un sertissage étanche aux gaz (et au liquide) aussi bien sur du plastique que sur de l'inox.

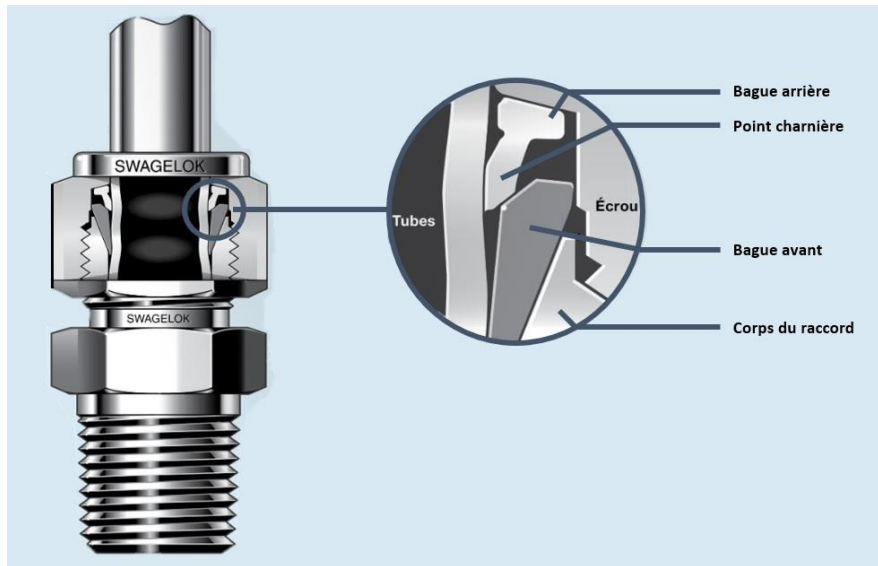


Figure II-3 : Coupe transversale d'un écrou à double-bague Swagelok® garantissant une étanchéité importante à l'eau et au gaz. Lors du serrage de l'écrou, la bague avant est sertie sur le tube et forme un joint primaire. La bague arrière, qui pousse sur la bague avant, garantit l'étanchéité sur le tube. D'après le catalogue Swagelok®.

Pour l'insertion des capteurs, nous avons inséré des passe-cloisons de filetages M12 pour passer au travers des parois de la colonne. Un joint plat en caoutchouc a été préalablement placé afin de serrer les passe-cloisons en toute étanchéité contre la colonne. Ici aussi, le serrage doit être contrôlé car il peut déformer le joint plat en caoutchouc et occasionner des fuites. Là encore, l'ajout de graisse est recommandé. Les passe-cloisons d'ouverture 6 mm de diamètre interne permettent la mise en place des câbles des capteurs insérés dans la colonne (température, humidité). Les diamètres des gaines électriques des capteurs ne sont pas standardisés et font généralement moins de 6 mm. Pour pouvoir serrer les écrous Swagelok® de façon étanche sur les gaines, j'ai localement ajouté de l'épaisseur grâce à de la gaine thermo-rétractable. Cette adaptation m'a permis de garantir le meilleur sertissage des écrous double-bagues sur les gaines électriques des capteurs (Figure II-4). Toutes les connexions gaz en amont ou en aval des colonnes ont été réalisées avec des raccords Swagelok® et du tube flexible en polytétrafluoroéthylène (PTFE) de 6 mm de diamètre externe, 4 mm interne.

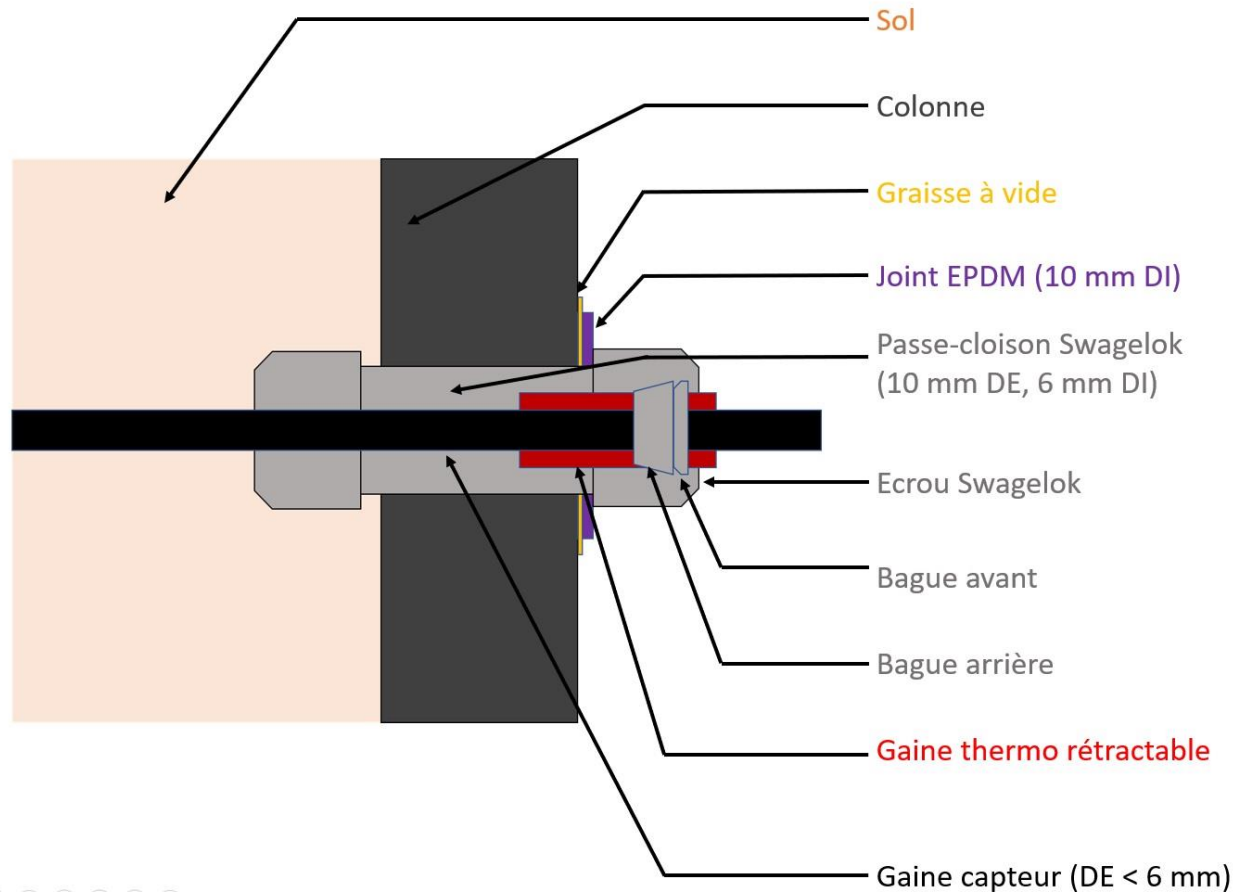


Figure II-4 : Coupe transversale de la paroi d'une colonne au niveau d'une insertion de capteur. Ce montage est nécessaire pour faire passer la gaine électrique du capteur à travers la paroi de la colonne de manière étanche. Les différents éléments garantissant l'étanchéité y sont représentés.

La bonne étanchéité étant un critère majeur pour la réussite des expériences effectuées avec le dispositif, il est impératif d'être vigilant à chaque étape de la mise en place. Pour cela, avant chaque expérience, l'intégralité des raccords, vis et joints a été démontée, nettoyée et remontée. Ensuite, il est impératif de tester l'étanchéité. Pour cela, deux niveaux de contrôles sont possibles. S'il n'est pas possible de fermer l'autre extrémité de la colonne, je conseille d'abord de la remplir avec de l'eau pour observer si des fuites ont lieu au niveau des zones à risque (raccords, jonction fond-colonne). La colonne d'eau génère une surpression qui est supérieure à la pression que j'imposais durant mes expériences. Si un deuxième fond est disponible, il est aussi possible de fermer la colonne des deux côtés et de réaliser un test d'étanchéité en injectant un traceur comme de l'air zéro ($N_2 + O_2$) dans la colonne tout en mesurant : soit (i) l'évolution du traceur au cours du temps en connectant un analyseur à la colonne (dans le cas de l'air zéro, on observe la décroissance de la teneur en CO_2), (ii) soit l'évolution de la pression au cours du temps si la colonne se trouve en surpression.

La première option ne nécessite pas forcément d'être en surpression. Si la concentration du traceur dans la colonne reste constante alors l'étanchéité est validée. Cependant il faut faire attention à la

manière dont l'analyseur est utilisé, comme j'en ai fait l'expérience. Dans notre cas, nous avons réalisé ce test avec du SF₆. L'analyseur permettant les mesures de concentration était connecté à la colonne en série, en entrée et en sortie. Une décroissance du signal a été observée, traduisant donc la présence d'une fuite (encadrée en pointillé de la Figure II-5.A). Cependant, après de nombreuses vérifications, il s'avérait que la fuite ne provenait pas de la colonne, mais de l'analyseur lui-même. En effet, le circuit de circulation du gaz échantillonné dans l'instrument n'était pas parfaitement étanche.

Pour la seconde option, le suivi de la pression permet de valider l'étanchéité sans traceur (Figure II-5.B). Cependant il faut faire attention à toutes mauvaises interprétations pouvant être associées à des variations de pression barométrique ou de température importantes pendant le test. Les variations de pression ou de température ambiantes peuvent exercer des contraintes sur la colonne et donc moduler la pression à l'intérieur selon la précision du capteur utilisé. De ce fait, il est recommandé de connecter à la colonne un capteur de pression différentielle dans le meilleur des cas (mesure de la différence entre la pression de la colonne et la pression atmosphérique) bien qu'une mesure de pression avec un capteur connecté à la colonne et un autre mesurant l'atmosphère peuvent suffire (bien intercomparer les deux capteurs à l'atmosphère avant).

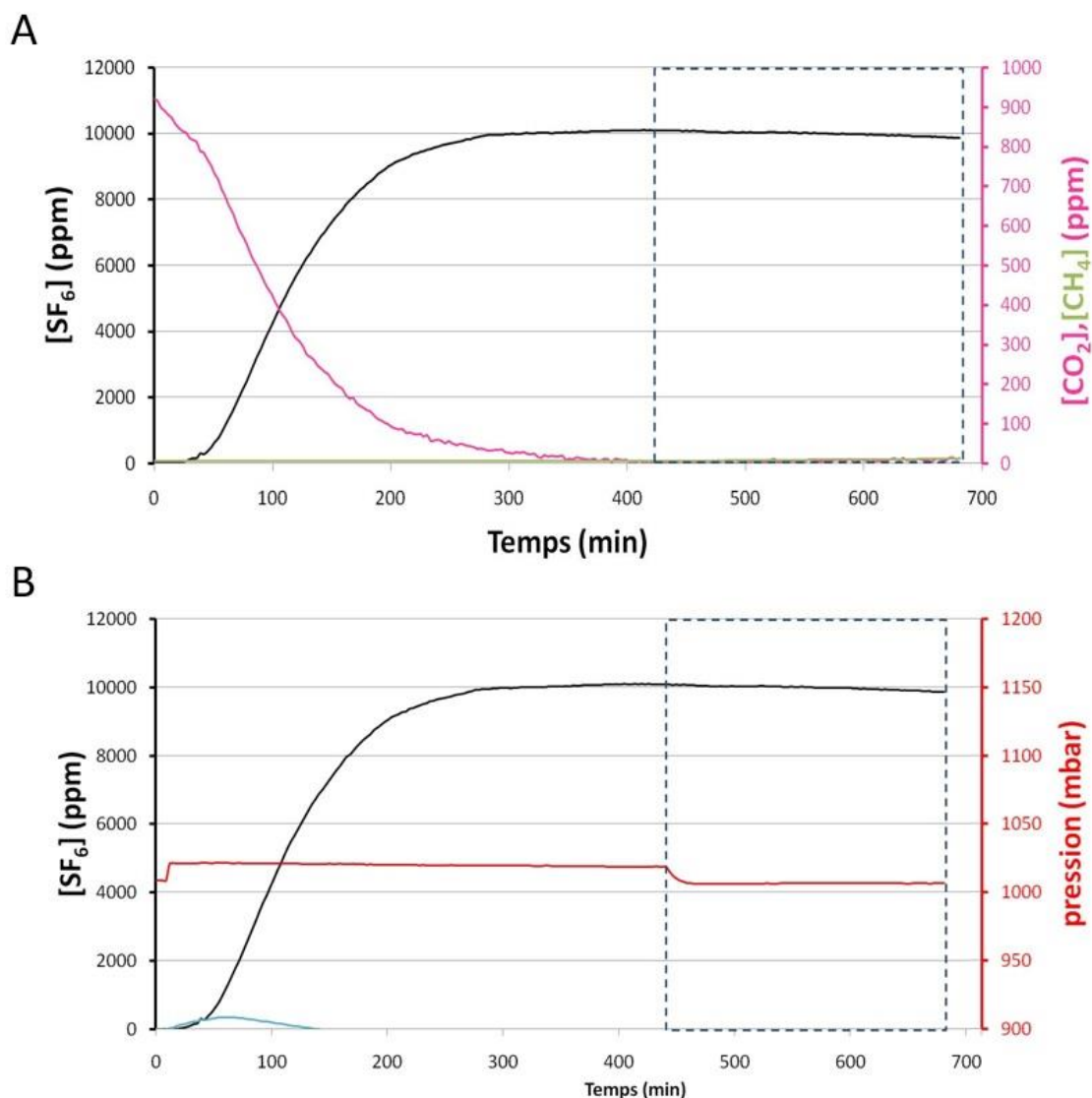


Figure II-5 : Exemple d'un test d'étanchéité réalisé sur les premières colonnes (identiques au modèle de la Figure II-2) équipées des raccords Swagelok®, d'un analyseur Innoval412i mesurant les concentrations de SF_6 , CO_2 et CH_4 ainsi que d'un capteur de pression absolu. Les figures A et B présentent le test d'étanchéité réalisé respectivement sur la concentration des différents traceurs et la pression. De 0 à 10 minutes la colonne est à son état initial. Après 10 minutes et jusque 420 minutes, du SF_6 à 10 000 ppm dans du N_2 est injecté dans la colonne. Pendant cette période la concentration en SF_6 augmente jusqu'à être constante à 10 000ppm, inversement pour le CO_2 et le CH_4 qui tendent vers 0 ppm (A). La pression, quant à elle, augmente et se stabilise instantanément, mettant la colonne en légère surpression de 10 mbar par rapport à l'atmosphère (B). Après 420 minutes, l'injection est coupée pour que l'analyseur mesure l'évolution des différents paramètres avec le temps. Une légère décroissance est visible sur la courbe de SF_6 au cours du temps (A). La pression retombe à la valeur atmosphérique après 20 minutes d'analyse (B). Ces observations indiquent la présence d'une fuite. Ici la fuite était due à l'analyseur qui avait des joints détériorés au niveau de sa pompe d'échantillonnage.

Enfin, dans les deux cas, je recommande la pulvérisation de liquide de détection de fuite au niveau des raccords, que ce soit en remplissant la colonne d'eau ou en injectant un gaz. Cette méthode plus grossière que les mesures de concentration ou de pression permet de visualiser très rapidement où les fuites ont lieu lorsqu'il y en a et si elles sont d'intensité suffisante pour déclencher des bulles. Cette méthode est nécessaire pour savoir à quel endroit il faut agir (Figure II-6).

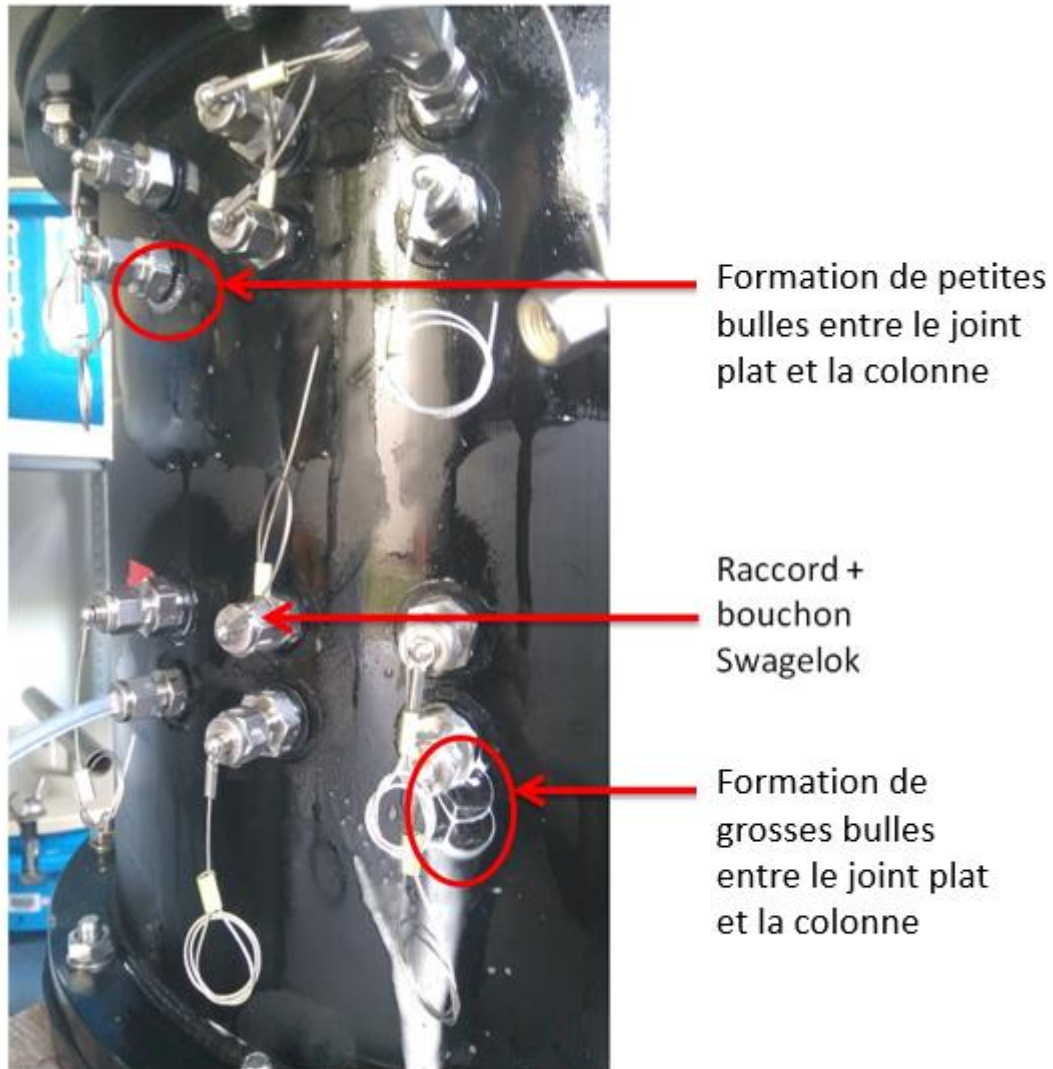


Figure II-6 : Mise en évidence de fuite (cercle rouge) grâce au liquide de détection de fuite. La photo a été prise au cours des premiers tests d'étanchéité sur les mêmes colonnes que sur la Figure II-2.

2.1.3. Injection de traceur à faible gradient de pression : Débit constant ou pression constante

En vue de simuler à petite échelle une source de gaz en profondeur, nous avons choisi d'injecter le gaz dans un volume d'injection dédié situé à la base de la colonne. Cette méthode d'injection permet de mieux homogénéiser les gaz injectés et de percoler de manière plus uniforme à la base de la colonne de sol. Ce volume occupe une section de tube de 14 cm de hauteur (Figure II-1). Pour créer ce volume, j'ai mis au point un support permettant de retenir le sol au-dessus du volume d'injection. Ce support est composé d'une section de tube PVC de 20 cm de diamètre et 14 cm de haut que j'ai ajouré de plusieurs trous de 4 cm de diamètres. Un caillebotis usiné de diamètres 36,5 cm est inséré dans le tube PVC (Figure II-7A et 7B). Le tout est recouvert d'un géotextile pris en sandwich entre deux grilles de silicone de maille 1 mm (Figure II-7C). Ce dispositif permet à la fois de : (i) contenir le sol au-dessus d'une source de gaz, (ii) laisser le gaz injecté percoler dans la colonne de sol sur toute la surface du matériau poreux et (iii) laisser drainer l'eau de la colonne de sol dans l'unité d'injection.

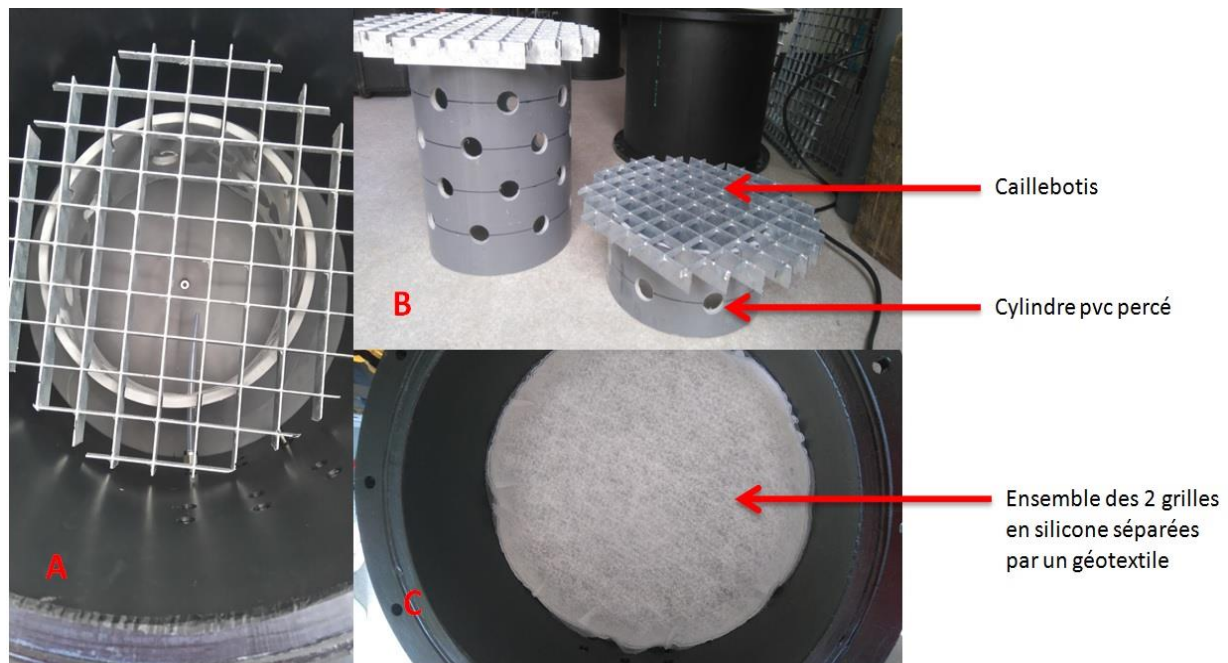


Figure II-7 : Mise en place du support délimitant l'unité d'injection et le reste de la colonne. Sur la photo A se trouve le caillebotis sur un support PVC en place dans la colonne. Sur la photo B figure le caillebotis et le support PVC usiné pour permettre une homogénéisation du gaz dans le volume d'injection. Sur la photo C se trouve l'ensemble formé par le géotextile et les grilles en silicone une fois en place, garantissant la séparation entre unité d'injection et le sol venant peser au-dessus.

Il est possible d'imposer un gradient de pression entre l'unité d'injection et l'atmosphère avec différents niveaux de contrôle. Pour l'advection, nous avons à disposition deux types de contrôle : (i) débit d'injection constant ou (ii) gradient de pression constant.

Dans le premier cas, un simple débitmètre régulateur suffit. Une fois le débit volumique de consigne imposé, le système va s'adapter pour délivrer de manière constante le bon débit. Pour cette méthode, j'ai utilisé les débitmètres massiques thermiques régulateurs BROOKS SLA5850. Selon la gamme que nous possédons, il est possible d'injecter de 3 mL à 50 L par minute. L'avantage de ce type de contrôle est qu'il ne nécessite qu'un seul instrument facile à se procurer et rapide à mettre en place. Cependant, la pression dans l'unité d'injection ne sera pas contrôlée, il faut donc à minima la mesurer. Parce que je travaillais à faible gradient de pression, la plus haute gamme de débit que j'ai utilisée était 1 litre par minute. La pression d'injection dans l'unité dédiée est dépendante à la fois de la perméabilité intrinsèque du milieu poreux si ce dernier est sec et de la pression d'entrée d'air associé à sa capacité à retenir l'eau par capillarité (*cf.* équation 1.7 du Chapitre 1). En effet, dans le cas d'un milieu poreux non saturé en eau, une frange capillaire va se développer au-dessus du volume d'injection, ce qui va ajouter une charge supplémentaire qu'il faudra prendre en compte. Pour que le gaz injecté puisse franchir cette frange capillaire, la pression dans le volume d'injection doit augmenter jusqu'à atteindre la pression d'entrée d'air. Ceci est à prendre en compte lorsque les conditions expérimentales modifient la hauteur de la frange capillaire (par apport ou perte d'eau dans le système).

C'est pour s'affranchir de ces variations intrinsèques au milieu poreux qu'il nous est paru préférable de pouvoir contrôler une injection à gradient de pression constant, à l'aide d'un système de régulation de pression en boucle fermée. Pour cela nous avons fait développer un boîtier de régulation composé d'un débitmètre régulateur BROOK SLA5850 asservi par un capteur de pression KELLER à l'aide d'un régulateur PID (proportionnel, intégral, dérivé). Grâce à ce dispositif, il est possible d'imposer une pression de consigne qui sera maintenue constante au cours du temps. Pour ce faire, le PID va analyser les signaux envoyés par le capteur de pression afin d'envoyer un signal approprié au débitmètre régulateur pour qu'il ajuste son débit d'injection (Figure II-8). Plus simplement, si la pression dans le volume d'injection est supérieure à la pression de consigne alors le débitmètre va réduire/stopper son injection. Inversement si la pression dans le volume est plus faible que la pression de consigne alors le PID va augmenter l'ouverture du débitmètre régulateur afin d'apporter plus de gaz. Grâce à cette boucle, le gradient de pression entre la base de la colonne de sol et l'atmosphère sera constant au cours du temps.

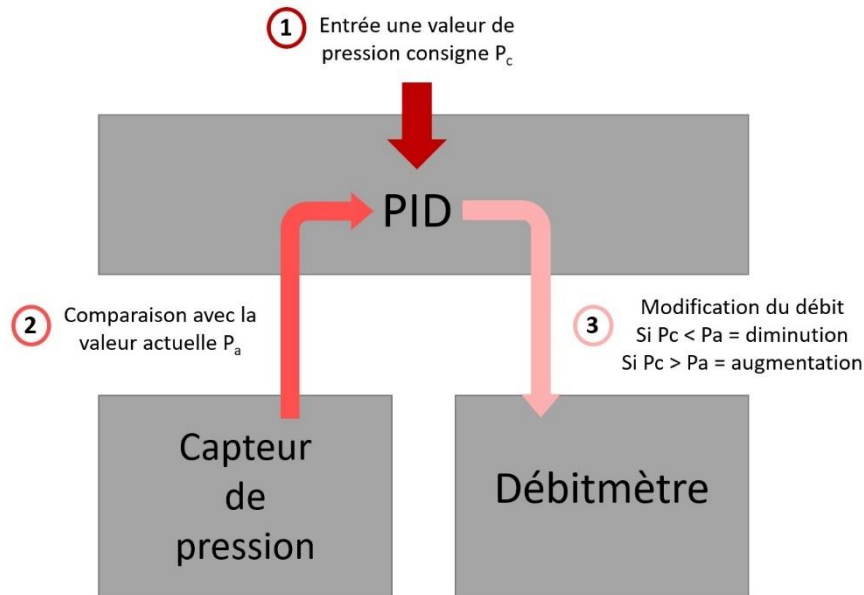


Figure II-8 : Explication de la boucle de régulation de la pression d'injection en fonction du débit grâce au dispositif PID. Cette régulation s'effectue en trois étapes.

Le maintien au cours du temps du gradient de pression entre la base de la colonne de sol et l'atmosphère est un aspect particulièrement intéressant si l'expérience est couplée à de la modélisation car cela permet d'avoir des conditions aux limites simples à implémenter dans le code. Cette régulation permet également de s'affranchir des variations de la pression barométrique et de ne pas avoir à contrôler cette pression dans la cellule climatique, dans le cas où l'on souhaite supprimer ces effets pour en mettre d'autres en évidence. Cependant, cette régulation a ses limites si les propriétés du sol étudié varient de manière trop brutale dans le temps (drainage, apport d'eau, modification des paramètres du milieu par tassement ou développement racinaire). En effet, pour permettre la régulation, il est impératif de régler au préalable les différents paramètres du PID. Cette configuration des paramètres se fait donc au cas par cas et s'avère difficile à ajuster si le système varie dans le temps au cours de l'expérience. Par exemple, si nous effectuons un réglage sur une colonne sèche, la régulation risque de ne plus être opérationnelle si dans la suite de l'expérience nous apportons une importante quantité d'eau. Cet apport d'eau générant une non-saturation de la colonne va modifier les paramètres intrinsèques du milieu. La percolation du gaz ne se fera plus dans les mêmes conditions de débit-pression que dans le cas sec. Les paramètres d'ajustements configurés en début d'expériences seront donc obsolètes car ils ne pourront plus garantir le bon temps de réponse associé au système. Je recommande d'utiliser ce système d'injection à gradient de pression constant uniquement sur des systèmes à l'équilibre durant toute l'expérience (colonne de sol sec, colonne de sol non-saturé à profil de saturation constant).

Il est aussi possible de réaliser une expérience de percolation sous gradient de diffusion grâce au volume d'injection que nous avons développé. Le but est alors de maintenir une concentration en gaz traceur constante dans le volume d'injection, sans aucune surpression. Pour cela, il suffit d'ouvrir une vanne du volume dédié sur l'extérieur. Ainsi, nous pouvons alimenter l'unité d'injection en flux continu et constant au cours du temps pour maintenir la concentration en même temps que la diffusion se fait dans la colonne, le surplus de gaz étant évacué par le point de sortie. Je conseille d'équiper le point de sortie d'un tube suffisamment long afin d'évacuer le surplus vers l'extérieur et non pas dans la cellule climatique. Cette précaution permet d'éviter deux problèmes liés à cette option de percolation : (i) l'accumulation du traceur en excès dans l'atmosphère de la cellule, pouvant modifier les gradients de concentration par le haut, (ii) la dilution du traceur dans l'unité d'injection liée à un contre-flux d'air atmosphérique.

Au cours de nos expériences nous avons injecté, dans un premier temps, du SF₆ à 2000 ou 10000 ppm dans de l'air zéro (N₂ + O₂) pour nos tests sous gradient de pression. Un test sous gradient de concentration (diffusion) avec du SF₆ à 10,000ppm a été réalisé, mais aucun flux de gaz n'a pu être mesuré en surface. Ces résultats sont présentés dans le Chapitre 3. Par la suite afin de comparer le comportement du SF₆ et du Xe nous avons injecté le mélange gazeux suivant : 2000 ppm de Xe, 2000 ppm de SF₆, 400 ppm de CO₂, 0.9 % d'Ar, 20,9 % d'O₂ le reste en N₂. Les résultats de cette dernière injection ne seront pas présentés par la suite pour cause de mauvaises calibrations sur l'analyseur de gaz.

2.1.4. Mesure des flux de gaz traceurs à la surface

2.1.4.1. Choix des traceurs : CO₂, SF₆, Xe

Observer distinctement les différents processus qu'ils soient physiques, chimiques et/ou biologiques implique de bien choisir le ou les gaz traceur(s). Pour cela, deux aspects sont à prendre en compte : (i) les propriétés du traceur que nous voulons injecter, (ii) les analyseurs à disposition pour effectuer les mesures de gaz. Un traceur peut avoir différentes origines en fonction du processus étudié. Comme présenté dans le Chapitre 1, un traceur peut être ajouté artificiellement afin d'observer sa dynamique indépendamment de toute production naturelle dans le sol. À l'inverse, on peut utiliser des gaz présents naturellement dans le système ou impliqués exclusivement dans certains des processus d'intérêt. Si ce marqueur peut avoir plusieurs sources différentes (exemple du CO₂ pouvant provenir de la respiration des plantes, de la respiration des micro-organismes, de la décarbonatation des

minéraux, d'un réservoir de séquestration de CO₂), il est souvent utile de réaliser des mesures de bilan de masses, d'étudier des co-traceurs ou encore d'utiliser le marquage isotopique.

Le traceur idéal dans notre expérience est un gaz n'existant pas naturellement dans le milieu poreux que nous voulons étudier et qui serait le plus inerte possible, d'un point de vue chimique et biologique. Le SF₆ est un traceur intéressant qui est souvent utilisé. Il se mesure facilement et sa teneur dans l'atmosphère est très faible. L'avantage du SF₆ pour la problématique de la détection des essais nucléaires souterrains réside dans le fait qu'il a des caractéristiques très similaires au xénon, qui est le gaz traceur recherché sur le terrain lors des campagnes de détection (voir Chapitre I-A). Non seulement sa masse molaire est proche de celle du xénon (146 g.mol⁻¹ pour le SF₆, 131 g.mol⁻¹ pour le Xe) mais de plus, c'est un gaz considéré comme inerte, avec un faible potentiel de réaction, comme les gaz rares.

De nombreux processus biogéochimiques à l'œuvre dans les sols mettent en jeu le CO₂. C'est pour cela que nous avons aussi décidé de le suivre comme traceur naturel « secondaire », sans l'injecter. La simple surveillance de l'évolution du CO₂ suffit par exemple à nous donner des informations sur le cycle diurne du métabolisme, comme je le décrirai dans le chapitre suivant.

2.1.4.2. Choix des analyseurs

2.1.4.2.1. Pour la première version : analyseur infrarouge et spectromètre photoacoustique

Une fois les deux gaz traceurs choisis, vient le choix de l'analyseur. Dans le cas d'une mesure de flux, il est impératif d'avoir une chambre d'accumulation « open-dynamic » comme indiqué dans le Chapitre 1. Pour cela, j'ai utilisé des chambres d'accumulation LI-COR 8104C transparentes permettant de laisser passer les rayonnements au travers de la chambre (Figure II-9).

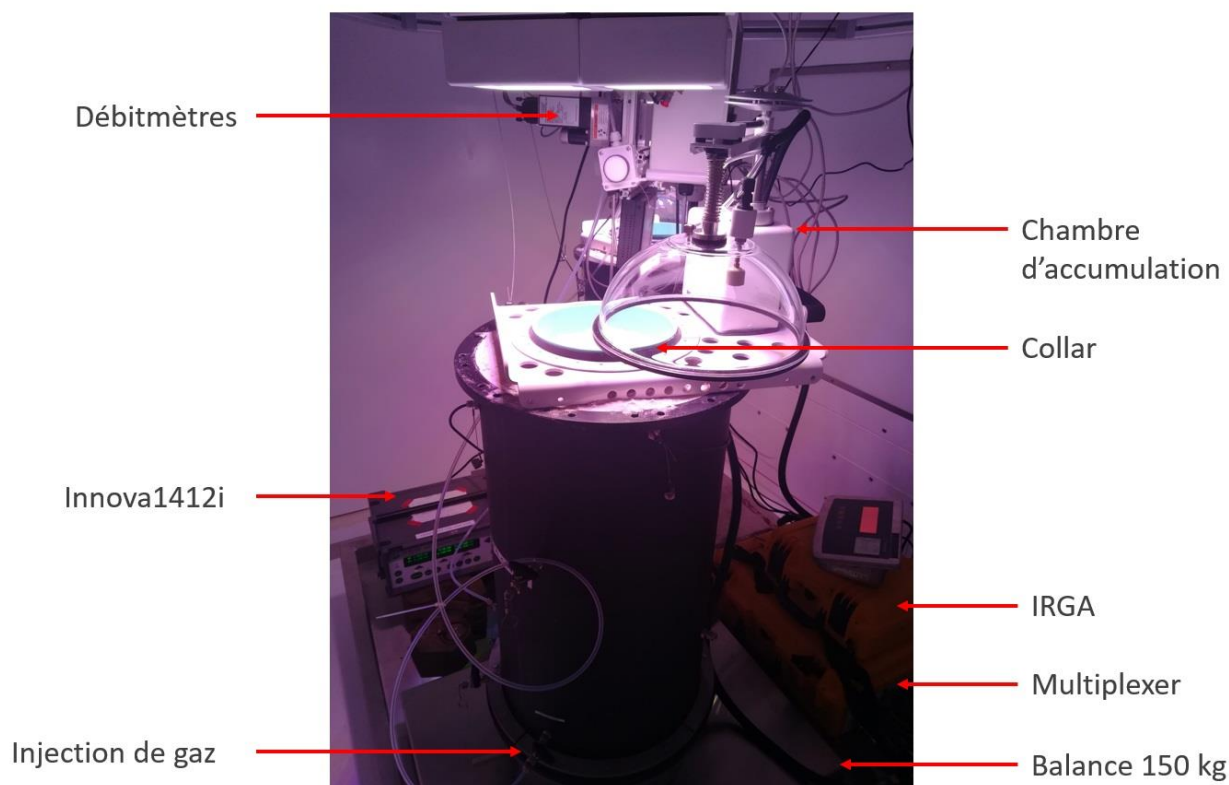


Figure II-9 : Mise en place d'une chambre d'accumulation sur une colonne de sol. Chaque chambre d'accumulation est connectée à un multiplexeur permettant d'alterner les mesures entre l'une et l'autre colonne. Le tube reliant le multiplexeur à l'analyseur infrarouge (IRGA), mesurant le flux de CO_2 , est équipé d'un raccord en « T ». Ce raccord permet d'effectuer en simultanée des mesures de concentration de SF_6 avec le spectromètre photoacoustique Innova1412i.

La chambre d'accumulation permet de mesurer les flux de CO_2 et plus précisément leurs variations au cours des cycles de photosynthèse et de respiration. Chaque colonne est équipée d'une chambre d'accumulation. Les deux chambres d'accumulation sont connectées à un multiplexeur qui est lui-même relié à un analyseur de gaz à infra-rouge (IRGA) mesurant la concentration en CO_2 dans chacune des deux chambres. Cette chaîne d'instruments permet à la fois de réaliser les mesures ainsi que piloter l'ouverture et la fermeture des chambres d'accumulation. Parce qu'il n'y a qu'un seul IRGA, les mesures sont alternées entre chacune des deux chambres. En effet lorsqu'une chambre d'accumulation est ouverte pour le rinçage, aucune mesure n'est effectuée par l'IRGA. Pendant ce temps, l'autre chambre d'accumulation est fermée pour réaliser la mesure. L'analyseur de gaz à Infra Rouge permet de mesurer les concentrations de CO_2 toutes les secondes. Ces mesures associées à des mesures de température, de pression et d'humidité permettent *in fine* de calculer un flux de CO_2 . L'IRGA ne pouvant mesurer que le CO_2 , il est nécessaire d'ajouter un autre instrument à la chaîne de

mesure pour mesurer les concentrations en SF₆. J'ai utilisé pour cela un spectromètre photo-acoustique Innova1412i. Cet instrument permet la mesure de différents gaz (molécules asymétriques) à l'aide de filtres sélectionnant la longueur d'onde d'excitation. L'Innova1412i utilisé dans cette expérience est équipé de filtres permettant la mesure de SF₆, CO₂, CH₄, Fréon et vapeur d'eau.

Pour coupler l'IRGA au spectromètre photo-acoustique, il existe deux possibilités : en série ou en dérivation. La première option consiste à connecter le second analyseur à la sortie du premier. Ce montage n'est pas optimal car le second analyseur peut être affecté par les performances du premier, que ce soit en termes de débit d'échantillonnage ou de qualité de mesure si une fuite venait à survenir sur le premier analyseur. Le second montage semble le plus approprié. En effet, il suffit de connecter un raccord en « T » proche de la chambre d'accumulation (qui est le volume à échantillonner) et d'effectuer des mesures sur chacun des analyseurs indépendamment l'un de l'autre (Figure II-9). Néanmoins, il faut noter que l'IRGA fourni par LI-COR agit en boucle fermée (prélève le gaz dans la chambre d'accumulation et le restitue à la chambre en flux continu). Ce procédé évite toute dépression pouvant être créée par une pompe d'échantillonnage trop puissante. Concernant l'analyseur de SF₆, ce dernier évacue l'air analysé dans l'atmosphère au lieu de le réinjecter dans la chambre d'accumulation. Il est aussi important de faire attention aux débits de prélèvement nécessaires aux analyseurs. L'Innova1412i prélève un débit de 120 mL.min⁻¹ alors que l'IRGA prélève seulement 20 mL.min⁻¹. Bien que cela ne génère pas de dépression dans la chambre d'accumulation grâce au « vent » (garantissant un équilibre avec la pression atmosphérique, voir Chapitre 1), un échantillonnage trop puissant pourrait cependant amener à faire entrer de l'air extérieur dans la cloche. Durant les premiers tests de validation sur du sable sec et au cours des expériences, le flux mesuré à la surface correspondait au flux de gaz imposé à la base. Il est fort probable que le régime d'advection permette de s'affranchir de la contrainte que peut représenter le débit d'échantillonnage. Cependant, je recommande fortement de faire attention à ces caractéristiques dans le cadre d'un régime diffusif. Pour les principes de fonctionnement des deux analyseurs, le lecteur peut se référer aux [Annexe E.3](#) et [E.4](#) de la thèse de Sophie Guillon (Guillon, 2013).

Le système de dérivation que nous avons employé permet la mesure de flux de multiples traceurs en direct et automatiquement sous la chambre d'accumulation, quel que soit l'analyseur connecté. Au cours des tests préliminaires de validation, nous avons pu comparer les mesures de flux de CO₂ obtenues par le système LI-COR (chambre d'accumulation + IRGA + logiciel dédié), dont c'est la raison d'être, avec les flux de CO₂ obtenus à partir des mesures de concentration réalisées avec l'Innova1412i (spectromètre photoacoustique seul, traitement de données développé pour l'occasion). Cette étape était nécessaire afin d'affirmer que les calculs de flux effectués avec les mesures de l'Innova1412i sont équivalents à ceux calculés par le système LI-COR, confortant ainsi les résultats

obtenus par la suite pour les flux de SF₆, pour lesquels nous ne disposerons pas de système LI-COR. Cependant, la faiblesse de l'Innova1412i réside dans l'étanchéité de ses pompes ; le pas de temps doit être suffisamment long pour ne pas fatiguer trop rapidement les joints associés au pompage. La perturbation observée dans la Figure II-5 était liée à ce défaut. De plus, j'ai choisi de ne pas multiplexer les Innova1412i dans notre expérience afin de limiter le volume à échantillonner pour cet instrument. J'ai donc travaillé avec deux Innova1412i indépendants, un pour chaque colonne. Concernant la chambre d'accumulation, des améliorations ont été planifiées et réalisées. En effet comme nous pouvons le constater, la chambre d'accumulation de diamètre 20 cm fournie par LI-COR ne recouvre que 30 % de la surface de la colonne. Au cours des expériences en présence d'un couvert végétal, il s'est avéré que le support pouvait masquer une surface trop importante du sol. Afin de laisser plus de lumière passer et permettre ainsi un meilleur développement du couvert végétal, le support de la chambre d'accumulation a été usiné de sorte à ajourer au maximum sa structure et de recouvrir le moins de surface possible (Figure II-10).

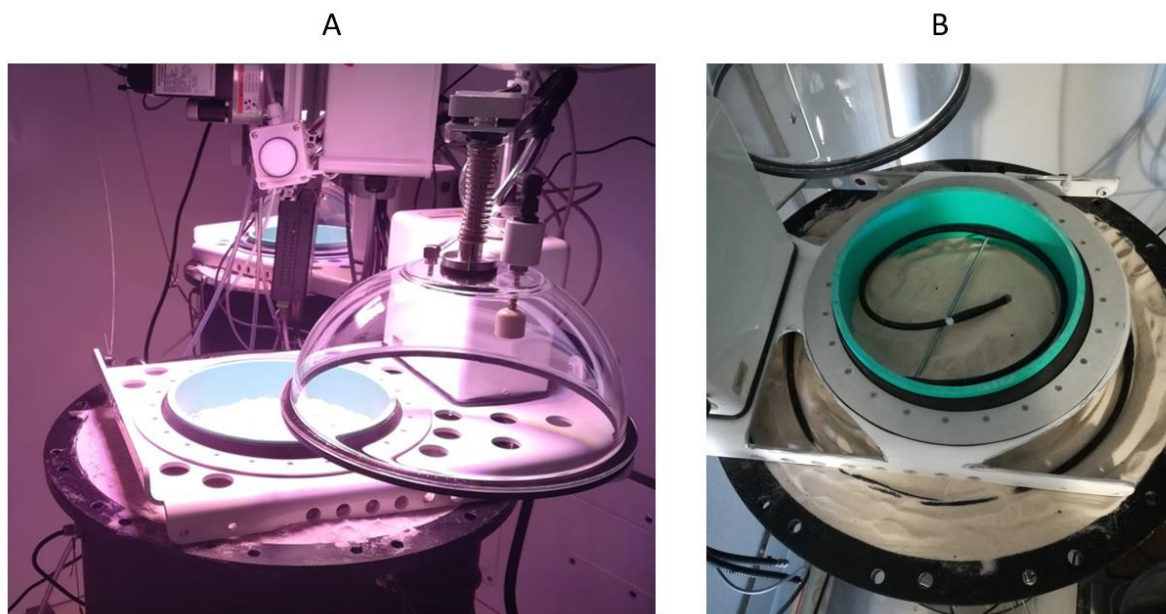


Figure II-10 : Usinage du support de chambre d'accumulation : support avant (A) et après usinage (B). L'usinage permet un meilleur éclairage de la surface de la colonne en réduisant la surface recouverte par le support et ainsi permettre un développement végétal plus important.

Pour finir, d'autres améliorations ont été pensées. La première a été de faire fabriquer des chambres sur-mesure avec un diamètre égal à celui de la colonne (soit 36,5 cm). Des chambres d'accumulation plus grandes et recouvrant ainsi toute la surface de la colonne ont été conçues pour qu'elles soient toujours utilisables avec l'automate LI-COR moyennant un nouveau support. Une autre amélioration a été réfléchié mais encore non-réalisée. Cette chambre serait, à l'inverse, de diamètre beaucoup plus petit et déplaçable, afin de pouvoir cartographier un flux en différents endroits à la surface de la

colonne, y compris au contact des parois de celle-ci. Ceci permettrait de pouvoir caractériser l'éventuelle hétérogénéité d'un flux de gaz à la surface, dans l'espace et dans le temps.

2.1.4.2.2. Pour la seconde version : Spectromètre de masse

Une seconde version du dispositif de percolation (ESCAPE v2, Figure II-11) a été développée afin de répondre à de nouvelles questions. Le principe de la première version était d'imposer une source de gaz et d'observer comment le flux sortant peut être modulé lorsqu'il traverse un sol. Des modulations du flux ont été observées, soulevant de nombreuses questions et hypothèses sur les mécanismes en jeu se déroulant à l'intérieur de la colonne. Le premier dispositif ne permettant pas le suivi des gaz à l'intérieur de la colonne, il a été décidé d'ajouter des dispositifs de prélèvement d'air à différentes profondeurs pour y mesurer les concentrations en gaz. Comme les volumes de prélèvements nécessaires au fonctionnement de l'innova1412i sont élevés, de tels prélèvements risquaient de générer des perturbations. De plus, l'innova1412i ne permet pas d'analyser toutes les espèces gazeuses d'intérêt, dont l'O₂ (molécule symétrique impliqué dans les réactions métaboliques) et les gaz rares (gaz monoatomiques). De plus, le nombre de filtres de l'innova1412i est limité à 6. Pour ces raisons, il a fallu réfléchir à de nouvelles méthodes pour analyser les gaz au sein de la colonne.

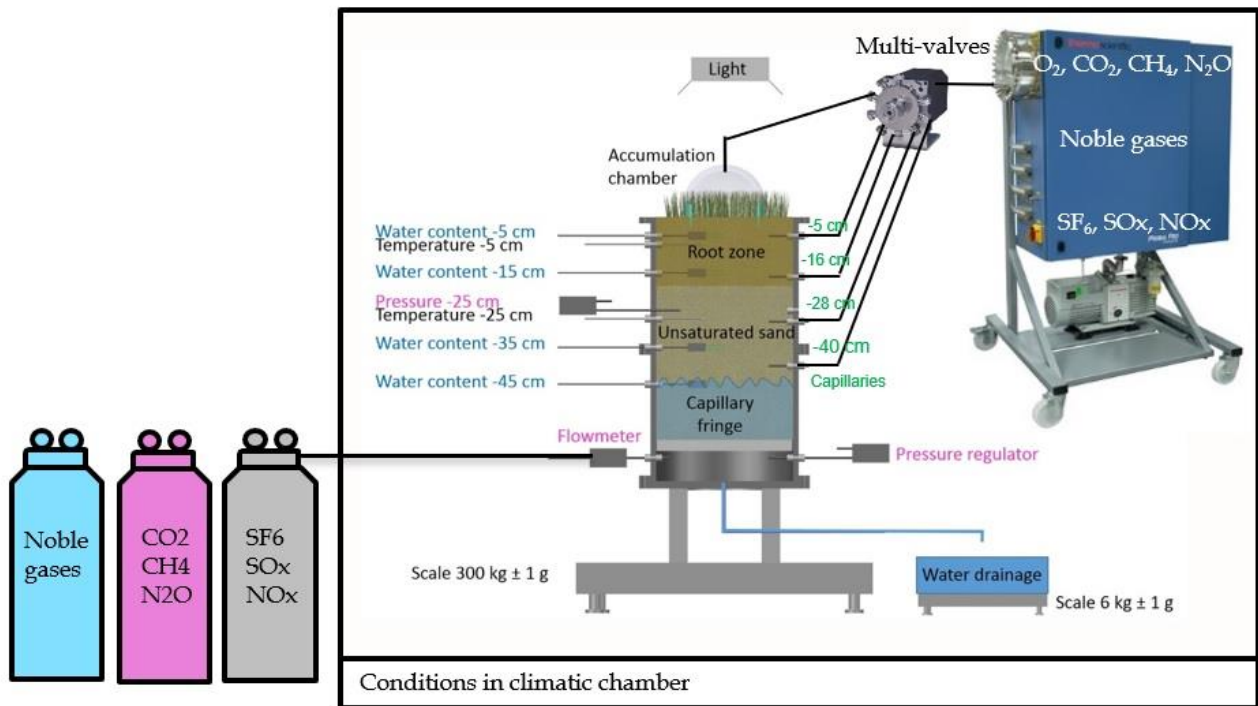


Figure II-11 : Schéma du dispositif expérimental ESCAPE v2 développé au cours du projet de thèse. Ce dispositif permet la percolation, la mesure de flux ainsi que de profils de concentration de nombreux traceurs gazeux tels que les gaz rares, l'O₂, les NO_x et les SO_x en plus des traceurs utilisés dans le dispositif ESCAPE v1. Ceci est possible grâce au spectromètre de masse à faible débit connecté à la colonne à 4 profondeurs différentes en plus de la chambre d'accumulation via une vanne multivoies. Cette nouvelle version permet aussi un bilan complet de la masse d'eau grâce à deux balances, une pour la masse totale, l'autre pour l'eau de drainage.

Afin d'optimiser le dispositif, nous avons donc décidé de réaliser à la fois des mesures d'accumulation grâce à la chambre d'accumulation LI-COR (sans son système de mesure infrarouge ni son logiciel de calcul des flux de CO₂) mais aussi de réaliser des mesures de concentration in-situ dans la colonne à différentes hauteurs. Pour ces mesures dans la colonne, nous avons choisi de remplacer l'IRGA et le spectromètre photo-acoustique par un spectromètre de masse PrimaPro (Thermo Scientific) à faible débit. Le prélèvement se fait à 4 mL.min⁻¹ ce qui réduit d'un facteur 5 les perturbations pouvant être causées par l'IRGA, et d'un facteur 30 celles pouvant être causées par l'innova1412i. Son faible débit est un atout majeur pour la précision des mesures, qu'elles soient effectuées dans la chambre d'accumulation ou le long de la colonne. Afin de limiter au maximum les perturbations associées à un échantillonnage in-situ nous avons choisi d'échantillonner uniquement à 4 points équidistants le long de la colonne. Ces points permettent de prélever du gaz depuis la frange capillaire jusqu'à la surface. Cet espacement de 18 cm entre les prélèvements permet de minimiser toutes hétérogénéités et perturbations dues à l'invasion du milieu et au pompage de gaz in situ. Avec le spectromètre de masse il est prévu de prélever au maximum 30 mL de gaz à chaque niveau d'échantillonnage. Ce

volume correspond à une sphère de milieu poreux de 2,6 cm de rayon. En prenant plus de 7 fois le rayon comme écart entre chaque point d'échantillonnage, ceci nous permet de prévenir toute perturbation entre les points de prélèvement, tout en ayant 4 points d'échantillonnage, suffisants pour caractériser un profil de concentration représentatif de toute la hauteur de la colonne.

Ce spectromètre de masse a été développé à notre demande par la société Thermo Onix (Winsford) sur la base d'un modèle existant et consommant un débit de gaz de $120 \text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$. Parce que ce spectromètre de masse ne possède qu'une seule entrée pour l'analyse des gaz, un développement technique supplémentaire a été nécessaire pour permettre la réalisation de mesures dans les deux chambres d'accumulation et le long des deux colonnes, tout en permettant l'admission de gaz pour la calibration régulière de l'instrument. Pour cela, nous avons utilisé deux vannes multivoies pilotables VALCO de 16 voies chacune. Le PrimaPro et les vannes possèdent des connecteurs gaz de type capillaire 1/16 de pouce, ce qui représentait une modification importante par rapport à notre dispositif initial qui utilisait uniquement du 6 mm. Avec deux vannes multivoies en série, nous disposons alors de 31 voies comprenant les mesures dans les cloches, les mesures le long des colonnes, les mesures atmosphériques ainsi que les mesures de calibration. Le principe de fonctionnement et les performances du spectromètre de masse PrimaPro sont détaillées dans [Guillon *et al.* \(2016\)](#).

Des capillaires en inox 1/16 de pouce ont été installés aux 4 hauteurs d'échantillonnage de la colonne, les reliant à la vanne multivoie. L'insertion des capillaires dans les passe-cloisons 6 mm se fait avec un maximum de précaution au regard de l'étanchéité. Une fois le capillaire positionné à travers le passe-cloison, l'espace entre le capillaire 1/16 de pouce et le diamètre interne du passe-cloison a été rempli de colle-mastic au silicone à l'aide d'une tige pour bien la répartir. Afin de sceller la colle-mastic au silicone (qui pourrait fluer) et d'ajouter une étanchéité supplémentaire, de la résine époxy durcissante est déposée aux deux extrémités du passe-cloison. Après 24 heures, cette résine se solidifie et devient résistante à de nombreuses contraintes thermiques et mécaniques avec un faible potentiel de réaction avec les gaz et l'eau (Figure II-12).

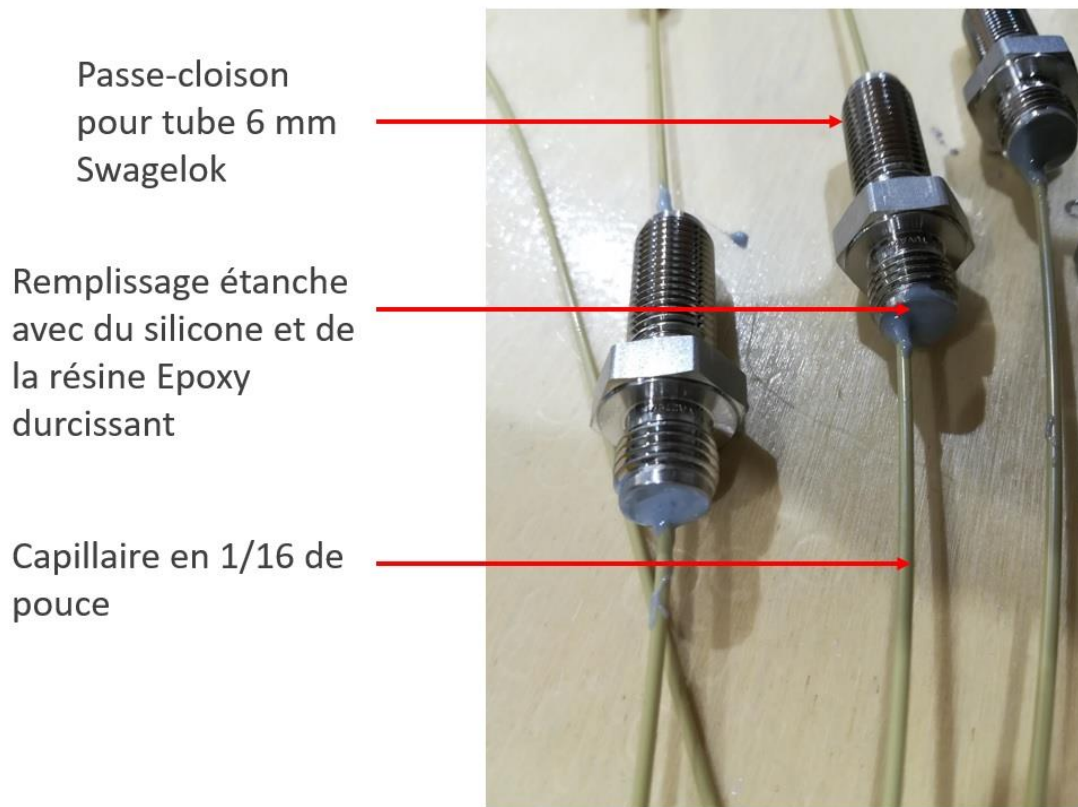


Figure II-12 : Adaptation des passe-cloisons pour tube 6 mm Swagelok® afin d'y insérer des capillaires gaz 1/16 de pouce connectés au spectromètre de masse. Les capillaires sont figés de manière étanche dans les passe-cloisons grâce à un assemblage de silicone et de résine Epoxy durcissant.

L'échantillonnage dans la colonne de sol doit se faire en toute sécurité pour les instruments de mesures. En effet, l'échantillonnage dans un sol non-saturé en eau présente deux difficultés : (i) les grains, (ii) l'eau. Il est nécessaire de réaliser un embout spécifique pour les capillaires permettant d'éviter l'intrusion d'un de ces éléments dans la chaîne de mesure. Pour cela, j'ai réalisé un embout filtrant permettant de prélever uniquement la phase gaz même en présence de la phase liquide (Figure II-13). Cette adaptation permet donc l'échantillonnage de gaz dans la frange capillaire d'un sol non-saturé. Cet embout est constitué d'un raccord droit Swagelok® permettant de le serrer de manière étanche au capillaire inox 1/16 de pouce. À l'extrémité de ce raccord se trouve un embout inox 1/8 de pouce de diamètre interne. J'ai inséré à l'intérieur de cet embout 3 capillaires souples de type Membrana PP 150/330 disposés en U. Les polymères Membrana sont des matériaux à base de cellulose permettant l'extraction d'une phase gaz sans extraction de la phase eau présente dans la zone d'échantillonnage. En plus de cette caractéristique, leur géométrie en groupe de trois est un atout majeur. L'aspiration de gaz se répartit le long de chaque tube pendant la durée de l'échantillonnage. Ceci permet de répartir le volume de sol pouvant être perturbé par l'échantillonnage ainsi que

d'aspirer de façon moyennée sur une zone, plutôt que sur un point unique. Cette disposition permet de changer le volume de milieux poreux impacté par l'échantillonnage, passant d'une sphère ponctuelle de 2.6 cm de rayon à une couche de milieux poreux de 0.3 cm d'épaisseur le long de chaque capillaire Membrana. L'insertion des 3 capillaires Membrana dans l'embout 1/8 de pouce est scellée une fois encore par de la résine époxy. Le problème principal de ces capillaires Membrana réside dans leur fragilité, en particulier au point d'insertion dans la résine. Il peut être très facile de les casser d'autant plus que la résine époxy rigidifie l'ensemble. Pour cela j'ai ajouté un manchon en tube silicone souple (Exacanal) protégeant la zone fragile entre les capillaires Membrana et la résine époxy. Ce manchon souple permet de prévenir toute cassure pouvant se faire à cause de contraintes mécaniques (écrasement, pliures) dans la colonne de sol ou durant la mise en place.

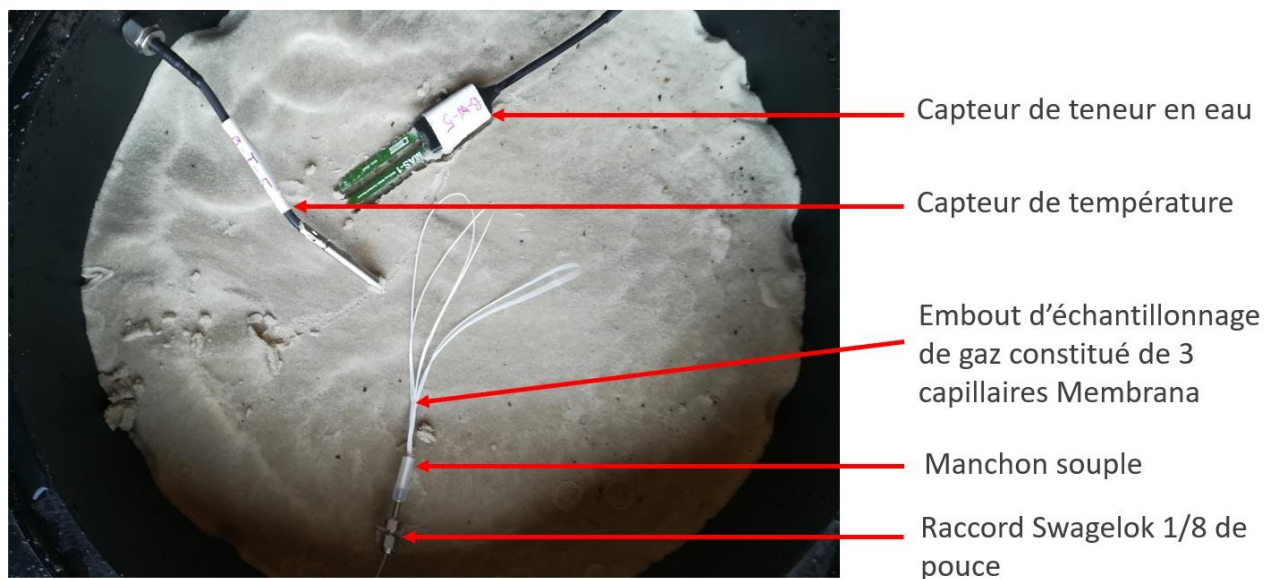


Figure II-13 : Mise en place de l'embout d'échantillonnage de gaz pendant le remplissage/ la compaction d'une colonne de sable non-saturée en eau. L'embout est constitué de 3 capillaires Membrana, d'un raccord Swagelok® 1/8 de pouce serti sur le capillaire inox 1/16 de pouce connecté à la vanne multivoies. Le raccord est équipé d'un manchon souple protégeant le point de fixation étanche des 3 capillaires Membrana.

2.1.5. Suivi de l'humidité du milieu poreux dans la colonne

Notre projet implique de travailler sur des colonnes de sols non-saturés en eau. Pour cela, il a fallu réaliser un dispositif permettant *a minima* un suivi précis et continu de la quantité d'eau présente dans la colonne. Nous avons choisi de réaliser ce suivi de deux manières complémentaires.

La première façon revient à insérer des capteurs de teneur en eau dans la colonne à l'aide des passe-cloisons comme expliquer précédemment. Cette méthode est la plus courante et la plus économique

à mettre en place. Dans le cadre de mes expériences, j'ai choisi de placer 4 capteurs d'humidité (MAS-1 Decagon). Le choix du nombre s'est fait de sorte à ne pas créer trop d'hétérogénéité dans le milieu en sur-instrumentant la colonne. La position des capteurs a été étudiée afin de les insérer au-dessus de la frange capillaire. Cette localisation permet un meilleur suivi de l'évolution de la non-saturation du milieu en eau au cours du temps aux différentes hauteurs.

Le second principe consiste à obtenir un bilan de masse en eau. Pour cela, j'ai disposé sous chaque colonne une balance Sartorius COMBIC permettant des mesures très précises avec une grande portée (gamme 0-150 kg avec une précision de 0.001kg pour l'une et gamme 0-300 kg avec une précision de 0.002 kg pour l'autre). Tout le dispositif d'une colonne repose sur une balance, instrumentation comprise. Les conditions expérimentales dans mon cas impliquent que la masse du système est constante si aucune manipulation n'est effectuée. La variation de la masse de chaque colonne traduit donc une variation de quantité d'eau. S'il y a perte d'eau par évaporation ou évapotranspiration, alors la masse diminuera et inversement s'il y a apport d'eau (arrosage). La précision de ces balances nous permet de mesurer des variations de l'ordre du mL d'eau dans les colonnes, ce qui est un atout considérable.

Cependant, via ce procédé, il n'est pas possible de quantifier la quantité d'eau drainée. En effet, l'eau drainée au cours de l'expérience se retrouve toujours dans la colonne, dans le volume d'injection. Si le volume d'injection doit être vidangé au cours d'une expérience pour éviter une accumulation trop importante d'eau, il est impératif d'ouvrir la vanne de vidange se trouvant au fond de la colonne. Cette manipulation est gênante en cours d'expérience car elle implique l'ouverture de l'unité d'injection sur l'atmosphère et donc l'écroulement du gradient de pression imposé. Cependant une fois la vidange effectuée et l'eau évacuée en dehors du dispositif, il est alors possible d'observer la quantité d'eau perdue de cette manière en mesurant la diminution de la masse du système.

Afin d'optimiser le dispositif, il est possible d'imaginer un ajustement permettant à la fois d'injecter en surpression, tout en drainant continuellement l'eau percolée en dehors de la colonne. Pour la deuxième version du dispositif, j'ai mis en place la possibilité d'utiliser un système de siphon (Figure II-14). À la base de la colonne, est connecté un tube de 6 mm en forme de U et rempli d'eau dont l'autre extrémité est fixée à une certaine hauteur. Cette géométrie permet d'imposer une pression équivalente à la surpression imposée dans le volume d'injection tout en vidant l'eau excédentaire. Ceci est possible dans le cadre de mon projet car j'impose un faible gradient de pression, équivalant donc à de faibles hauteurs d'eau.

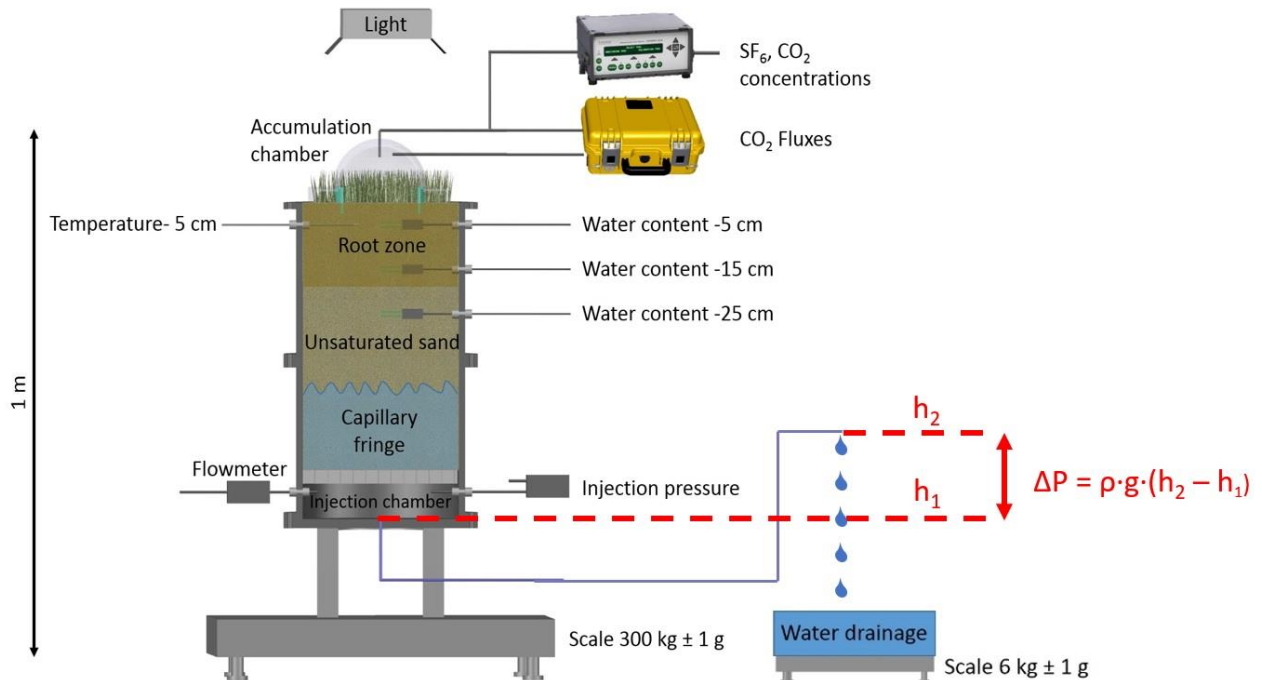


Figure II-14 : Dispositif expérimental (ESCAPe v1 pour l'exemple) doté d'un système de siphon satisfaisant trois objectifs : (i) permettre le drainage de la colonne sans que l'unité d'injection ne se remplisse, (ii) réguler la pression d'injection en imposant une hauteur d'eau, (iii) réaliser un bilan de masse complet et précis de l'eau dans le système grâce à une balance de précision.

2.2. Contrôle des conditions expérimentales

2.2.1. Utilisation de l'ECOLAB pour une régulation fine des conditions environnementales

Réaliser mes expériences dans les cellules climatiques apporte des garanties importantes sur les contrôles imposés aux conditions expérimentales telles que la température ou la composition de l'atmosphère ambiante (Verdier *et al.*, 2014). Un ECOLAB est composé de 4 éléments : (i) un laboratoire permettant de centraliser les ordinateurs d'acquisition et de contrôler les valeurs de consignes des paramètres de régulation, (ii) 3 chambres climatiques confinées où résident les expériences, (iii) une thermo-frigo-pompe régulant la température de l'atmosphère, (iv) un sas technique régulant la distribution et la composition atmosphérique dans les cellules climatiques (Figure II-15).

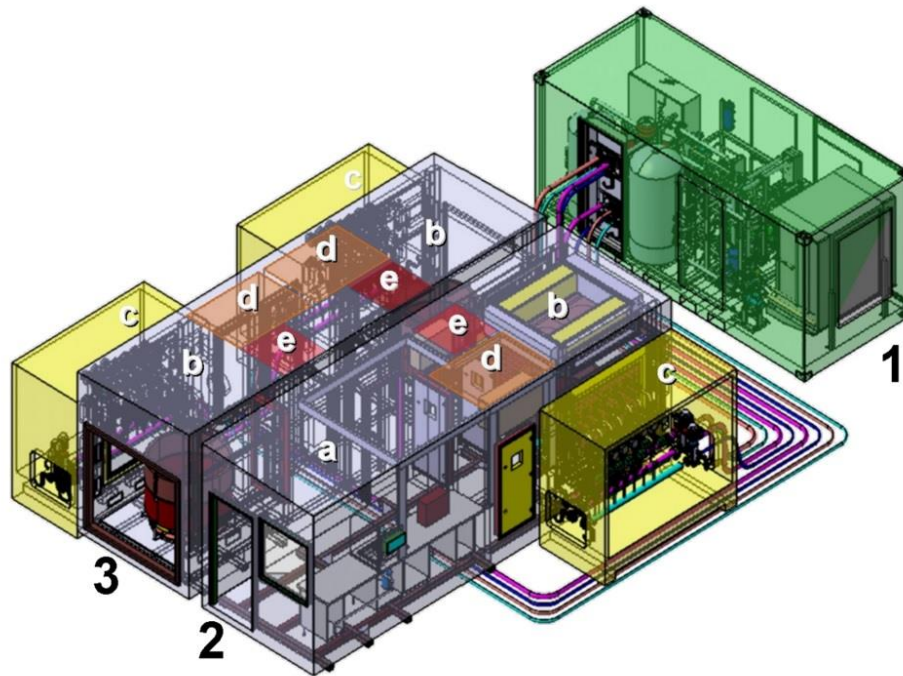


Figure II-15 : Schéma conceptuel d'un ECOLAB constitué d'une thermo-frigo-pompe (1) permettant la régulation de la température atmosphérique des modules (2) et (3). Le module (2) est constitué d'un laboratoire de supervision (a) et d'une cellule climatique (b, d, e). Le module (3) est constitué de deux cellules climatiques (b, d, e). Chaque cellule climatique est accompagnée d'un module de régulation de la composition et de la distribution de l'air (c). D'après Verdier et al. (2014).

2.2.1.1. Régulation de la température

Pour nos expériences, il nous a semblé important de garder la température constante afin de limiter au maximum les effets thermiques sur les flux de gaz, y compris l'évaporation. L'ECOLAB peut garantir une régulation de la température à $\pm 0.5^{\circ}\text{C}$ sur une gamme allant de -4 à $+40^{\circ}\text{C}$. Cette capacité est notamment un atout majeur pour travailler sur la compréhension et la prédiction de l'évolution de certains écosystèmes dans le cadre du changement climatique. La thermo-frigo-pompe permet la régulation et la circulation de liquide calorifique (glycol). Ce système permet d'imposer une température constante à la fois dans l'atmosphère mais aussi dans les colonnes de sols (Dusza et al., 2020). Cette possibilité permet d'éviter des gradients de température entre l'écosystème étudié et l'air ambiant si les températures imposées sont égales pour les deux compartiments. Cependant, il est aussi possible d'imposer une température différente au système et ainsi d'imposer un gradient de température précis. Ce gradient est ajustable durant l'expérience et peut être constant ou dynamique au cours du temps.

Dans notre première expérience, nous avons uniquement eu besoin d'imposer une température ambiante constante. Cette température a été fixée à 25°C, température proche des températures standards utilisées par les instruments et les codes numériques.

Dans une expérience annexe, il a été aussi possible d'imposer des températures aux colonnes de sols. Pour cela nous avons enroulé un tube dans lequel circule du glycol contre les parois des colonnes. Grâce à cette mise en place, j'ai pu réaliser une expérience impliquant des cycles gel/dégel en imposant des valeurs de températures dynamiques à la fois à la colonne de sol mais aussi à l'air ambiant (Figure II-16). La colonne est passée par différents paliers de température allant de 25°C à -5°C en période de gel et inversement en période de dégel. Pendant ce temps, la température ambiante a diminué de 25°C à 5°C en cycle de gel et inversement en cycle de dégel. L'atmosphère n'a pas été refroidie à une température inférieure à 5°C car cela correspond au seuil critique des températures de bon fonctionnement des différents instruments et capteurs. Bien que nos colonnes soient en PEHD, il semble préférable de réaliser ce genre de manipulation avec des dispositifs en inox pour une meilleure régulation et propagation thermique. Il serait aussi plus aisé de réaliser ce genre d'expérience avec des conteneurs à double-parois pour permettre une répartition homogène du glycol autour de la colonne. Enfin, dans le cas de températures extrêmes, il est impératif de bien dimensionner l'expérience. Certaines conditions peuvent être plus ou moins difficiles à garantir sur des temps longs pour les cellules climatiques.

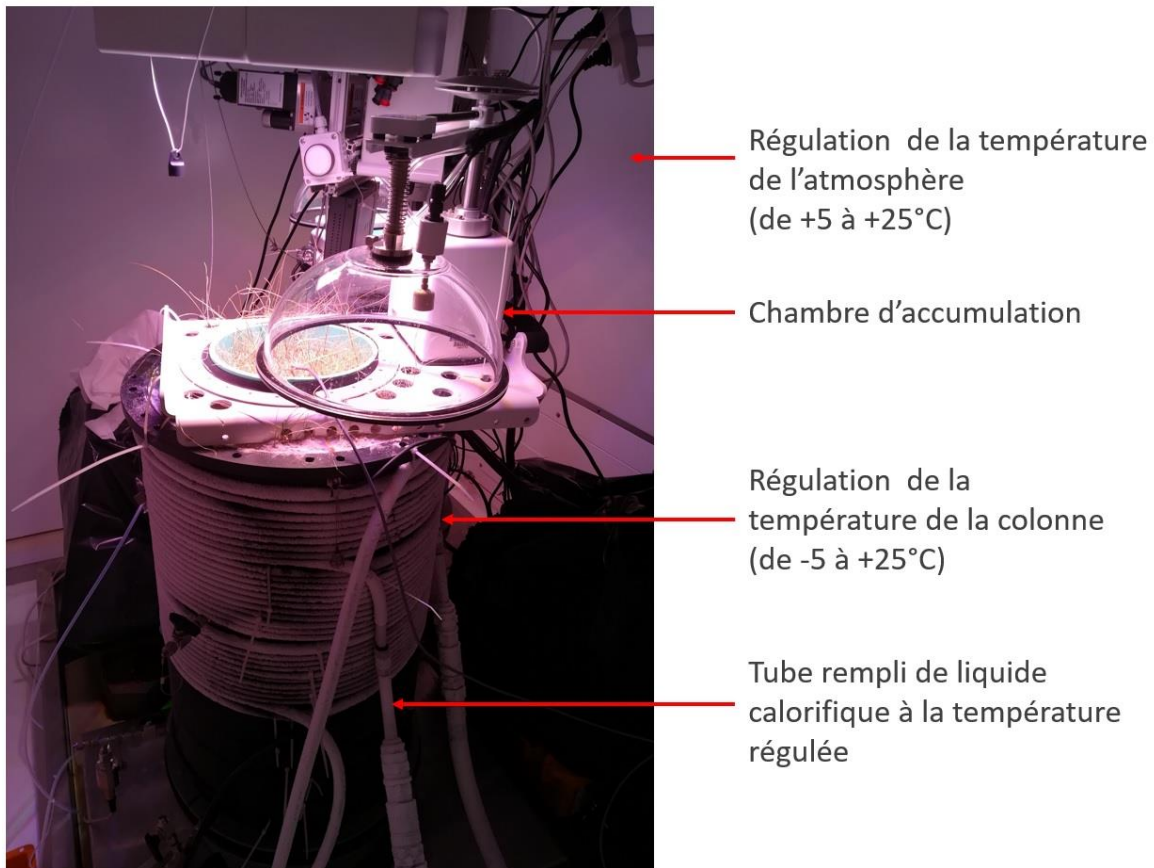


Figure II-16 : Dispositif de percolation de gaz à travers une colonne de sable pendant un cycle de gel et dégel. La colonne est équipée d'un tube enroulé tout autour d'elle. Ce tube, rempli de liquide calorifique, permet d'imposer une température au sol différente de celle de l'atmosphère. Ici la température du sol a été imposée de -5 à +25°C alors que l'atmosphère était régulée de +5 à +25°C.

2.2.1.2. Régulation de la composition atmosphérique et de la pression barométrique

La composition de l'atmosphère est un facteur clé à contrôler dans les expériences sur la dynamique des gaz (concentrations de certaines espèces gazeuses, humidité relative).

La première régulation correspond à imposer une concentration constante d'un gaz d'intérêt au cours du temps dans l'atmosphère de la chambre climatique. Cette régulation forte permet de contrôler l'effet de la diffusion sur les flux du gaz choisis. Dans le cadre du changement climatique, les ECOLABS permettent, par exemple, l'étude de l'impact d'une augmentation de CO₂ dans l'atmosphère ambiante sur certains écosystèmes, en imposant une concentration supérieure à la teneur en CO₂ atmosphérique actuelle. Il est aussi possible d'imposer des concentrations en N₂, O₂, CH₄ ou en O₃ (Verdier *et al.*, 2014). La composition peut aussi être régulée simplement en gardant la concentration des espèces gazeuses égale à la composition de l'atmosphère extérieure. Ce cas se présente lorsqu'un gaz traceur est injecté dans la cellule climatique et qu'il est susceptible de

s'accumuler dans l'atmosphère de la cellule. Pour cela, un système de renouvellement d'air permet de remplacer l'air confiné « vicié » par de l'air extérieur « propre » avec un débit de 10 m³ par minute. Cette option est celle que nous avons utilisée dans le cadre de nos expériences. En injectant un gaz traceur tel que le SF₆ à la base de nos colonnes, le SF₆ se retrouve dans l'atmosphère ambiante de la cellule climatique après percolation. Pour ne pas perturber les gradients de concentration naturels (teneur atmosphérique inférieure à 10 ppt en 2010, Levin et al., 2010), nous avons choisi de renouveler régulièrement l'air dans la cellule. Le renouvellement a été paramétré à hauteur de 5 minutes toutes les heures, garantissant ainsi un renouvellement complet des 13 m³ de la cellule. Ce renouvellement d'air est aussi nécessaire lorsque des personnes interviennent dans la cellule climatique en cours d'expérience. La cellule étant un volume confiné, la respiration d'une personne seule, à l'intérieur pendant quelques minutes, suffit à augmenter la concentration en CO₂ de plusieurs centaines de ppm. Afin d'éviter cet effet parasite, nous recommandons, dans l'idéal, de déporter hors de la cellule climatique les instruments nécessitant une action humaine pendant l'expérience ou d'interagir uniquement avant et après, afin de ne pas perturber l'atmosphère confinée de la cellule. L'humidité dans la cellule est aussi un facteur qu'il est possible de réguler en lien avec la température. Ce facteur est intéressant à réguler si on souhaite imposer un stress hydrique sur des écosystèmes par exemple, ou encore pour reproduire un climat humide d'une région particulière de la Terre. Cette option permet le contrôle de l'évaporation. Dans notre cas l'humidité relative dans la cellule a seulement été mesurée et non fixée avec un point de consigne.

Concernant l'évolution de la pression barométrique dans la cellule, il n'est malheureusement pas facile de l'imposer et de la réguler. De ce fait, la pression barométrique dans la cellule climatique suit les évolutions de la pression barométrique extérieure. Cependant, nous mesurons les deux pressions afin de contrôler si des différences existent ou se développent, notamment du fait de la ventilation et de la relative étanchéité des cellules climatiques. J'ai observé que les variations de pression sont identiques avec un décalage uniquement en amplitude pour la pression dans la cellule climatique, celle-ci étant en légère surpression par rapport à l'atmosphère d'en moyenne 5 à 10 mbar.

2.2.1.3. Éclairage artificiel

Les cellules climatiques des ECOLABs sont dépourvues de fenêtres ou de puits de lumière. Il est donc nécessaire d'apporter un éclairage artificiel si besoin. Le type d'éclairage artificiel peut varier selon ce que l'on souhaite étudier. Les cellules climatiques sont pourvues de deux lampes avec interrupteur à l'intérieur de la cellule pour que l'expérimentateur puisse voir son système expérimental. Si l'expérience nécessite le développement de plantes ou de micro-organismes

photosynthétiques, un éclairage spécifique contenant certaines longueurs d'ondes lumineuses est introduit dans la cellule. Cet éclairage artificiel peut se rapprocher du spectre lumineux solaire ou non. Sur la plateforme des ECOLABs, deux types d'éclairage sont disponibles : l'un basé sur des lampes à LEDs, l'autre sur des lampes plasma. Chacun des deux types d'éclairage a ses avantages et inconvénients.

Les lampes à LEDs Ecolux (développé par l'entreprise Cesbron en partenariat avec l'Ecotron IleDeFrance) sont des éclairages peu coûteux, facile d'utilisation et rapide à mettre en place. La lampe est constituée d'une cinquantaine de LED de 7 longueurs d'ondes différentes allant de l'UV à l'infrarouge. Bien que le spectre lumineux ne corresponde pas à celui du soleil, les longueurs d'ondes présentes semblent suffire à la pousse des plantes après plusieurs observations en cellule climatique ou en serre. Les lampes LEDs fonctionnent en mode « on/off » ou alors avec une variation d'intensité lumineuse réglable de 10 à 100%. Un autre avantage fort de ce type d'éclairage réside à la fois dans sa taille compacte et dans sa faible dissipation d'énergie sous forme de chaleur, ce qui ne perturbe pas la régulation thermique des cellules climatiques. Enfin, Les lampes LEDs offrent plusieurs possibilités en termes de pilotage et de contrôle de l'intensité au cours du temps. Cette option peut être utile pour représenter des cycles de jour et de nuit progressifs en imitant les levers et les couchers de soleil par exemple.

Les lampes plasma Lumixo A-1000W (Lumartix SA) sont quant à elles plus sophistiquées, et plus onéreuses. Le principe de fonctionnement consiste à exciter un gaz dans un bulbe jusqu'à l'obtention d'un plasma reproduisant la lumière du spectre solaire. Il est aussi possible de piloter les lampes plasma durant leur fonctionnement afin de faire varier l'intensité lumineuse en plus de leur allumage et de leur arrêt. Cependant cette technologie fournit des rayonnements pouvant être trop élevés pour certains écosystèmes et dissipe énormément d'énergie sous forme d'infrarouge. Ces infrarouges peuvent avoir pour conséquence une augmentation de l'évaporation des systèmes étudiés. Enfin, les lampes plasmas sont des dispositifs plus encombrants que les lampes LEDs, ce qui est inconvénient pour le travail dans une chambre climatique dans laquelle la place est réduite.

Dans le cadre de mes expériences, la seule contrainte était de réussir à faire pousser un couvert végétal. J'ai donc opté pour la solution la plus pratique que sont deux lampes LEDs Ecolux en les plaçant respectivement au-dessus de chaque colonne. Ce choix s'est avéré suffisant.

Une mesure des rayonnements photosynthétiques actifs (PAR) peut s'avérer utile afin de garantir que chacune des colonnes est soumise aux mêmes radiations dans le cadre d'expériences centrées sur l'éclairage. Dans le cadre de mes travaux, cette mesure était uniquement utilisée dans un but de supervision, garantissant à distance que les lumières étaient bien allumées le jour et éteintes la nuit.

Cependant, il serait intéressant de réaliser cette mesure plusieurs fois en cours et en fin d'expériences afin de garantir qu'il n'y a pas eu de dérive entre les différentes lampes au cours du temps.

2.2.2. Choix du milieu poreux et détermination de ses caractéristiques

Selon les applications et le cadre d'étude, le choix du milieu poreux va différer. Dans notre projet, nous cherchons à contrôler au maximum tous les facteurs pouvant perturber la dynamique d'un gaz dans le milieu poreux. Cette perturbation peut provenir à la fois des propriétés physiques mais aussi chimiques du sol. Pour contrôler au maximum ce qui se passe dans notre système, le plus facile est de choisir un matériau homogène aux propriétés physico-chimiques connues, constituant un modèle de sol. Pour cela, nous avons choisi le sable de Fontainebleau produit par l'industriel Sibelco.

Ce choix s'est fait naturellement pour différentes raisons pratiques et scientifiques. Tout d'abord le sable de Fontainebleau est un sable local qu'il est facile de se procurer dans le secteur du CEREEP-Ecotron IleDeFrance. De plus, le sable de Fontainebleau fait partie des matériaux modèles connus et souvent utilisés pour les études hydrodynamiques. Ainsi les caractéristiques hydrologiques du sable de Fontainebleau sont connues et publiées.

L'autre atout de ce matériau produit par Sibelco est sa pureté chimique (99,88 % de silice). Cette composition chimique fait de ce sable un milieu poreux chimiquement inerte. Cette propriété nous évite d'avoir à prendre en compte dans nos interprétations les capacités d'adsorption, de dissolution ou de précipitations de quelconques gaz ou liquides avec le milieu. De ce fait, les volumes de pores et la tortuosité ne devraient pas non plus être modifiés par les réactions de dissolution/précipitation. De plus le sable est caractérisé précisément par le fournisseur avec une fiche détaillée sur sa granulométrie et sa densité (Figure II-17). La taille des grains est relativement homogène allant de 106 à 425 μm avec un D50 de 213 μm . Il peut être difficile de trouver le milieu poreux idéal. Pour l'étude du transport dans un milieu poreux non-saturé, il est important de connaître des caractéristiques essentielles à la détermination de la perméabilité intrinsèque, de la porosité et des paramètres de Van Genuchten. Dans le cas où le milieu poreux choisi n'est pas connu au préalable, il sera donc important de le caractériser avant toute expérience. Les paramètres hydrodynamiques du sable utilisé dans le cadre de cette thèse ont été déterminés au Centre INRAE d'Avignon. La détermination de la perméabilité intrinsèque, des paramètres de Van Genuchten et de la courbe de rétention d'eau a été réalisée en utilisant la méthode d'évaporation de Wind (1968) et en appliquant le traitement de donnée de Simunek et al. (1998). Ces tests en laboratoire ont permis de déterminer une perméabilité intrinsèque de $3,6 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2$. La porosité a été estimée à 38 % et les paramètres de Van Genuchten α et m respectivement à $2,6 \cdot 10^{-4}$ et $7,404 \cdot 10^{-1}$.

Comme nous le verrons expérimentalement au Chapitre 3 et par la modélisation au Chapitre 4, ces paramètres hydrodynamiques déterminent une frange capillaire de hauteur 16 cm environ, en accord avec les valeurs expérimentales tabulées par Rançon (1972) qui a déterminé la hauteur de frange capillaire en fonction de la taille des grains pour du sable. Cette détermination empirique nous avait permis de dimensionner nos expériences et la position des capteurs en attendant de disposer des valeurs mesurées par l'INRAE d'Avignon. Connaissant la densité du quartz (2,65) et à partir de déterminations de la densité apparente (mesures de masse et de volume), la porosité des colonnes, une fois remplies de sable de Fontainebleau, a été estimée entre 38% et 42 %, ce qui est relativement proche de la valeur de 38 % déterminée au laboratoire et indique un tassement similaire pour deux volumes de sable pourtant très différents.

Composition chimique type

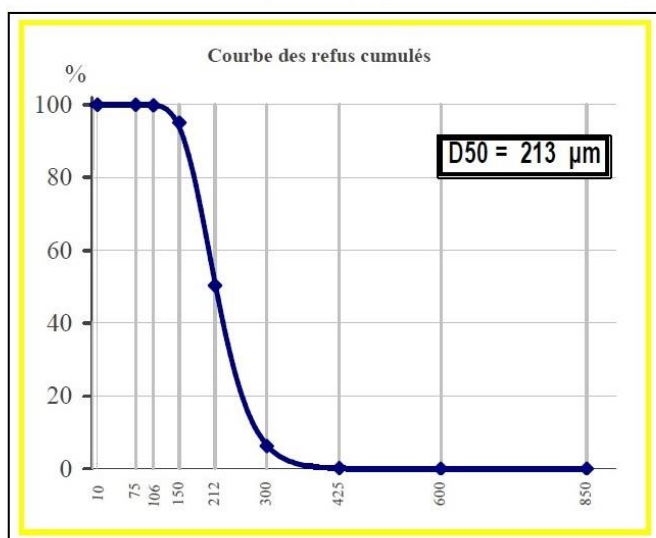
SiO ₂ sup. à	99,88 %
Fe ₂ O ₃ moy. à	0,011 %
Al ₂ O ₃ moy. à	0,040 %
TiO ₂ moy. à	0,015 %
CaO moy. à	0,006 %
K ₂ O moy. à	0,006 %

Caractéristiques physiques types

densité réelle (Pycnomètre)	2,65
dureté (Mohs)	7
pH	# 7
densité apparente sable sec ("Prolabo")	1,5
surface spécifique ("G F")	NC
coefficient d'angulosité ("G F")	1,1
perte au feu (à 1000°C)	Maxi 0,06%
résistance pyroscopique (SFC ISO R528) ..	1750 °C

GRANULOMETRIE MOYENNE STATISTIQUE

(% en masse - Valeurs indicatives)



TAMISAGE ASTM E.11/70

ouverture des mailles µm	refus cumulés %
> 850 µm	0,0
> 600 µm	0,0
> 425 µm	0,1
> 300 µm	6,2
> 212 µm	50,4
> 150 µm	95,0
> 106 µm	99,7
> 75 µm	99,9
> 10 µm	100,0
AFA =	60,9

Figure II-17 : Caractéristiques physico-chimiques du sable de Fontainebleau utilisé dans le cadre de mes expériences (d'après la fiche technique fournie par Sibelco).

Enfin, le milieu poreux devait aussi être choisi, dans notre cas, de façon à supporter une production végétale. Le choix du sable de Fontainebleau a été validé grâce à des tests préalables en serre

garantissant que des plantes peuvent se développer dans ce substrat pourtant pauvre en nutriment avec seulement un arrosage à l'eau du robinet.

Dans le cadre d'une deuxième série d'expériences, nous avons prévu d'étudier deux colonnes sèches, l'une remplie de sable de Fontainebleau et l'autre de zéolite. Ce minéral est notamment présent dans certaines roches volcaniques, notamment celles du Nevada National Security Site où ont été réalisés de nombreux essais nucléaires américains. Il s'avère que les propriétés des zéolites sont favorables à l'adsorption des espèces gazeuses à la surface des grains (Feldman *et al.*, 2020). La composition chimique et la géométrie en cage de ces minéraux augmentent les possibilités de formation de liaisons électrostatiques faibles entre espèces chimiques transportées et grains de zéolite. Nous avons donc souhaité, dans une future expérience, réaliser une comparaison des capacités d'adsorption du sable de Fontainebleau, supposé neutre, et celle de la zéolite supposée plus réactive.

Afin de pouvoir comparer au mieux les effets de ces deux substrats sur la percolation des gaz, nous nous sommes attachés à obtenir une courbe de distribution granulométrique similaire pour le sable et la zéolite. Si l'adsorption de surface est en jeu, la taille des grains jouera en effet de façon importante du fait des rapports surface/volume. De plus, la granulométrie contrôle la porosité, la tortuosité et la perméabilité intrinsèque. Cependant, la granulométrie de la zéolite telle que livrée par le fournisseur était plus dispersée que celle du sable de Fontainebleau (grains de quelques microns à 1 cm). Il a donc été décidé de tamiser la zéolite, après séchage, pour obtenir une granulométrie proche de celle du sable de Fontainebleau. Pour cela, j'ai utilisé deux tamis de grand diamètre, respectivement avec une taille de maille de 100 μm et 500 μm correspondant aux granulométries minimale et maximale du sable de Fontainebleau. Cette opération a permis de retirer les particules les plus grossières mais surtout les plus fines, qui ont une capacité importante de colmatage en présence d'eau. Pour réaliser le tamisage et obtenir suffisamment de matériau de la bonne fraction, il a fallu plusieurs jours de travail en utilisant un système vibrant. Pour ce genre de substrat avec des particules très fines et volatiles, en présence de bruit, il est impératif de porter les équipements de protection individuelle adaptés (masque, lunettes, gants, protection auditive).

2.2.3. Protocole de mise en place du système expérimental

La mise en place des expériences est à la fois une étape importante pour le bon déroulement de la suite du protocole et une étape lourde en manutention.

La première étape consiste à préparer les colonnes comme décrit dans les sections 2.1.1 et 2.1.2. Une fois les colonnes assemblées, les capteurs insérés, l'étanchéité vérifiée et le support délimitant le volume d'injection installé, il est alors possible d'ajouter le matériau constituant le sol. Selon si le milieu poreux étudié doit être sec ou mouillé, deux options se présentent. Dans les deux cas, le sable doit être séché au préalable. Cette précaution permet de s'assurer que les quantités de sable ajoutées lors du remplissage sont identiques dans les deux colonnes, sans artéfact lié à la teneur en eau du matériau. La quantité de sable qu'il a fallu sécher étant importante (environ trois cents kilogrammes), nous avons adopté la méthode suivante pour des questions pratiques. Le sable a été étalé sur des bâches en extérieur, exposé au soleil et au vent. Afin de faciliter l'évaporation de l'eau présente entre les grains, nous avons étalé le sable pour former une couche mince à l'aide de pelles et de râteliers. Toutes les heures, le sable était ratissé afin de bien sécher toutes les zones. Pour le sable de Fontainebleau comme pour la zéolite, le séchage a été effectué en été. Pour garantir un bon séchage, nous avons choisi de ranger le sable chaque fin de journée dans des caisses étanches et de réitérer le procédé pendant 3 jours.

La méthode de remplissage a été basée sur l'état de l'art présenté dans le Chapitre 1. L'expérience se faisant sur deux colonnes, l'une servant de témoin, il est nécessaire d'appliquer un protocole de remplissage rigoureux afin de minimiser les différences entre les deux colonnes.

Dans le cadre des tests d'injection sur du sable sec, le remplissage s'est fait par couches de 5 cm de sable compactées physiquement à l'aide d'une perceuse à percussion munie d'un foret soudé à une plaque en acier de diamètre 10 cm. Au cours du remplissage les colonnes sont posées sur des balances Sartorius Combics d'une portée de 150 kg avec une précision de 0.001 kg afin de s'assurer de la mise en place d'une quantité égale de sable dans chacune des deux colonnes. Lors du remplissage par couche, j'ai pu remarquer que le sable se compactait d'environ 20 % à chaque couche de 5 cm. L'ajout de sable se faisait avec précaution afin de pouvoir insérer et maintenir à l'horizontale les capteurs insérés dans la colonne et garantir les profondeurs d'insertion, tout en prenant en compte la compaction. Pour le remplissage d'une colonne avec de la zéolite tamisée sèche, nous avons utilisé le même procédé que pour le remplissage avec du sable sec.

Pour le remplissage des colonnes préalablement aux expériences en milieux non-saturés en eau, le meilleur choix reste la compaction par sédimentation et drainage comme rappelé dans Lewis et Sjöstrom (2010). À chaque couche de sable sec ajoutée dans les colonnes, le sable était rincé avec l'équivalent de 3 fois son volume d'eau. J'imposais en plus une charge hydraulique constante de 5 cm de hauteur d'eau pendant 10 minutes tout en évacuant continuellement l'eau de drainage à la base de la colonne. En inspectant l'eau de drainage pendant le remplissage, nous avons pu valider le fait que les grilles en silicone et le géotextile retiennent bien le sable tout en laissant passer l'eau. Ce procédé offre une très bonne compaction pour les milieux non-saturés et sa mise en œuvre est facile sur plusieurs colonnes. Lors du remplissage, j'ai pu aussi remarquer la présence de bulles remontant à la surface à différents endroits. Ceci nous laisse penser que l'air est bien chassé pour être remplacé par l'eau qui percole. Cependant, cela peut aussi laisser penser que, malgré l'homogénéité du sable de Fontainebleau, il existe des zones très locales d'hétérogénéité où la percolation se fait plus ou moins facilement puisque la présence des bulles en surface est très localisée. La compaction par sédimentation sera plus ou moins longue et laborieuse en fonction du milieu poreux. Dans notre cas, le sable de Fontainebleau draine très facilement, permettant d'atteindre en l'espace de quelques heures la courbe de rétention d'eau à l'équilibre après remplissage total de la colonne (arrêt de l'écoulement en base de colonne, masse constante).

Après leur remplissage, les colonnes sont installées dans la cellule climatique. Parce que chaque colonne pèse entre 130 et 140 kg une fois remplie, nous avons utilisé un chariot élévateur. La cellule a été pré-équipée avec les balances et les supports. Tous les instruments et les systèmes d'acquisition ont également été installés préalablement à l'installation des colonnes. Une fois les colonnes mises en place, il ne restait plus qu'à brancher les sondes au système d'acquisition (description dans la section 2.3.1.), connecter toute la tuyauterie gaz et installer les chambres d'accumulation (Figure II-18).



Figure II-18 : (A) Mise en place d'une colonne de sol dans la cellule climatique à l'aide d'un chariot élévateur. (B) Installation terminée des deux colonnes de sol dans la cellule climatique en présence des bouteilles de gaz utilisées pour les injections et les calibrations.

Après chaque installation du dispositif, il est impératif de le sécuriser et de le tester avant de lancer une expérience. Il est notamment recommandé de vérifier si des instruments en mouvements peuvent être gênés durant leur course. Ici, nous avons fait en sorte que la course des chambres d'accumulations puisse se faire sans obstruction ou renversement d'autres éléments. De plus, les chambres d'accumulation ont été fixées aux brides des colonnes à l'aide de colliers de serrage. Les colonnes elles-mêmes ont été sécurisées à l'aide de filins pour prévenir toute chute éventuelle.

2.2.4. Contrôle de la quantité d'eau dans le système

Grâce à l'association des balances et des capteurs de teneur en eau, il est possible de suivre précisément l'évolution de la quantité d'eau. Le contrôle du bilan d'eau est nécessaire car les conditions expérimentales induisent des variations naturelles. La température imposée à 25°C génère l'évaporation de l'eau contenue dans la colonne par sa surface. La présence de plantes génère une perte d'eau additionnelle par évapotranspiration. L'injection de gaz sec à la base de la colonne pourrait aussi avoir pour effet d'assécher la colonne. Enfin, de l'eau peut être drainée à la base de la colonne quand l'eau devient excédentaire suite à un arrosage ou lorsqu'elle n'est plus retenue par la tension capillaire. Les causes sont multiples : accumulation en base de colonne, réarrangements dans l'organisation des grains de sable (tassement, croissance des racines) ou encore élimination de bulles ou poches d'air. Ces phénomènes peuvent conduire à des drainages soudains qui ont été observés.

Toutes ces pertes d'eau impliquent d'adapter un apport d'eau contrôlé dans la colonne afin de garder un profil de saturation plus ou moins stable dans la colonne. La solution la plus simple à mettre en place a consisté à mesurer la perte d'eau sur une certaine période de temps et à rajouter ponctuellement cette même quantité d'eau à la surface. Pour garantir un arrosage homogène et précis, j'ai reparti l'eau en 3 quantités égales dans trois zones de surface égale. La première est dans la collerette qui correspond à une surface de 0.0317 m^2 (équivalent au tiers de la surface de la colonne), les deux autres zones correspondent à la surface extérieure à la collerette divisée en deux. Dans le cadre de notre première expérience, j'ai ajouté en moyenne 600 mL d'eau à chaque arrosage sur chacune de ces surfaces à l'aide d'une seringue. Cependant, l'encombrement des supports des chambres d'accumulation rend l'arrosage manuel difficile et cette technique impose de rentrer dans la cellule climatique et donc de perturber l'atmosphère ambiante. L'arrosage prenant plusieurs minutes, ma présence dans la cellule a généré des perturbations sur la concentration en CO_2 dans la cellule climatique, celle-ci pouvant augmenter jusqu'à 1200 ppm.

Bien que le renouvellement d'air permette de faire redescendre rapidement cette concentration au niveau de la concentration atmosphérique, il est préférable de mettre en place un système d'arrosage automatique à distance. Pour cela, dans les expériences suivantes, nous avons testé la mise en place d'un assemblage de tubes terminés par des goutte-à-goutte (Figure II-19). Une terminaison de 6 goutte-à-goutte a été spiralée à la surface d'une colonne de façon à les répartir de manière homogène. Cet assemblage est connecté, en amont, à un débitmètre à double-sortie installé sur une arrivée d'eau à l'extérieur de la cellule climatique. Cette configuration permet de régler des arrosages automatiques et cycliques dans deux circuits d'eau, un pour chaque colonne. Cependant, ce système ne permet pas d'arroser uniformément toute la surface car l'arrosage est ponctuel (6 points). Il est également difficile de garantir un ajout d'eau égal pour les deux colonnes. En effet malgré les précautions prises (utilisation des mêmes longueurs de tuyaux et de tubes entre l'arrivée d'eau et les colonnes), le système pouvait dériver d'une colonne à l'autre car les débits fournis n'étaient pas identiques. L'alternative a été d'utiliser une pompe péristaltique double régulant simultanément les débits d'eau dans deux tubes terminés par les goutte-à-goutte. Ces tubes sont plongés en amont dans un réservoir d'eau, qu'il suffit de maintenir plein au cours du temps. Ce procédé présente la meilleure constance dans l'apport d'eau en quantité égale pour les deux systèmes en même temps. Nous recommandons au préalable de remplir tous les tubes d'eau avant de lancer l'arrosage automatique afin d'éviter toute bulle d'air piégée dans les circuits, pouvant créer une différence entre l'apport d'eau voulu et l'apport réel, ainsi que des différences entre les apports d'eau entre les deux colonnes.

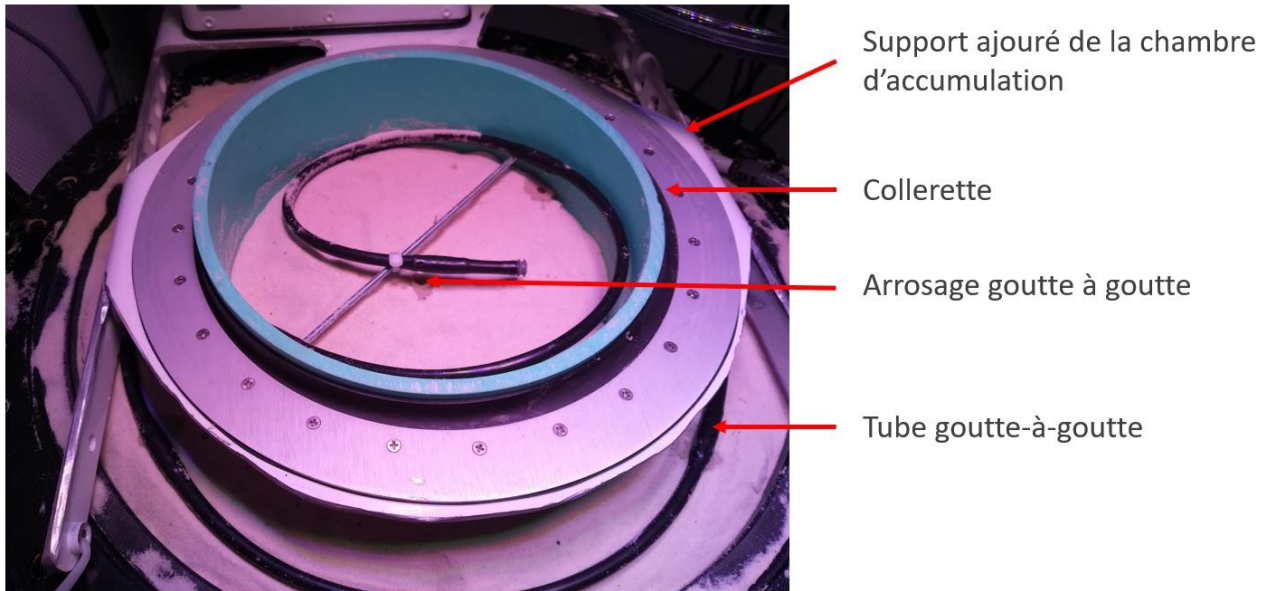


Figure II-19 : Vue du dispositif d'arrosage automatique de la surface des colonnes grâce à la mise en place d'un tube équipé de 6 goutte-à-goutte disposé en spirale à la surface de la colonne, à l'extérieur comme à l'intérieur de la collerette de la chambre d'accumulation.

Comme nous l'avons abordé dans la section 2.1.5, le drainage de l'eau est difficile à prendre en compte avec la première version du système sans siphon de drainage car elle ne peut pas être quantifiée par une balance unique mesurant tout le poids du système. Cependant, avec l'adaptation d'un siphon, un contrôle de second ordre est appliqué (cf. Figure II-14). La terminaison est placée au-dessus d'un seau qui se trouve lui-même sur une balance de précision préalablement tarée avec le seau vide. Ceci permet donc de mesurer la quantité drainée au cours du temps et de réaliser un bilan de masse sur l'ensemble de la colonne (eau ajoutée, eau évaporée/évapotranspirée, eau drainée). Une pompe péristaltique actionnée en dehors de la cellule climatique permet de vider le seau sans avoir à rentrer dans la cellule. Afin de vérifier que ce système fonctionne bien et qu'il n'y a pas d'accumulation d'eau dans le fond de la colonne (chambre d'injection), nous avons aussi équipé l'unité d'injection de la deuxième version du dispositif, d'une sonde de teneur en eau.

L'idéal aurait été de disposer d'un système qui rajoute de l'eau en fonction des variations de la teneur en eau afin que la courbe de saturation soit maintenue constante. Pour cela, j'ai réfléchi à un autre procédé que je n'ai pas pu tester. Ce dernier consistait à placer une plaque poreuse possédant la même tension capillaire que celle exercée par le sable de Fontainebleau à la base de la colonne. Cette plaque poreuse serait reliée à un réservoir d'eau soumis à la même force que la tension recherchée. Ceci permettrait d'alimenter la colonne en eau et en continu par la base afin d'entretenir le profil de saturation et le garder le plus constant possible. Si cette option est utilisée, il est nécessaire que la plaque soit adaptée pour laisser passer le gaz injecté.

2.2.5. Ajout des plantes au système

Afin de mettre en évidence l'influence des processus biologiques sur les flux de gaz mesurés en surface, il a fallu chercher un type de plantes qu'il serait possible de faire pousser sur les colonnes de sable. Pour cela, nous avons sélectionné une espèce qui demande peu de nutriments et pouvant réaliser la photosynthèse en utilisant le spectre lumineux fourni par des lampes à LEDs. Le choix s'est porté sur une plante herbacée (*Festuca arundinacea* Schreb.). Cette plante pérenne sert principalement comme plante fourragère ou pour la création de pelouse. Cette plante herbacée et vivace est une plante modèle très étudiée (Hannaway *et al.*, 1999).

Des premiers tests en serre ont permis de montrer le bon développement des fétuques dans le sable de Fontainebleau attesté par la présence de plantes de 5 cm de haut au bout de 3 semaines. Nous avons alors décidé la mise en place des plantes dans une des colonnes dans la cellule climatique. Une fois les colonnes installées et les tests effectués sur l'instrumentation, nous avons réalisé le semis pour l'une des deux colonnes afin de pouvoir tester l'effet de la présence des plantes, en comparant la colonne avec plantes à la colonne témoin. Pour cela, nous avons retiré la chambre d'accumulation et dispersé 8 g de graines le plus uniformément possible à la surface de la colonne avant de remettre la chambre d'accumulation. Le premier traçage au SF₆ a été réalisé après une période de croissance de 3 semaines. Cependant, nous avons remarqué une répartition inégale de la germination et de la croissance des plantes. Environ 50 % des graines n'ont pas germé, avec une forte densité de pousses dans la collerette, comparé à la surface extérieure. Il semblerait que la structure de la chambre d'accumulation produisant de l'ombre ait empêché certaines graines de germer. Cela se traduit par une forte concentration de pousses dans la collerette de la chambre d'accumulation, a contrario de la surface en dehors de la collerette qui n'a pas la même densité de pousse (Figure II-20). C'est suite à cette observation que nous avons choisi de modifier la chambre d'accumulation en l'ajoutant (*cf.* Figure II-10), puis pour les expériences futures, en faisant réaliser sur-mesure une chambre d'accumulation au diamètre de la colonne, sans support recouvrant en partie la surface de la colonne.



Figure II-20 : Différence de densité des pousses des plantes entre l'intérieur et l'extérieur de la collerette. Cette différence est due principalement à la présence du support initial de la chambre d'accumulation. Afin d'homogénéiser le couvert végétal entre l'intérieur et l'extérieur de la collerette dans les futures expériences nous avons ajouré les supports de chambre d'accumulation (cf. Figure II-10).

2.3. Suivi des expériences

2.3.1. Systèmes d'acquisition

2.3.1.1. Première version

Toutes les sondes et tous les instruments sont reliés à un ordinateur d'instrumentation situé en dehors de la cellule climatique. La quantité de mesures effectuées et la variété des instruments utilisés nécessitent une gestion importante de l'acquisition tout au long de l'expérience. Dans un premier temps, nous allons expliquer le principe d'acquisition de la première version du dispositif, puis nous expliquerons le nouveau procédé qu'il a fallu mettre en place avec l'intégration du spectromètre de masse dans la deuxième version. Pour la première version du dispositif, je collectais les données séparément pour la plupart des instruments, ce qui rendait fastidieuse l'acquisition et la sauvegarde des données, tout en posant le problème de la synchronisation.

- Les sondes de température, de teneur en eau et de pression différentielle sont connectées à une centrale d'acquisition (Pyrocontrol). Cette centrale permet la conversion des signaux

analogiques (mV ou mA) en signaux numériques sur l'ordinateur d'instrumentation. L'enregistrement de ces données se fait automatiquement grâce à un script Python développé par l'Ecotron IleDeFrance, enregistrant les données du Pyrocontrol au format .csv. Ce script permet aussi de configurer les pas de temps de l'acquisition ainsi que de moyenniser les valeurs entre deux temps de mesures. Dans le cas d'un suivi à haute résolution et à long terme, j'ai jugé qu'un pas de temps de 5 minutes était un bon compromis afin d'observer des variations très rapides à l'échelle journalière sans saturer la mémoire de l'ordinateur.

- Les pressions barométriques à l'intérieur de la cellule, ainsi qu'à l'extérieure, ont été enregistrées par des capteurs BaroDiver, qui sont des sondes autonomes. Pour récolter les données en cours d'expérience, il était nécessaire d'entrer dans la cellule climatique. Par la suite, cette sonde a été remplacée par un capteur de pression Swagelok® connecté lui aussi au Pyrocontrol.
- Les balances étaient connectées à l'ordinateur d'instrumentation grâce à un convertisseur de media permettant de convertir la communication RS232 des balances en communication Ethernet (MOXA). Ce convertisseur peut aussi être interrogé par un script Python couplé à celui qui contrôle le Pyrocontrol. L'enregistrement des mesures de masse se faisait donc en simultanée avec les données de températures et de teneurs en eau toutes les 5 minutes et apparaissait dans le même fichier de sortie .csv avec la même base de temps.
- Enfin, pour les analyseurs de gaz LI-COR (IRGA) et Innova1412i (photoacoustique) nous avons dans un premier temps utilisé les logiciels propriétaires propres à chacun. Dans la première expérience, le système LI-COR était en connexion directe via Ethernet RJ45 avec l'ordinateur d'instrumentation. Non seulement cette connexion permet le pilotage des cloches mais aussi la sauvegarde des données en cours d'expérience sans avoir à entrer dans la cellule. La contrainte principale venait des deux analyseurs Innova1412i. Comme pour les balances, nous avons utilisé un convertisseur de média (MOXA) permettant de les relier à l'ordinateur d'instrumentation en passant par l'Ethernet. Suite à des problèmes de ports de communication entrant en conflit sous Windows, un seul Innova1412i pouvait être connecté et lu à la fois par l'ordinateur. Il fallait donc impérativement entrer dans la cellule climatique afin de brancher/débrancher le connecteur RS232 d'un instrument et récupérer les fichiers de données des deux instruments. Un deuxième inconvénient réside dans la capacité de stockage très faible de ces instruments dans le cadre d'une expérience à long terme et haute résolution. Cette caractéristique a dû être prise en compte pour configurer le pas de temps des mesures. En effet, la programmation de cet analyseur permet uniquement de lancer des mesures avec un pas de temps fixe, quel que soit le statut de la chambre d'accumulation (ouverte en période

de rinçage ou fermée pour les périodes de mesure de flux). Ce qui signifie plusieurs choses : (i) le pas de temps doit être suffisamment court pour réussir à observer une accumulation lorsque la chambre d'accumulation est fermée, (ii) le pas de temps doit être suffisamment long pour ne pas saturer trop rapidement la mémoire de l'instrument, (iii) la faiblesse de cet instrument résidant dans l'étanchéité de ses pompes, le pas de temps doit être suffisamment long pour ne pas fatiguer trop rapidement les joints des pompes. Un pas de temps de 5 minutes s'est avéré optimal. Ceci nous permettait de réaliser des mesures pendant 6 jours avant d'avoir à récupérer les données. Associé à ce pas de temps de 5 minutes, nous avons choisi de réaliser une mesure d'accumulation de 20 minutes toutes les heures pour chacune des deux colonnes. Ceci permettant d'obtenir 5 mesures de concentration de SF₆ et CO₂ avec l'Innova1412i, ce qui est crucial pour le traitement de données permettant d'obtenir un flux comme nous le verrons plus loin. Bien qu'une durée de 20 minutes d'accumulation puisse être considérée comme longue dans le cas d'un régime diffusif, ceci n'a pas posé de problème dans notre cas puisque le régime largement dominant était advectif.

Comme nous le montre cette description de l'acquisition, une question importante se pose : Comment gérer toutes ces acquisitions simultanées avec des bases de temps différentes ? La gestion du temps t_0 pour chacun des instruments était la grande difficulté de cette configuration, rendant le traitement de données parfois compliqué. Afin de pallier cette faiblesse, j'utilisais une même horloge de référence qui était l'horloge de l'ordinateur d'instrumentation. Comme illustré sur la Figure II-21, tous les instruments étant calés sur cette horloge, j'utilisais notamment les options de départ en différé lorsqu'il était possible de les configurer (notamment pour les capteurs BaroDiver, l'analyseur et les chambres d'accumulation LI-COR). Le plus problématique était de pouvoir caler les mesures des Innova1412i et du Pyrocontrol sur le même t_0 que les autres instruments. L'acquisition du Pyrocontrol se faisant manuellement, je le lançais avec un pas de temps d'avance, de sorte que la deuxième mesure soit synchrone avec le démarrage des capteurs BaroDiver et du LI-COR. L'acquisition des analyseurs Innova1412i se faisait manuellement dans la cellule et était calée avec la fermeture des chambres d'accumulation LI-COR, qui survenait à t_0 . Ce procédé devait être réitéré après chaque relevé de mesures.

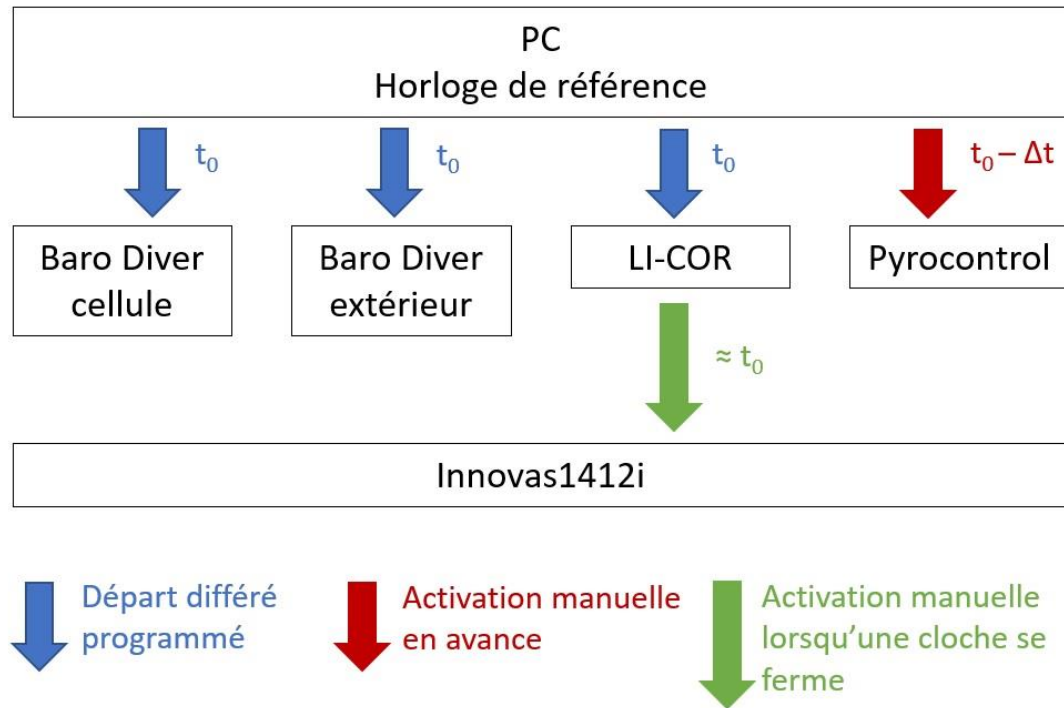


Figure II-21 : Gestion de l'acquisition des différents instruments en fonction de l'horloge de référence utilisée. Les capteurs BaroDiver et le LI-COR (analyseur IRGA + chambre d'accumulation) sont lancés à t_0 grâce à une fonction de départ différé. L'acquisition via le Pyrocontrol est lancée manuellement en avance d'un pas de temps Δt (5 minutes). L'acquisition des analyseurs Innova1412i est lancée manuellement lorsque la première mesure d'accumulation est initiée par le LI-COR à t_0 .

Avec cette version du système d'acquisition, il était toutefois possible de récupérer les données quotidiennement, permettant une visualisation et un contrôle très serré du déroulement de l'expérience tout en limitant les perturbations apportées par l'opérateur.

2.3.1.2. Deuxième version

Comme décrit précédemment, avec la première version du système d'acquisition, l'entrée dans la cellule climatique, les manipulations à effectuer pour récupérer les données, et la synchronisation des données étaient problématiques. De plus, l'ajout d'un spectromètre de masse mesurant les concentrations de nombreuses espèces gazeuses à différents endroits dans les colonnes en plus des chambres d'accumulation a nécessité la mise en place d'un nouveau système d'acquisition. Nous avons donc développé un dispositif permettant de ne plus entrer dans la cellule climatique. Afin de conserver un contrôle visuel sur l'expérience (mouvement des chambres d'accumulation, croissance des plantes...) depuis l'extérieur, nous avons mis en place des caméras permettant la surveillance en temps réel ainsi que les captures d'image. Pour réaliser tout cela, il a fallu assembler différents outils

informatiques mais aussi électroniques comme résumé dans la Figure II-22. Le fait d'avoir une seule entrée d'air sur le spectromètre de masse mais plusieurs voies d'échantillonnage rend nécessaire un contrôle-commande précis afin de (i) synchroniser le spectromètre de masse, les vannes multivoies et les mouvements des chambres d'accumulation et de (ii) connaître à chaque pas de temps où est effectuée la mesure (dans un des niveaux d'une colonne ou dans une chambre d'accumulation). Pour cela, j'ai été aidé par l'équipe de l'Ecotron IleDeFrance qui a réalisé des développements électroniques et informatiques.

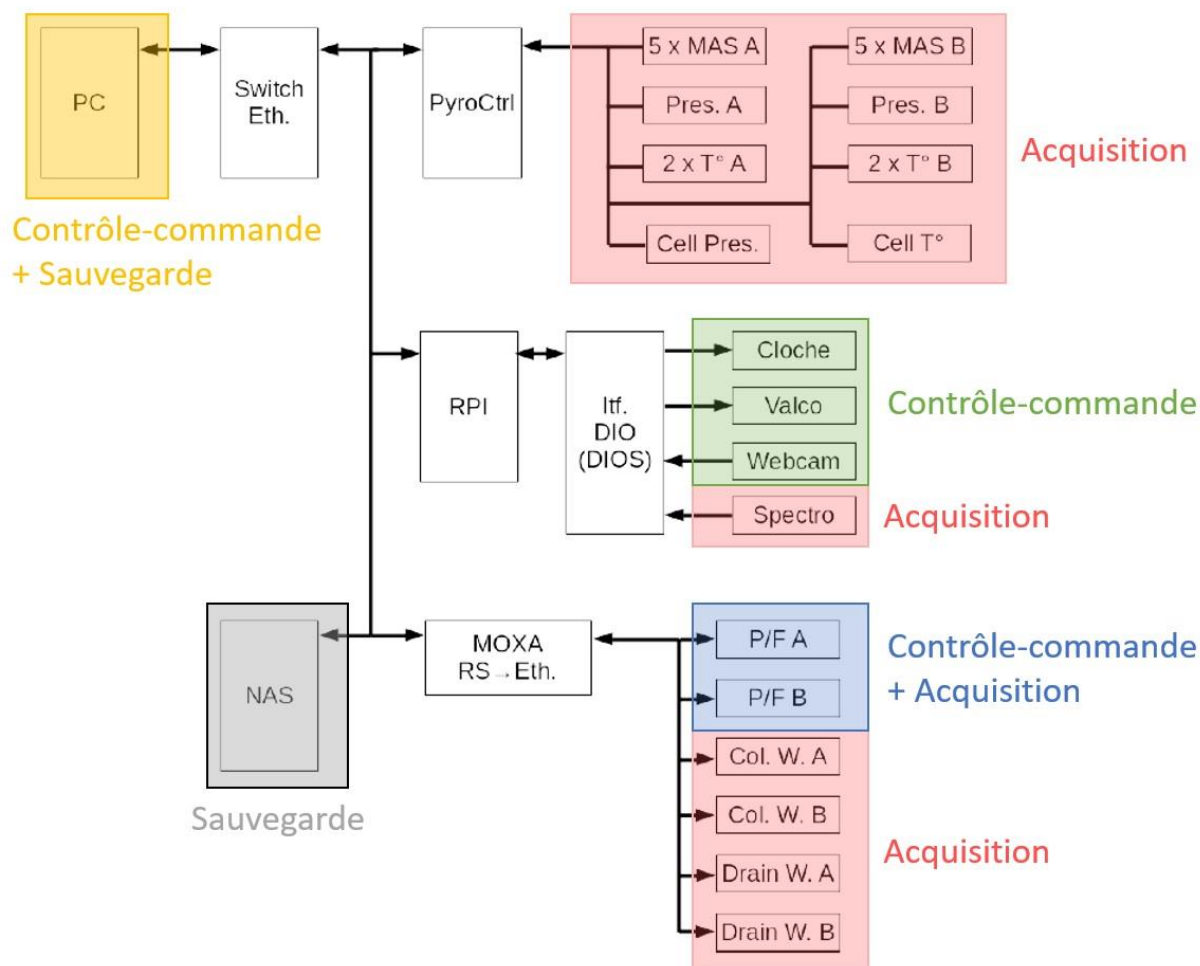


Figure II-22 : Structure matérielle de la nouvelle chaîne de contrôle-commande, d'acquisition et de sauvegarde du dispositif expérimental v2.

2.3.1.2.1. La partie contrôle-commande

La partie contrôle-commande assure les fonctions suivantes : (i) piloter le système LI-COR pour contrôler la fermeture et l'ouverture des chambres d'accumulation, (ii) piloter la rotation de la vanne multivoie Valco afin de sélectionner la voie d'échantillonnage. Le système de contrôle commande est composé d'un ordinateur miniature Raspberry Pi, d'une carte électronique de commandes pour la

vanne multivoies et les chambres d'accumulation, et d'un code Python permettant la gestion des lignes de commandes à envoyer entre chacun des éléments. Nous avons choisi de faire du spectromètre de masse le maître de toute la chaîne de commande, car c'est vers lui que chaque prélèvement de gaz est dirigé pour analyse. Le principe est le suivant : sur le logiciel du spectromètre de masse, il est possible de paramétrer un emploi du temps des analyses, donnant la durée d'une analyse sur chaque voie, tout en programmant à l'avance l'ensemble des voies qui seront à analyser. Le Raspberry Pi va, au même moment, traiter l'information envoyée par le spectromètre de masse, indiquant à la vanne VALCO quelle voie il souhaite échantillonner. L'information de la voie sélectionnée est relayée par un lecteur codé en BCD. Ce signal BCD, repris par le Raspberry Pi, est envoyé à la vanne multivoie pour sélectionner la bonne voie de mesure. Enfin, si la voie sélectionnée correspond à une chambre d'accumulation, alors une impulsion électrique est envoyée au moteur de la chambre d'accumulation afin de la fermer en début de mesure, et de l'ouvrir en fin de mesure. La course des chambres d'accumulation est initialement pilotée par le logiciel propriétaire ou par un bouton poussoir à action mécanique directement sur le support des chambres. Parce que le spectromètre de masse a pour but de nous affranchir des analyseurs LI-COR (et Innoval412i), le pilotage par le logiciel LI-COR n'était plus possible. Une impulsion électrique est alors générée par le système de pilotage, permettant d'imiter l'action d'une pression sur le bouton poussoir, l'ouverture et la fermeture des chambres de manière automatique. Une difficulté résiduelle était de savoir si la chambre était ouverte ou fermée, notamment en cas d'arrêt inopiné. Le développement réalisé dans cette seconde version du système d'acquisition est un atout considérable dans la gestion d'une expérience en cellule climatique car il permet l'automatisation complète de l'acquisition des données, en haute-résolution et long-terme sans avoir à entrer dans la cellule climatique. Il permet également l'utilisation d'un spectromètre de masse, dont les capacités d'analyse sont très largement supérieures à celle d'un analyseur de CO₂ de type IRGA, même couplé à un analyseur photoacoustique comme nous l'avons fait dans une première version.

2.3.1.2.2. La partie acquisition

Dans la seconde version d'ESCAPE avec l'intégration d'un spectromètre de masse, nous avons souhaité réaliser un montage permettant l'acquisition synchronisée et automatique des données de tous les instruments avec une seule base de temps commune à toutes les mesures. Cela se fait en s'affranchissant des logiciels propriétaires. Le système que nous avons développé se base toujours sur le PC d'instrumentation. Ce dernier est relié à un switch Ethernet permettant la communication avec les 4 autres éléments suivants :

- **PyroControl** : il permet l'acquisition des signaux des 5 sondes de teneurs en eau, des 2 sondes de températures et du capteur de pression différentiel de chaque colonne, en plus des capteurs de pression et de températures de la cellule climatique.
- **Raspberry PI et carte numérique DIO** : ces deux éléments permettent de contrôler l'ouverture et la fermeture des chambres d'accumulation, la rotation de la vanne multivoie Valco, la capture d'image via les webcams dans la cellule climatique ainsi que l'acquisition des mesures par le spectromètre de masse.
- **Moxa** : il permet d'assurer la communication et l'acquisition des signaux envoyés par les débitmètres d'injection, les régulateurs de pression d'injection, les balances situées sous chaque colonne et les balances de suivi du drainage.

Toutes ces données sont récoltées sur le PC d'instrumentation afin d'être sauvegardées au format .csv et être affichées en temps réel sur l'écran. Cette option permet de vérifier sur place, ainsi qu'à distance, en temps réel, si l'expérience se déroule correctement ou, au contraire, de savoir s'il faut intervenir pour corriger les éventuels problèmes. La sauvegarde est réalisée par un script Python qui permet de récupérer, jour après jour, les fichiers de chaque donnée dans un formalisme identique (pour les dates et les séparateurs de colonne notamment), ce qui est un avantage pour le traitement de données.

2.3.2. Traitement des données

Une fois les données sauvegardées, il est possible de les exporter afin de les traiter. Dans le cadre de mes expériences au vu du nombre d'instruments, du temps d'expérimentation et du pas de temps choisi, le traitement de données a été optimisé de sorte à pouvoir suivre, en temps réel, l'évolution d'une expérience de manière semi-automatique. Pour cela, j'ai codé un script ainsi que plusieurs fonctions sous Matlab. Le script étant similaire pour les deux versions du système d'acquisition, je n'en ferai qu'une seule description, en mentionnant les différences lorsqu'il y en a.

Ce script récupère tous les fichiers de données stockés dans les répertoires associés afin de les lire et de créer toutes les variables associées. Durant cette étape, un nettoyage est opéré de sorte à retirer toutes les valeurs non-assignées liées à des erreurs lors de l'acquisition (coupure de courant, coupure de communication, etc.), à concaténer chaque série temporelle de données sous une seule variable ainsi qu'à homogénéiser les formalismes des dates pouvant varier d'un instrument à un autre (lorsqu'une seule base de temps et le script Python approprié n'étaient pas encore utilisés). Le deuxième rôle de ce script est de faire appel aux fonctions qui vont permettre de calculer un flux de gaz à partir des mesures de concentrations quel que soit l'analyseur connecté à la chambre d'accumulation (Innova1412i, Spectromètre de masse par exemple). Pour l'analyseur LI-COR, les

valeurs de flux de CO₂ étaient directement déterminées par l'instrument à partir des mesures de concentration et pouvaient être retravaillées au besoin à l'aide d'un logiciel fourni. Le détail de la procédure de calcul de flux est décrit dans la section suivante. Le troisième rôle de ce script est de permettre la mise en forme graphique automatique des données. Enfin, le dernier rôle de ce script est de comparer les données expérimentales avec les résultats de modélisations simples du transport des gaz que j'ai codées afin de fournir un cadre interprétatif au premier ordre. Les équations utilisées pour ce modèle d'advection-dispersion dans la colonne de sol en 1D sont définis dans le Chapitre 1. La modélisation du transport des gaz et les différents calculs effectués seront abordés dans le Chapitre 4.

2.3.3. Calcul des flux de gaz à partir des mesures de concentrations avec la chambre d'accumulation

La première chose à effectuer avant de réaliser le calcul est de repérer, pour chaque variable, toutes les séquences de mesures réalisées lorsque la chambre d'accumulation est fermée. Lorsqu'une séquence de mesure est repérée, les données de concentration, de température et de pression associées à cette séquence sont isolées. Pour chaque séquence, nous calculons alors le flux grâce à l'équation suivante :

$$\Phi_{gas} = \frac{P_{baro} M_{gas} V}{RT} \left(\frac{dC}{dt} \right)_{t \rightarrow 0} \quad (2.2),$$

avec Φ_{gas} le flux du gaz étudié ($\mu\text{mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$), M_{gas} la masse molaire du gaz ($\text{g} \cdot \text{mol}^{-1}$), P_{baro} la pression barométrique (mbar), V le volume de la chambre d'accumulation (m^3), S la surface recouverte par la chambre d'accumulation (m^2), R la constante des gaz parfaits ($8.3145 \text{ J mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$), T la température (K) et $\left(\frac{dC}{dt} \right)_{t \rightarrow 0}$ la dérivée, lorsque t tend vers 0, de la concentration du gaz sous la chambre d'accumulation enregistré en fonction du temps sur la séquence isolée.

Bien que l'analyseur fourni par LI-COR permette de déterminer automatiquement $\left(\frac{dC}{dt} \right)_{t \rightarrow 0}$ pour le CO₂ afin d'en déterminer le flux, il a été nécessaire, dans notre cas, de déterminer la valeur de cette dérivée afin d'obtenir les flux à partir des mesures de concentrations faites par l'analyseur Innova1412i ou le spectromètre de masse. Il existe différentes approximations permettant de déterminer ce paramètre à partir des mesures de concentrations au cours du temps ([Levy et al., 2011](#)). J'ai choisi d'utiliser l'approximation exponentielle qui est la méthode la plus utilisée et celle implémentée dans le logiciel LI-COR. Cette approximation exponentielle est donnée par l'équation suivante, d'après les travaux de [Hutchinson and Mosier \(1981\)](#) :

$$C(t) = C_{max} - (C_{max} - C_0)e^{-a(t-t_0)} \quad (2.3)$$

avec C_{max} (ppm) la valeur asymptotique de la concentration, C_0 (ppm) la concentration initiale sous la chambre d'accumulation à t_0 après sa fermeture et a (s^{-1}) une constante définissant la courbure de l'approximation. Parce qu'il peut y avoir un délai de quelques secondes entre la mesure de concentration et la fermeture de la cloche, t_0 peut être négatif ou positif. À partir de l'équation (2.3) le terme $(\frac{dC}{dt})_{t \rightarrow 0}$ s'écrit :

$$(\frac{dC}{dt})_{t \rightarrow 0} = a(C_{max} - C_0) \quad (2.4)$$

Comme le montre l'équation (2.3), la convergence de l'approximation est dépendante des paramètres C_{max} , C_0 , t_0 et a . Cependant, ces paramètres ne sont pas mesurés précisément, excepté pour C_0 qui prend la valeur de la concentration mesurée juste avant la séquence d'accumulation : il est donc nécessaire de les trouver. Pour cela, j'ai réalisé une fonction me permettant d'initialiser et de calculer les 4 paramètres en les faisant converger après plusieurs centaines d'itérations, et ceci, pour chaque mesure de flux (1 mesure de flux par heure, pour chaque colonne). Lorsque l'approximation est satisfaisante, les paramètres C_{max} , C_0 , t_0 et a sont donc déterminés et utilisés afin de calculer le flux d'après les équations (2.2) et (2.4).

Afin de garantir la fiabilité des calculs de flux avec d'autres analyseurs de gaz que celui fourni par LI-COR, j'ai comparé les flux de CO_2 calculés par le système LI-COR avec les flux que j'ai calculé à partir des concentrations de CO_2 mesurées par l'analyseur Innova1412i.

Cette étude comparative est nécessaire car, pour une accumulation de 20 minutes, le système LI-COR utilise 1200 mesures de concentrations de CO_2 alors que l'analyseur Innova1412i ou le spectromètre de masse sont limités à moins de 10 mesures, ce qui pourrait être vu comme une perte de précision sur la détermination des paramètres via l'approximation rapportée à l'équation (2.3).

Avec le système LI-COR, je recommande de faire attention aux paramètres de calcul des flux de CO_2 . En effet, le logiciel utilise, par défaut, des paramètres de convergence pouvant se révéler insuffisants. Le système LI-COR utilise l'approximation exponentielle, qu'il calcule et fait converger pendant 10 itérations. Le critère d'arrêt de convergence est une somme des moindres carrés inférieure à 10^{-1} . Il s'est avéré qu'au cours des différents tests de validation, cette configuration donnait parfois des flux erronés. Il a fallu que j'initialise le nombre d'itérations au maximum (soit 99) et que j'abaisse le critère de convergence à 10^{-4} pour avoir la meilleure approximation possible et donc le meilleur calcul de flux donné par le système LI-COR (Tableau II-1).

Pour le calcul des flux de CO_2 , comme de SF_6 , à partir des mesures de concentrations de l'analyseur Innova1412i, j'ai déterminé l'approximation en utilisant la fonction « lscurvefit » dans Matlab pour

l'équation de l'approximation exponentielle (2.3). J'ai initialisé les paramètres C_{max} , t_0 et a , fixé la concentration C_0 et configuré les critères de convergences pour déterminer les paramètres de l'approximation. Une fois la convergence terminée, les 3 paramètres sont déterminés et le flux est calculé. L'initialisation des paramètres C_{max} , t_0 et a est à adapter en fonction des conditions expérimentales. Cependant, je recommande de les fixer à des valeurs suffisamment grandes, de façon à pouvoir couvrir tous les cas possibles, sans avoir à y retoucher manuellement. La configuration des critères de convergence a pour but d'optimiser la convergence en augmentant le nombre d'itérations jusqu'à une valeur maximale de 400 et en baissant les fonctions de tolérance au plus bas, dans mon cas 10^{-6} (Tableau II-1). Ces critères poussant le code à réaliser un maximum d'itérations permettent d'obtenir la meilleure convergence, malgré un nombre restreint de valeurs de concentrations (5 dans notre cas, au lieu de 1200 pour le système LI-COR) et une initialisation généralisée des paramètres de départ.

L'étude comparative s'est portée à la fois sur les mesures de flux de CO_2 et sur les trois paramètres C_{max} , t_0 et a après convergence. La comparaison des flux de CO_2 montre que les méthodes donnent des résultats similaires avec des différences allant de 1 à 10 % (Figure II-23). Des différences de même ordre de grandeur sont observées pour les paramètres C_{max} , t_0 et a , expliquant les variations obtenues lors des calculs de flux.

Bien que nous ayons ainsi montré que 5 points de mesures sont suffisants pour réaliser des mesures de flux, je recommande fortement, lorsque cela est possible, d'augmenter le nombre de mesures de concentration tout en réduisant le temps d'accumulation, pour une meilleure précision.

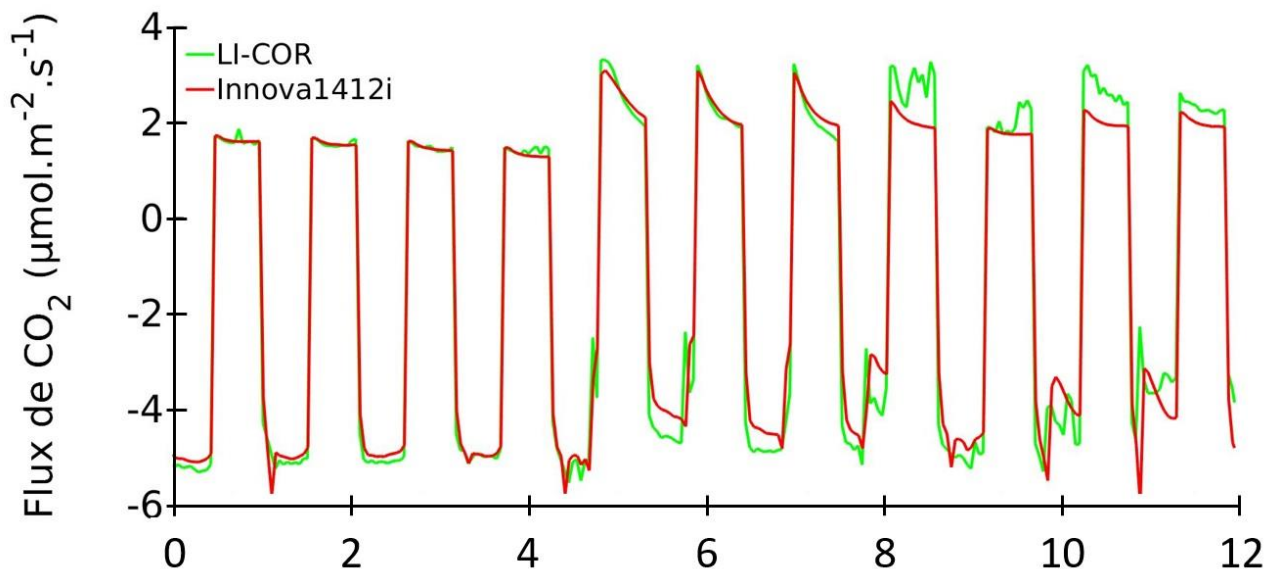


Figure II-23 : Étude comparative des flux de CO₂ calculés par le système LI-COR et par la méthode générale développée sous Matlab et appliquée aux concentrations de CO₂ mesurées par l'analyseur Innova1412i. La période d'essais de 12 jours a utilisé le dispositif expérimental ESCAPe_v1 présenté dans la Figure II-2 en présence de plantes. Les flux négatifs de CO₂ correspondent aux périodes de jour et de photosynthèse. Les flux positifs de CO₂ correspondent aux périodes de nuit et de respiration.

Tableau II-1 : Paramètres utilisés pour la détermination des flux de gaz. Comparaison de la méthode utilisée par le système LI-COR pour le CO₂ avec la méthode générale que j'ai développée pour le CO₂ et le SF₆.

Modèles	Nombre de points de concentration	Nombre maximal d'itérations	Valeurs initiales des paramètres utilisés à la détermination des flux de CO ₂	Valeurs initiales des paramètres utilisés à la détermination des flux de SF ₆ *
			*	
Système LI-COR Approximation linéaire ou exponentielle	1200	99	C ₀ , C _{max} , t ₀ , a déterminés par LI-COR	N.A.**
Méthode développée Approximation exponentielle généralisée	5	400	C ₀ = dernière concentration avant fermeture de la chambre, C _{max} = 200, t ₀ = 0, a = 0.001	C ₀ = dernière concentration avant fermeture de la chambre, C _{max} = 500, t ₀ = 0, a = 0.001

*Concentration en ppm. **N.A. : Non assigné.

2.4. Conclusion

Les flux de gaz à l'interface sol-atmosphère sont sujets à de nombreuses variations selon les conditions environnementales et météorologiques. Ces variations ont pour origine des processus physiques, chimiques et biologiques intervenant en même temps dans les conditions naturelles sur le terrain. Nous présentons ici une approche réductionniste développée au cours de mon projet de thèse au sein du CEREEP Ecotron IleDeFrance.

Cette approche consiste à réaliser une percolation de gaz à la base d'une colonne de sol soumise à des conditions expérimentales contrôlées, à la surface de laquelle le flux de gaz est mesuré. Pour cela, j'ai développé un dispositif expérimental innovant appelé « ESCAPe » pour Experimental Setup for Controlled Analysis of gas Percolation. Ce dispositif permet un suivi, sur une longue période d'expérimentation, avec une haute résolution temporelle. Dans la dernière version de ce dispositif, il est possible de mesurer le flux d'un très grand nombre d'espèces gazeuses à la surface de la colonne ainsi qu'un profil de concentrations le long de la colonne, grâce à un spectromètre de masse à faible débit. L'expérience est réalisée dans une cellule climatique de la plateforme ECOLABs de l'Ecotron IleDeFrance.

Les innovations techniques suivantes ont été réalisées :

- Une forte instrumentation associée à un contrôle important des conditions expérimentales.
- Une mesure de flux réalisée à l'aide d'une chambre d'accumulation automatique, quel que soit l'analyseur connecté (initialement un analyseur photoacoustique couplé à un analyseur de CO₂ à infrarouge, puis pour finir un spectromètre de masse), permettant de mesurer le flux de n'importe quel gaz traceur.
- Une mesure de la concentration en gaz traceur réalisée in-situ le long d'une colonne de sol non-saturé en eau grâce à des embouts d'échantillonnage munis de capillaires Membrana.
- Le pilotage des chambres d'accumulation et l'acquisition simultanée et automatique de tous les paramètres, quels que soient les instruments, grâce au développement électronique et informatique d'une nouvelle centrale d'acquisition accompagnée d'un développement informatique de l'acquisition et du contrôle-commande.
- La possibilité d'injecter des gaz à différents régimes, que ce soit en advection ou en diffusion, l'advection pouvant se faire à débit constant ou à gradient de pression constant.

- Le suivi du bilan en eau de la colonne à l'aide de balances à très grande précision.
- Le choix du sol ou tout autre matériau granulaire, et la possibilité de cultiver des plantes.

Tous ces développements, incluant l'instrumentation, l'acquisition et le traitement de données, ont permis de mettre en place un dispositif complet pour l'étude du transport de gaz dans les milieux poreux sec ou non-saturés en eau. L'avantage de ce dispositif expérimental réside dans sa forte instrumentation et dans son contrôle important des conditions expérimentales, pour des expériences suivies aussi bien à long terme qu'à haute résolution. Ceci permet de décorrélérer les différents processus impliqués dans le contrôle des flux de gaz mesurés à la surface, en s'affranchissant de certaines variations (température par exemple) ou en mesurant avec précision celles qu'il est impossible de contrôler (pression barométrique par exemple). Enfin, ce dispositif à l'échelle du laboratoire permet d'imposer successivement des conditions expérimentales que l'on peut implémenter par la suite dans des codes de transports réactifs. Ces allers-retours entre l'expérimentation et la modélisation sont facilités grâce à ce dispositif, permettant à l'expérimentation d'améliorer les codes de transport mas également aux codes de transport d'aider à dimensionner les futures expériences.

3. Processus physiques, chimiques et biologiques contrôlant les flux de gaz dans les colonnes de sol

3.1. Introduction

Les résultats obtenus au cours des différentes expériences réalisées sur le dispositif expérimental détaillé dans le Chapitre 2 sont présentés dans cette section. Une partie de ces résultats a été publiée dans un article publié en 2020 dans *Vadose Zone Journal*. Cet article est reproduit *in extenso* ci-dessous après une version française du résumé. Les résultats présentés dans l'article font ensuite l'objet d'une discussion complémentaire. Cette discussion porte sur des aspects que je n'ai pas pu discuter, faute de place dans l'article, et sur des questionnements qui ont émergé après la publication de l'article. J'ai aussi obtenu d'autres résultats que ceux publiés. Ces résultats, présentés ci-dessous, constituent des résultats préliminaires mobilisables pour imaginer de futures expériences avec le dispositif ESCAPe.

3.2. Influence biologique sur les flux de gaz révélée par un suivi à haute résolution de colonnes de sol en conditions non saturées

Les résultats présentés dans cette section ont fait l'objet d'un article publié en 2020 dans *Vadose Zone Journal*. Un résumé est présenté dans la partie 3.2.1. et l'article en lui-même constitue la partie 3.2.2.

3.2.1. Résumé de l'article

L'expérience présentée avait pour objectif de mettre en évidence le contrôle des processus physiques, chimiques et biologiques sur le flux d'un gaz traceur (ici le SF₆) mesuré à la surface de colonnes de sable non-saturé en eau, en présence ou non d'un couvert végétal. Pour cela, deux colonnes identiques ont été utilisées. Une colonne a été laissée sans plante (servant ainsi de colonne témoin), l'autre a été ensemencée de graines d'herbacée *Festuca Arundinacea*. Les

deux colonnes ont été placées en cellule climatique dans un ECOLAB de la plateforme Ecotron IleDeFrance. La température a été maintenue constante (25 °C) ; un cycle diurne de lumière a été imposé ; la composition atmosphérique a été renouvelée toutes les heures et du SF₆ à 10 000 ppm (dans 21 % d'O₂, N₂) a été injecté à différents débits maintenus constants à la base des deux colonnes. Les flux de CO₂ et de SF₆ à la surface de chacune des colonnes ont été mesurés en continu.

L'acquisition sur le long terme et à haute résolution des données collectées par les différents capteurs (teneur en eau, température, pression atmosphérique, surpression d'injection, débit d'injection, masse du système), dans cette expérience réalisée en conditions hautement contrôlées, ont permis de mettre en évidence différents mécanismes de modulations des flux de gaz mesurés à la surface des colonnes. Ces modulations ont pour origines les variations barométriques, les variations de teneur en eau et le métabolisme des plantes. Ces moteurs physiques, chimiques et biologiques ont pour principal effet de modifier le gradient de pression entre la base et la surface des colonnes. On observe ainsi que :

- Les flux de gaz des deux colonnes ont diminué lors d'une augmentation rapide et importante de la pression barométrique, réduisant le gradient de pression appliqué aux deux colonnes.
- Dans des conditions asséchantes, les flux de gaz à la surface des deux colonnes ont diminué. L'évaporation de l'eau a augmenté la porosité et la perméabilité relative aux gaz, ce qui a diminué le gradient de pression.
- Durant la nuit, les flux de gaz ont augmenté pour la colonne avec plantes. Durant cette période, l'O₂ a été consommé au niveau de la zone racinaire pour produire du CO₂ qui se solubilise plus facilement dans l'eau. Cette succession de processus biologiques et chimiques a réduit localement la pression dans la zone racinaire, ce qui a augmenté le gradient de pression entre la base de la colonne et la zone racinaire et donc les flux de gaz, y compris pour les espèces inertes.
- Durant le jour, les flux de gaz ont diminué pour la colonne avec plantes. La photosynthèse prédominant alors sur la respiration, la transpiration associée a augmenté la perte d'eau passant du sol dans l'atmosphère comme dans le cas de l'évaporation.



Cette expérience démontre l'existence et l'importance de différents processus physiques, chimiques et biologiques à l'œuvre dans le sol et influençant les flux de gaz mesurés à l'interface sol-atmosphère. La prise en compte de ces différents processus est particulièrement nécessaire lorsque des mesures de flux ponctuelles doivent être intégrées dans l'espace et/ou

dans le temps pour quantifier des émissions ou lorsqu'elles sont utilisées pour détecter, identifier ou surveiller des sources de gaz souterraines, comme cela est nécessaire dans le cadre de la surveillance de sites d'essais nucléaires souterrains ou de stockage de CO₂.

3.2.2. Biologically-influenced gas fluxes revealed by high-resolution monitoring of unsaturated soil columns (article)

ORIGINAL RESEARCH ARTICLE

Biologically influenced gas fluxes revealed by high-resolution monitoring of unsaturated soil columns

Clement Alibert^{1,2,3}  | Eric Pili¹  | Pierre Barre¹  | Florent Massol²  | Simon Chollet² 

¹Lab. de Géologie de l'ENS, PSL Research Univ., UMR8538, Paris, 75005 France

²CEREEP Ecotron-IDF, CNRS, UMS3194, Saint-Pierre-lès-Nemours, 77140 France

³CEA, DAM, DIF, Arpajon, F-91297 France

Correspondence

Clement Alibert, Lab. de Géologie de l'ENS, PSL Research Univ., UMR8538, 75005 Paris, France.

Email: clement.alibert@ens.psl.eu

Abstract

Modulations of advective gas fluxes at the soil–atmosphere interface were investigated using an enhanced experimental setup developed to perform tracer gas percolation experiments through unsaturated soil columns under well-controlled conditions associated with long-term and high-resolution monitoring. The setup design includes the effect of watering and evaporation cycles, barometric pressure fluctuations, variations in the injection pressure, and plant metabolism. Although injected at a constant flux at the base of the columns, SF₆ surface fluxes varied on a timescale of hours to days. These modulations are controlled by (a) barometric pressure, (b) water content and distribution, and (c) plant metabolism. All three mainly act on the pressure gradient. Surface gas fluxes decrease under drying conditions, which increases gas porosity and the relative gas permeability and lowers the pressure gradient. Respiration of plant roots is shown to be responsible for daytime–nighttime oscillations of the tracer flux. During nighttime, O₂ consumption and CO₂ production locally lowers the pressure gradient up to the root zone due to the higher solubility of CO₂ in pore water, resulting in an increased SF₆ flux at the surface. During daytime, enhanced water loss by evapotranspiration associated with photosynthesis dominated the respiration effect and resulted in decreasing surface gas fluxes, as generally shown for drying conditions. Surface gas fluxes are therefore controlled by combined physical, chemical, and biological processes. This has important consequences, notably when discrete flux measurements are integrated in space and/or in time to quantify emissions or when used for detecting, identifying, or monitoring underground gas sources.

1 | INTRODUCTION

Gas transport in soils is highly variable in space and time (Garcia-Anton, Cuezva, Fernandez-Cortes, Benavente, & Sanchez-Moral, 2014; Kuang, Jiao, & Li, 2013; Smith et al.,

2003), leading to modulations of gas fluxes at the soil–atmosphere interface that must be understood. This is of particular importance when discrete flux measurements are integrated in space and/or time to quantify emissions or when flux measurements are used for detection, identification, or monitoring of a subsurface gas source. Many applications are related to greenhouse gases, such as the safety of CO₂ sequestration (Oldenburg, Mukhopadhyay, & Cihan, 2016),

Abbreviations: CEREEP, Centre de Recherche en Écologie Expérimentale et Prédictive; HDPE, high-density polyethylene; ROI, region of interest.

This is an open access article under the terms of the Creative Commons Attribution License, which permits use, distribution and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

© 2020 The Authors. *Vadose Zone Journal* published by Wiley Periodicals, Inc. on behalf of Soil Science Society of America

quantification of volcanic emissions (Camarda, Prano, Cappuzzo, Gurrieri, & Valenza, 2017), and C release from permafrost thaw (Schuur et al., 2015). Other applications are related to volatile contaminant plumes (natural attenuation or vapor extraction monitoring; Khan, Husain, & Hejazi, 2004), gas release in relation to hydraulic fracturing and shale gas production (Norris, Turcotte, Moores, Brodsky, & Rundle, 2016), and emissions of potentially toxic methylated trace elements from soils (Vriens, Lenz, Charlet, Berg, & Winkel, 2014). A third category of applications with growing importance is the detection of underground nuclear explosions in the framework of the Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty (Carrigan & Sun, 2014; Carrigan, Sun, & Simpson, 2019).

Due to the complexity and high variability of gas-emitting natural systems, a reductionist approach is needed to decipher and quantify all processes influencing gas fluxes between soil and atmosphere. It would help in better constraining process-based models and achieving more accurate measurements and interpretations in field conditions. This has already been proposed by several groups that conducted column experiments. Small-size columns (1- to 10-cm scale) proved to be particularly relevant to study CO₂ respiration (Guo, Nishimura, Imoto, & Sun, 2015; Midwood, Thornton, & Millard, 2008). Decimeter- to meter-scale columns allow achieving experimental conditions closer to field conditions. Evans et al. (2001) assessed, using a dry sand column, the performance of accumulation chambers for volcanic or metamorphic CO₂ fluxes much higher than normally encountered in soil respiration studies. With simple laboratory sand column experiments, Ding, Kennedy, Evans, and Stonestrom (2016) and Sathaye, Larson, and Hesse (2016) evaluated the fractionation of noble gases as a tool to quantify gas dynamics in unsaturated porous media. These attempts used simplified abiotic systems and constant parameters. Some complexity of the natural systems was addressed using heterogeneous porous media (Ding, Kennedy, Molins, Kneafsey, & Evans, 2017; Plampin, Illangasekare, Sakaki, & Pawar, 2014), various soil textures with variable water content (Yang, Fan, & Jones, 2018), or sandstone cores (Kilgallon et al., 2018). However, there have been no experimental studies permitting evaluation of the coupling of physical, chemical, and biological processes on gas fluxes in soils. The purpose of the present study is to fill this gap using an innovative experimental setup that allows long-term and high-resolution gas flux measurements on an instrumented unsaturated meter-scale soil column under controlled yet variable environmental conditions in a climatic chamber. This setup was tested for different injection conditions of SF₆ (inert tracer gas) at the base of an unsaturated sand column subjected to barometric pressure fluctuations, plant growth, photosynthesis, respiration, lighting cycles, and watering. Another column without plants but subjected to the same tracer injections was simultaneously studied for comparison. The SF₆ and CO₂ fluxes at the soil surface were moni-

Core Ideas

- We performed a tracer gas percolation in unsaturated soil columns with plants.
- We used a long-term and high-resolution monitoring under controlled conditions.
- We show that gas fluxes depend on physical, chemical, and biological processes.
- Daytime modulations on gas fluxes are due to evapotranspiration from photosynthesis.
- Nighttime modulations on gas fluxes are due to plant-root respiration.

tored with a 1-h time resolution during several months. While constant-mass flowrate injections were applied at the base of the columns, gas fluxes at the soil surface were shown to be controlled and modulated by processes of physical (pressure gradient, porosity), chemical (gas solubility), and biological (evapotranspiration, respiration) origins that are individually identified and discussed.

2 | MATERIALS AND METHODS

The experimental setup consisted of an instrumented vertical column filled with porous media completed by a gas injection unit at its base and a flux measurement device at its top. This experiment was performed in a climatic chamber. Setup and methods are presented below.

2.1 | Instrumented unsaturated column

A high-density polyethylene (HDPE) pipe of 36.5-cm i.d. (hence ~0.1 m² of surface area) formed a column containing the porous medium under investigation. The height of the column was adjusted to fit the water retention curve of the medium. In our application (see case study below), the column had a total length of 70 cm (Figure 1). A bottom plate with a central hole equipped with a stopcock was bolted to a flange at the base of the column. Above the bottom plate, a perforated polyvinyl chloride (PVC) annular mount supports a stainless-steel grid. This constituted a 12-cm-high gas injection unit (~12 L). A stainless-steel mesh filter sandwiched between two geotextiles rested on the grid and prevented the porous medium from falling into the injection unit. This defined the base of a 58-cm-high column (~60.7 L) to be filled with porous media. Ports equipped with air- and water-tight bulkhead connectors were installed along the column, allowing

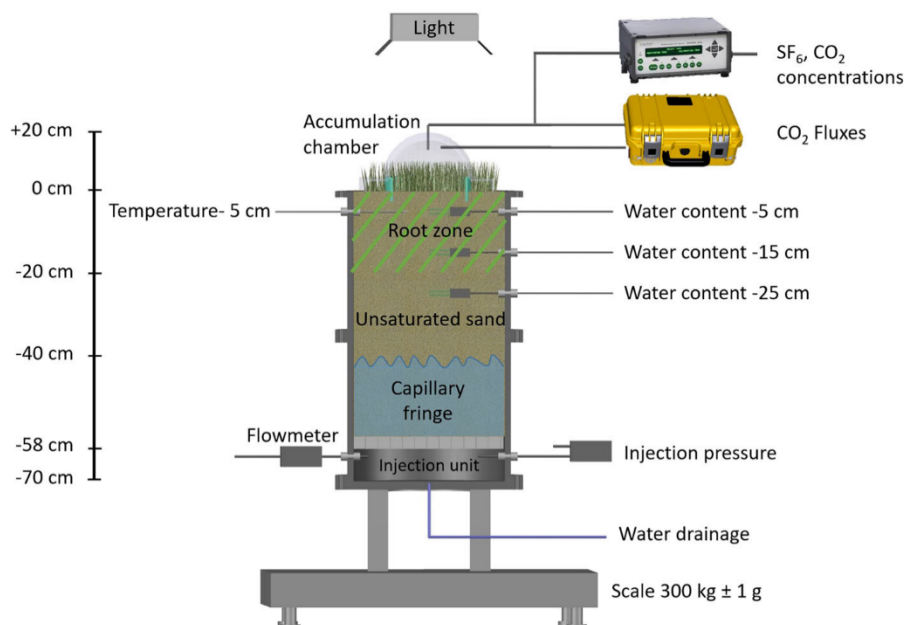


FIGURE 1 Cross-section of the experimental setup. From bottom to top: scale for water mass monitoring, column holder with water drainage system, chamber for tracer gas injection, porous membrane with membrane holder, unsaturated sand column (here shown with plants and with estimated root zone and capillary fringe), accumulation chamber in place for flux measurement with on-line gas monitoring by two gas analyzers (upper: LumaSense Innova 1412i, lower: LI-COR 8104C), a lighting system, and all additional sensors. The diameter of the column is 0.365 m with a surface area of 0.105 m². The diameter of the accumulation chamber is 0.203 m with a surface area of 0.0317 m²

insertion of probes for various measurements or for tubing for obtaining gas and water samples. Gas and water sampling were not performed for this particular experiment. One port (at 5-cm depth) was used for inserting a temperature sensor (Pyrocontrol, PT100). The entire system was then pressure tested and found to be air tight. As shown in Figure 1, surface gas flux measurements were performed with an automated accumulation chamber on line with an infrared CO₂ analyzer (LI-COR 8104C) and a photo-acoustic field multi-gas analyzer (LumaSense, Innova 1412i) equipped for the determination of SF₆ and CO₂ concentrations. Details are given in the supplemental material.

The volumetric water content of the unsaturated porous medium in the column was monitored by means of probes measuring the dielectric constant of the soil (Decagon, MAS-1) inserted laterally at three different depths (5, 15, and 25 cm). In order to minimize adverse effects on gas and water flow in the column, the number of insertions and the size of the probes were restricted. Therefore, we did not monitor the capillary pressure and used the water retention curve determined in the laboratory for the studied porous medium. In addition, the total water budget was monitored by setting the instrumented column on a scale (Sartorius, Combics 1) with a capacity of 300 kg and an accuracy of 10⁻³ kg, which corresponds to better than 0.01 mm of water precipitation or evaporation.

All the sensors acquired data with a 5-min time resolution. We developed an acquisition system for all the instruments

used in this experiment, based on Python, which recorded all parameters and measurements on the same terminal with a common time base, instead of using the various commercial software provided with the instruments with their time-stepping limitations. Signals from sensors (0–5 V or 4–20 mA) were collected by a Pyrocontrol PDM 8AI data logger linked to a computer.

2.2 | Gas injection design

A mixture of gases containing 10,000 μL L⁻¹ of SF₆, with 20.9% O₂ and balanced in N₂, was injected at the base of the column through the injection unit. For advection–dispersion tests, tracer gas injections occurred at constant flow rate. A thermal mass flow regulator (Brooks Instruments, SLA 5850) was set to the target value, and the pressure in the injection unit was monitored. The differential pressure between the injection unit and the atmosphere was measured using a SETRA 267 pressure transducer, with a sensitivity of 2 Pa. Pressures and flowrates were recorded with accuracies better than 1%. For tracer tests performed in the diffusion regime instead of advection, the pressure in the injection unit was maintained equal to the ambient barometric pressure by opening one port to the atmosphere while injection of tracer gas in the chamber still occurred at 10 ml min⁻¹. In this manner, the tracer concentration applied at the bottom of the sand columns was kept constant without any pressure gradient, insuring diffusive conditions.

2.3 | Climatic chamber and experimental conditions

In order to better describe the influence of plants, an experiment using a column with plants (hereafter referred to as the plant column) and a control experiment using a column without plants (hereafter referred to as the control column) were run simultaneously. The complete setup is shown in Supplemental Figure S1.

The two columns were placed in a 13-m³ climatic chamber (Ecolab) at the Centre de Recherche en Écologie Expérimentale et Prédicative (CEREEP)-Ecotron IleDeFrance center. Details and some applications of the Ecolab are given in Verdier et al. (2014). The ambient pressure in the climatic chamber was that of the atmosphere. Pressure and temperature inside the climatic chamber and outside were monitored with a Baro-Diver (Schlumberger Water Service) with a 5-min time resolution.

2.4 | Configuration of the studied case and material properties

Although the section above presented the general setup, the particular configuration of the studied case is detailed here. Two HDPE columns were filled with a homogeneous Fontainebleau sand (Sibelco NE 03) with a silica content larger than 99.88% (w/w) and a median grain size (D_{50}) of 213 μm . Each column was filled up to the top with successive 8- to 10-cm-thick layers of dry sand compacted by sedimentation in water, using a volume of water twice the volume of sand in the column. The volume of water then increased proportionally with the filling of the column. Each addition of a sand layer was followed by a draining period until almost no flow was observed at the bottom of the column; then, the same volume of water was added again twice. In this manner, we obtained a well-packed unsaturated sand column. The water retention curve of the studied sand was obtained from a combination of several laboratory measurements made at Institut National de la Recherche Agronomique (INRA) Avignon (France). From this, the capillary fringe of such a sand column was anticipated to rise up to ~ 20 cm (i.e., 38 cm below the free surface). The intrinsic permeability of the sand column was estimated to be $3.6 \times 10^{-12} \text{ m}^{-2}$.

In order to determine the maximum gas porosity of such sand columns, we used a column only filled with dry sand, using vibrations and compaction provided by handheld tools instead of sedimentation in water. The total porosity of such a dry sand column was determined to be 0.38 from its total volume and mass, knowing the density of silica (2.65 g cm^{-3}). This porosity was in agreement with results found in the laboratory.

In order to control and monitor environmental conditions, the experiment was performed in a climatic chamber at the CEREEP-Ecotron IleDeFrance. The ambient temperature inside the climatic chamber in this study was regulated at 25 °C. Temperature at the top at the column varied between 25 and 26 °C (depending if lighting was switched on or off). This was in good agreement with the target temperature, which was independent of the external temperature that varied between -12 and $+20$ °C. Drops of temperature at 5-cm depth were observed after watering events with colder tap water. The ambient pressure inside the climatic chamber was equal to the outside barometric pressure and followed natural variations between 980 and 1,030 mbar during the course of the experiment.

Artificial diurnal lighting was set for 12 h of daytime and 12 h of nighttime. To avoid accumulation of SF₆ in the climatic-chamber atmosphere, ambient air was renewed with a time constant of 0.07 s^{-1} . There was no moisture regulation in the chamber atmosphere and no wind. During the experiment, the two columns were kept under drying conditions. In order to maintain their initial water saturation profile, each column was manually and homogeneously watered from the top with the same amount of water using a 60-ml syringe. Usual watering amounted to 1,800 ml, whereas some larger watering events reached 6,000 ml.

The tracer test was carried out using SF₆, an inert tracer gas commonly used that has a very low natural abundance in the atmosphere. A mixture of N₂ (balance), O₂ (20%), and SF₆ ($10,000 \mu\text{l L}^{-1}$) was injected at the base of the columns with various constant flowrates from 10 to 100 ml min⁻¹ in normal conditions (0 °C and 101,325 Pa), as detailed in Table 1. From these values, one can calculate the theoretical flux applied at the base of each column and expected at the surface after a steady state is achieved.

Three weeks before gas injection, the plant column was densely seeded at its top with 8 g of fescue (*Festuca arundinacea* Schreb.) seeds, a perennial grass. The seeds were covered by 3 cm of sand and gently compacted by hand, then watered. More than half of the seeds finally germinated. At the time of tracer injection, the plants already reached a significant size (~ 5 cm). After a growth period of 12 wk, we cut the grass shoots at 2 cm above ground level. Then, we let the plants grow again.

3 | RESULTS

3.1 | Plant growth

During the experiment, the blades of grass (for the plant column) reached a maximum height of 15 cm, before being cut on Day 39, 78 d after seeding. As shown by post-experiment examination (see Supplemental Figure S2), the root zone

TABLE 1 Tracer injection conditions observed SF₆ fluxes and plant status

Parameter	Time					
	0–1 d	1–6 d	6–12 d	12–21 d	21–54 d	54–61 d
SF ₆ , $\mu\text{L L}^{-1}$	10,000	10,000	10,000	10,000	10,000	10,000
Flowrate, ml min^{-1}	100	50	20	10	10	10
Percolation regime ^a	AD	AD	AD	AD	D	AD
Integrated imposed flux ^b , mmol	65	202	69	50	NS ^c	40
Integrated/observed flux ^d , mmol	42/37	163/149	58/52	43/46	NS	31/35
Observed/imposed, %	65/56	81/74	83/75	85/91	NS	77/86
Plant status	Growth	Growth	Growth	Growth	Cut on Day 39	Growth

^aAD, advection–dispersion; D, diffusion only.

^bBy advection only.

^cNS, not significant.

^dAt the surface of the plant and the control columns, respectively.

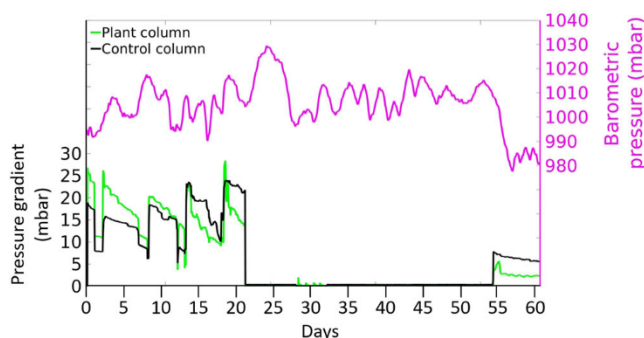


FIGURE 2 Pressure conditions as a function of time (5-min time resolution) during tracer experiments with various injection characteristics as detailed in Table 1, for the plant and the control columns. The pressure gradient is the difference between the pressure in the injection unit at the base of the column and the barometric pressure over a length of 58 cm corresponding to the height of the column. Opening of the injection unit occurred on Days 0, 2, 6–7, 12, 21, and 28

reached a minimum depth of 18 cm, with a dense zone of ~6 cm, a moderately dense zone of ~6 cm, and a sparse zone of ~6 cm or more.

3.2 | Results from long-term and high-resolution monitoring

In this section, we present the pressure conditions, the water budget, and the gas fluxes monitored over a period of 61 d during the tracer experiment.

3.2.1 | Injection pressure

As shown in Figure 2, the pressure of the tracer gas in the injection unit varied between 0 and +30 mbar relative to the barometric pressure, in response to the various targeted flowrates (Table 1). During injection, sudden pressure drops

corresponded to the brief opening of the injection unit to the atmosphere in order to take action on the setup for maintenance (Days 2, 6–7, and 12), to drain out water accumulated due to natural drainage of the soil column (Day 28) or to switch the injection from advection to diffusion (Day 21). During the tracer test in diffusion conditions, pressure in the injection unit was kept equal to that of the atmosphere by opening the chamber to the atmosphere. However, some minor pressure changes could be observed between Days 28 and 32.

3.2.2 | Time and space evolution of water content in the sand columns

The time evolution of the water budget was precisely quantified by monitoring the total mass variations of each column (Figure 3). The water content is expressed relative to the equilibrium water content originally obtained after natural draining of the saturated sand columns shortly after completion. The gain in mass was not corrected for biomass production in the plant column, which remained minor (<0.5%). Three types of water content evolution can be observed: sharp increases, progressive decreases, and sharp decreases. Ordinary watering events lead to sharp mass increases of ~1,800 g, whereas a large watering event lead to sharp mass increases of ~6,000 g. Watering occurred every 5–7 d in the first half of the experiment, then was switched to everyday, while occurring once in 25 d at the end. Sharp mass decreases correspond to water being drained out from the injection unit, whereas progressive mass decreases correspond to evaporation. The evaporation rate is larger in the plant column than in the control column. Periodic changes in the evaporation rate are observed in the plant column (inset Figure 3), and they correspond to the imposed daytime–nighttime cycle. During nighttime, the evaporation rate in the plant column is similar to the one in the control column, whereas it is two times larger during daytime.

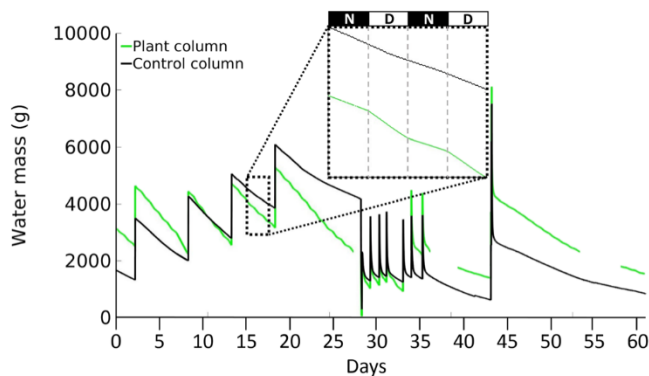


FIGURE 3 Fluctuations of the mass of water with a 5-min time resolution for the plant column (green) and the control column (black). The water mass is expressed as excess compared with the original equilibrium water content. Sharp increases in mass are due to watering; sharp decreases are due to water being drained out of the injection unit; progressive mass decreases are due to physical evaporation alone in the control column and the combination of physical evaporation (during nighttime [N]) and biologically driven evaporation (transpiration, during daytime [D]) in the plant column (see inset)

3.2.3 | Tracer fluxes at the top of the columns

The SF_6 fluxes measured at the top of the plant and control columns in response to the tracer injections are presented in Figure 4b. Applied flow rates and watering events are represented in Figure 4a. The observed surface fluxes are also reported in Table 1, for further comparison with the applied fluxes. As expected, the SF_6 fluxes looked similar for both columns and increased when the flowrate applied at the base of a given column and/or the concentration of the tracer increased. During the diffusion period (Days 21–54), no flux could be detected at the surface of both columns, the calculated flux being not significantly different from the situation before any tracer injection. An exception was between Days 28 and 32, where some minor fluxes could be measured ($<0.04 \mu\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$). Variations in injection pressure could also be observed at this period. Watering events were associated with transient and sharp decreases in SF_6 surface fluxes.

4 | DISCUSSION

While injections at constant flowrate were applied at the base of the columns, gas fluxes at the soil surface appeared to be controlled and modulated by processes that are individually identified and discussed below. These processes are of several origins: physical (pressure gradient, porosity), chemical (gas solubility), and biological (evapotranspiration, respiration).

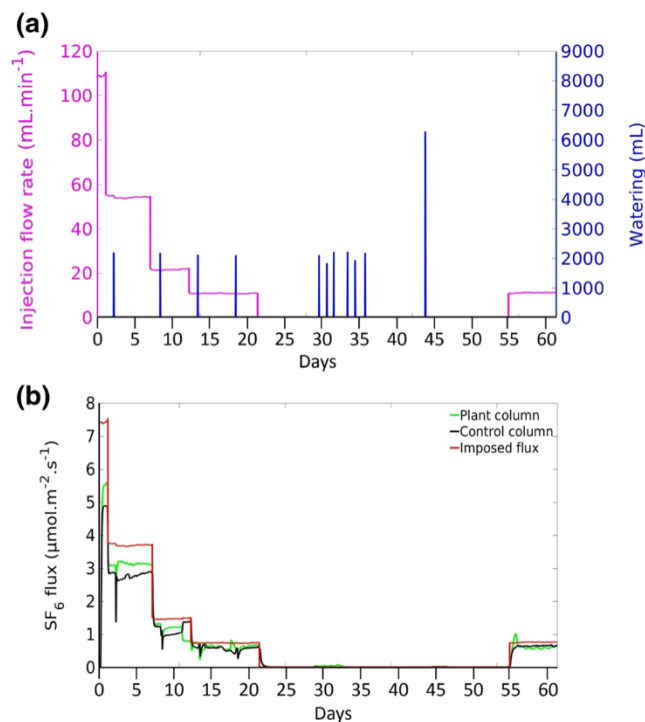


FIGURE 4 SF_6 percolation during the total period of the experimental study in the plant and control columns. (a) Injection flowrate (pink) as a function of time and amount of water used for each watering event (blue). Between Days 21 and 54, tracer test was conducted under diffusion conditions. (b) The SF_6 fluxes observed at the surface of the plant (green) and control (black) columns in response to tracer injection over a period of 61 d with a 1-h time resolution. The tracer flux applied at the base of the columns is reported in red. Differences between imposed and observed fluxes are discussed in the text

4.1 | Variations of the water budget: Planted vs. bare soil

The very sensitive monitoring of the water mass (corresponding to 0.01 mm or 1 ml for each column, Figure 3) allowed us to observe the control of plant activity on the water budget, although the biome considered here was quite modest. As determined from Figure 3, the evaporation rate for the control column subjected to physical evaporation alone was $\sim 1 \text{ L m}^{-2}$ every 12 h. In the plant column during nighttime, physical evaporation alone also occurred at $\sim 1 \text{ L m}^{-2}$ every 12 h. However, during daytime in the plant column, biologically driven evaporation (transpiration) was $\sim 2 \text{ L m}^{-2}$ every 12 h. Thus, modulations of water loss with a 12-h period controlled by lighting are observed in the plant column. By contrast, with natural conditions, physical evaporation occurred at the same rate during daytime and nighttime in the experiment for both columns because the conditions in the climatic chamber (including temperature and humidity) were kept constant. During the tracer experiment, the evaporation rate in the

control column tended to decrease, from ~ 1 to 0.6 L m^{-2} every 12 h. This goes with an overall decreasing amount of water in the column (Figures 3). The evaporation rate in the plant column was also decreasing after Day 39, which was due to the plant having been cut.

Plant and control columns reacted differently to events such as watering, infiltration, drainage, and evaporation. In fact, the plant column drained more easily than the control column, which is explained by the vertical anisotropy due to plant roots. Furthermore, during watering, infiltration was observed to be slower in the control column, which developed a very fine layer with low permeability at its surface. Neave and Rayburg (2007) and Armenise et al. (2018) reported that water drops and surficial evaporation can locally compact sand, creating a fine crust of low permeability, limiting infiltration at depth. Evaporation of this surface water causes less water to be transferred to the bottom of the control column, as reported in Supplemental Figure S3.

During Days 21–54, tracer injection in diffusion conditions stopped the overpressure ($\leq 30 \text{ mbar}$) in the injection unit. This resulted in an immediate loss of water in both columns. These losses of water in both columns are interpreted as drainage being increased at the base of the columns when the pressure applied at the bottom ceased and less water could be held back.

4.2 | Comparison between injected and measured sulfur hexafluoride fluxes

As reported in Table 1 and Figure 4, the SF_6 fluxes measured at the surface of the columns are lower than or equal to the applied ones. For each injection period, the observed surface flux globally paralleled the applied one and accounted for 80–90% of the applied flux (Table 1), except during the first day when a steady state was probably not reached. Part of the 10–20% discrepancy between the observed and the applied fluxes could be explained by the uncertainty in the flux measurement. However, this discrepancy is not likely to be caused by a bias in the flux determination (no wind, constant temperature and humidity, similar CO_2 flux determination with the automated Li-COR method and with our own method). We favor a cause linked to gas percolation in the unsaturated sand columns. As detailed in the supplemental material, SF_6 solubility in water cannot account for a significant loss of tracer. The accumulation chambers used for flux determination only covered 30% of the surface area of the columns and could not be moved from the center of the columns. Heterogeneity in the surface flux due to preferential flow is likely. Preferential pathways or channeling is a common process in porous media, especially when a gas phase is forced to infiltrate into a saturated zone (Islam, Chevalier, Salem, & Sassi, 2018; Kong, Kinzelbach, & Stauffer, 2010).

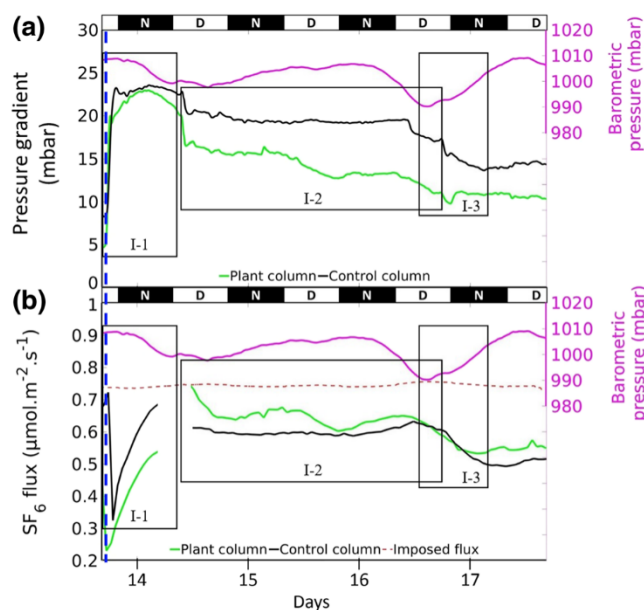


FIGURE 5 Relationship between pressure fluctuations and surface gas fluxes shown on an expanded timescale between the 14th and the 17th day of the experiment. (a) Variations of the pressure gradient between the bottom and the top of the column over a distance of 58 cm and (b) variations in the measured SF_6 surface fluxes as a function of time during a constant-flowrate injection at the bottom of the plant and of the control columns. Daytime (D) and nighttime (N) 12-h cycles are indicated. The red dashed line corresponds to the applied flux at the base of the columns. The blue dashed line corresponds to watering. The three regions of interest depicted by rectangles and labeled are discussed in the text

4.3 | Pressure control on sulfur hexafluoride surface fluxes and additional influences

To study how the SF_6 surface fluxes are related to external forcing, we here focus on two limited periods of time between Days 13–18 (Focus I) and Days 54–61 (Focus II). The corresponding variations in the difference between injection pressure and the barometric pressure are reported in Figures 5a and 6a, respectively, whereas the barometric pressure and SF_6 fluxes are reported in Figures 5b and 6b. As the height of the column is constant, the difference between the injection pressure and the barometric pressure directly relates to the pressure gradient, which is an important control on advection, together with the relative gas permeability. Three regions of interest (ROIs) can be delimited in Focus I (ROIs I-1–I-3, Figure 5), and two can be delimited in Focus II (ROIs II-1 and II-2, Figure 6).

As shown in ROI I-1, watering was responsible for a rapid pressure increase in the pressure gradient in both columns (Figures 5a), first associated with a $\sim 50\%$ decrease in the SF_6 fluxes (Figure 5b), followed by a significant increase in the SF_6 fluxes. Water infiltration strongly decreases gas

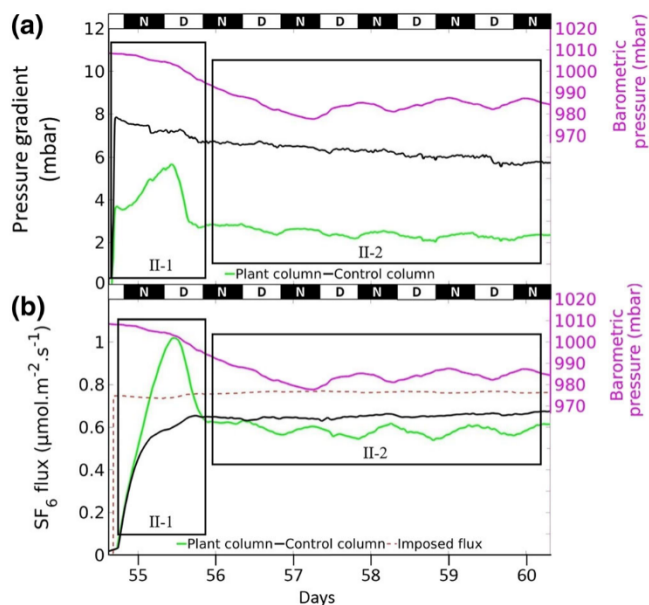


FIGURE 6 Relationship between pressure fluctuations and surface gas fluxes shown on an expanded timescale for the 55th through 60th day of the study. (a) Variations of the pressure gradient between the bottom and the top of the column over a distance of 58 cm and (b) variations in the measured SF₆ surface fluxes as a function of time during a constant-flowrate injection at the bottom of the plant and of the control columns. Daytime (D) and nighttime (N) 12-h cycles are indicated. The red dashed line corresponds to the applied flux at the base of the columns. The blue dashed line corresponds to the watering. The two regions of interest depicted by rectangles and labeled are discussed in the text

porosity and thus the relative gas permeability, which in turn decreases the SF₆ flux, leading to a transient overpressure in the injection unit and ultimately leading to preferential flow with a transient high SF₆ flux. These events illustrate that gas injected in the injection unit must push back water from the capillary fringe in order to percolate in the unsaturated sand columns, most probably forming preferential flow by fingering, as shown by Kong et al. (2010) and Islam et al. (2018).

A similar effect of overpressure on the SF₆ flux was observed (ROI II-1, Figure 6a). This time, overpressure did not come from water infiltration but from injection conditions being turned from diffusion to advection on Day 54. Again, the rapid increase in pressure was followed by a more progressive increase in SF₆ flux. The nearly constant pressure gradient over >4 d is then associated with a nearly constant SF₆ flux. Only a transient increase in pressure gradient in the plant column on Day 55 resulted in a transient enhanced flux.

The overall decrease in pressure gradient shown in Figure 5a, particularly for the plant column, corresponds with drying conditions lasting several days (see Figure 3). Less water in the column allows for more gas to flow in at lower pressure from the injection unit. Correlatively, SF₆ fluxes

decreased (Figure 5b). The decrease in SF₆ flux was larger in the plant column than in the control column, with the decrease in pressure gradient being larger for the plant column than for the control column, and the evapotranspiration rate in the plant column being larger than the rate of physical evaporation alone in the control column.

In ROI I-2 (Figure 5b) and ROI II-2 (Figure 6b), SF₆ fluxes in the plant column show daily ups and downs, whereas SF₆ fluxes in the control column appear monotonous. Although barometric pressure might also show some variations of the same kind, particularly during Days 57–60 in ROI II-2, there is no correlation between SF₆ flux and barometric pressure (as also shown in Figure 5b), and it is expected that the control column would behave the same as the plant column. Thus, we favor another forcing, different from a pressure effect and related to the plants that will be studied in more detail in a separate section below.

As shown in ROI I-3 of Figure 5a, the pressure gradients for the plant and the control columns decreased similarly when barometric pressure started to increase by +20 mbar in the middle of Day 16. Because it was applied externally, this forcing was the same for both columns and resulted in similar decreases in SF₆ fluxes.

4.4 | Biological controls on diurnal variations of the sulfur hexafluoride flux for the plant column

As highlighted in ROIs I-2 (Figure 5b) and II-2 (Figure 6b), SF₆ fluxes in the plant column globally show daily ups and downs, whereas SF₆ fluxes in the control column appear monotonous. In order to understand if biological activity could be the factor controlling such fluctuations in the SF₆ flux, the SF₆ and CO₂ fluxes measured at the surface of the plant column are reported in Figure 7a for Focus I and Figure 8a for Focus II, with indications of daytime and nighttime. For the same periods, the time evolution of the water mass in the plant column and of the pressure gradient are reported in Figures 7b and 8b.

During daytime, the net measured surface CO₂ fluxes are negative, indicative as expected of photosynthesis, and the SF₆ fluxes are shown to decrease systematically (Figures 7a and 8a). During photosynthesis, CO₂ and H₂O are consumed and combined in plants to produce organic matter and O₂. At the same time, an elevated rate of water loss by evapotranspiration is observed together with a decrease in the pressure gradient in the plant column (Figures 7b and 8b). This is interpreted as being due to an increase in gas porosity and relative air permeability. This leads to more dispersion and storage of gases in the porous medium and explains the observed transient decrease in SF₆ flux although the applied SF₆ flowrate at the base of the column was constant.

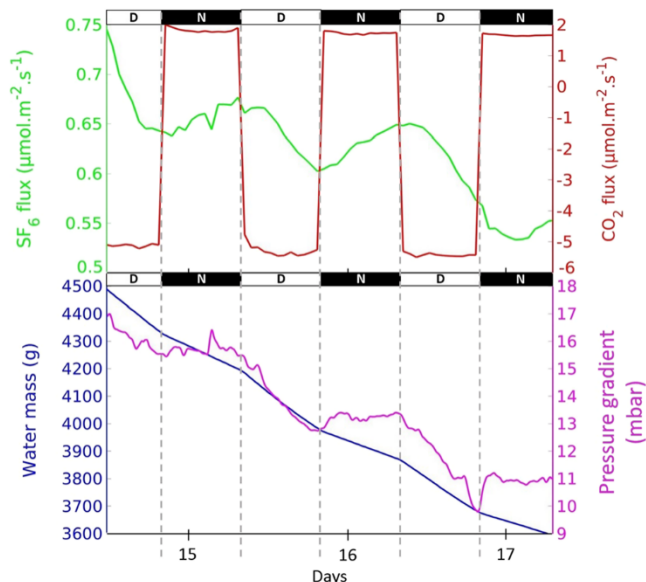


FIGURE 7 Modulations of the SF₆ surface flux by plant activity during a period of 3 d. (a) Time evolution of the SF₆ and CO₂ fluxes; (b) time evolution of the water mass and pressure gradient between the bottom and the top of the column over a distance of 58 cm. Daytime (D) and nighttime (N) 12-h cycles are indicated. The time variations of the water mass and the pressure gradient are correlated only during daytime, when photosynthesis and evapotranspiration are active. This enhanced loss of water increases gas porosity, which periodically decreases the pressure gradient

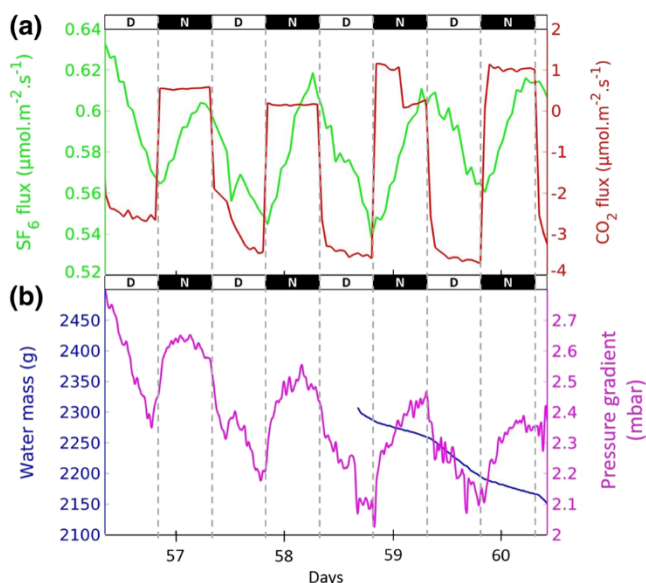


FIGURE 8 Modulations of the SF₆ surface flux by plant activity during a period of 4 d. (a) Time evolution of the SF₆ and CO₂ fluxes; (b) time evolution of the water mass and pressure gradient between the bottom and the top of the column over a distance of 58 cm. Daytime (D) and nighttime (N) 12-h cycles are indicated

During nighttime, the observed surface CO₂ fluxes are positive, indicative (as expected) of plant respiration only, and the SF₆ fluxes are shown to increase systematically (Figures 7a and 8a). Plant respiration in the root zone consumes organic matter and O₂ to produce CO₂ and H₂O. At the same time, a moderate water loss due to physical evaporation alone is observed (Figures 7b and 8b), whereas the pressure gradient shows a minor increase then stays relatively constant, particularly in Focus I (Figure 7b). The much smaller range of pressure fluctuations during Focus II (0.8 mbar in 3 d) compared with Focus I (8 mbar in 3 d) allows a better illustration of the evolution of the pressure gradient during nighttime. The fluctuations, with an amplitude of 0.3–0.4 mbar, appear to have reproducible characteristic shapes consisting of an increasing exponential function followed by a decreasing exponential function that continues over the following daytime period.

Despite these relatively small changes in pressure gradient between the bottom and the surface of the sand column and the constant applied SF₆ flowrate at the base of the column, a transient increase in SF₆ surface flux by 5–15% is observed. Because respiration in the root zone is always active (daytime and nighttime), CO₂ produced by respiration cannot be responsible for scavenging of SF₆, which should only be active at night to explain why SF₆ fluxes are only enhanced during nighttime. Therefore, this mechanism cannot account for an enhanced SF₆ flux only during nighttime. We favor a mechanism linked to the CO₂ production and O₂ consumption during nighttime, inspired by the work of Freundt, Schneider, and Aeschbach-Hertig (2013) and Guillon, Gréau, and Pili (2016), done in another context. Carbon dioxide produced by respiration in the root zone has a solubility higher by one order of magnitude in pore water than the O₂ that it replaces (Sander, 2015). Larger dissolution of CO₂ relative to O₂ locally decreases the pore pressure and increases the pressure gradient between the base of the column and the root zone, although this is not observed by measuring the overall difference between the injection pressure in the injection unit and the barometric pressure. This enhanced pressure gradient increases transport of SF₆ towards the root zone (which is denser and thus more active within the first 6 cm below surface), from which SF₆ will easily be emitted to the atmosphere.

This biologically driven control on surface gas fluxes observed here for a very modest biome (see Supplemental Figure S2) accounted for ~10% of the variations of the flux. It could well be much higher for larger biomes, such as meadows or forests, because it scales with the intensity of evapotranspiration and root respiration (Bosquilia et al., 2019; Pauliukonis & Schneider, 2001). Also, microbiological activity known to be active in natural soils would enhance the respiration effect, whereas it is much more likely limited in our studied case of a model soil consisting of washed pure silica sand.

5 | CONCLUSIONS

We developed an innovative laboratory experiment dedicated to the long-term and high-resolution monitoring of gas fluxes of a planted unsaturated soil column placed under controlled conditions in a climatic chamber. This includes controlled tracer injections at constant flowrate at the bottom of the column and very sensitive water budget monitoring. A control column of the same soil without plants was subjected to the same conditions for reference. This setup features a validated approach that allows determination of surface fluxes of any gas of interest using commercially available accumulation chambers, originally dedicated to CO₂ fluxes and here coupled with any low-flow gas analyzers. This innovative setup was used to better understand the processes and parameters determining gas transport through porous media and surface gas fluxes at the laboratory scale, and particularly to disentangle the physical, chemical, and biological influences, as well as their interactions. This setup presents many opportunities for further applications and studies.

Several percolation experiments using SF₆ as a tracer gas were conducted with various flowrates at 10,000 μl L⁻¹. Tracer injection under diffusion conditions led to gas fluxes too small to be detected. When advection occurs, we found that the pressure gradient and the relative gas permeability were not the only factors influencing surface gas fluxes, and we highlighted a biological effect. Although constant fluxes were applied at the bottom of the columns, the surface SF₆ fluxes were highly dynamical with transient states in relation to the applied external forcing. The injection pressure applied at the bottom of each column and the barometric pressure at the surface determined the pressure gradient. The water content then controlled, at the same time, a pressure head (determining an air-entry pressure for the injection) and the relative gas permeability and porosity in the porous media. Water infiltration strongly decreases gas porosity and the relative gas permeability, which in turn decreases the tracer flux, leading to a transient overpressure at the base of the column and ultimately triggering or enhancing preferential flow, resulting in a transient high SF₆ flux. On a longer timescale, water content was controlled by transpiration during daytime in the planted soil column and by physical evaporation alone in the bare soil column, as well as during nighttime for the plant column. Increasing water loss not only increases the relative gas permeability or decreases the pressure gradient by decreasing the injection pressure, but also increases gas porosity, which in turn increases gas storage and decreases the surface gas flux.

Both high-resolution and high-sensitivity monitoring permitted observation of diurnal modulations of surface gas fluxes in the plant column interpreted as a biological influence. It here accounted for 5–15% of the flux variations and could account for much more in larger biomes such as forests or microbiologically active soils. This biologically driven

influence is twofold: (a) plant evapotranspiration during daytime increases water loss, hence the porosity and the relative gas permeability, and (b) respiration by plant roots and microorganisms results in O₂ consumption and CO₂ production; the higher solubility of CO₂ in water locally diminishes pore pressure, increasing the pressure gradient towards the root zone, hence the tracer flux.

Therefore, physical, chemical, and biological processes altogether influence surface gas fluxes. Although the applied tracer gas flux was constant, these coupled processes accounted for transient decreases or increases of the observed surface fluxes on timescales spanning from several hours to several days. This has important consequences when discrete flux measurements are integrated in space and/or in time to quantify emissions or when used for detection and identification of underground gas sources. One-time gas collection can lead to erroneous estimates of fluxes due to high space and time variability. In addition, modulations of gas release to the atmosphere resulting from these processes should be taken into account for improved models of the time-dependent atmospheric signature of a gas source originating in the subsurface (Carrigan et al., 2019). Future modeling efforts with the NUFT (Nonisothermal, Unsaturated Flow, and Transport with Chemistry) code (Nitao, 1998) will seek to provide further refinement of quantification and prediction capabilities.

CONFLICT OF INTEREST

The authors declare that they have no known conflicting financial interests or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

AUTHOR CONTRIBUTIONS

All authors participated in the design of the experiment. C.A., E.P., F.M., and S.C. assembled and maintained the experimental device. C.A. ran the experiments and collected the data. C.A. and E.P. analyzed the data. C.A., E.P., and P.B. discussed the results. E.P., C.A., and P.B. wrote the manuscript.

ACKNOWLEDGMENTS

This study was carried out in the framework of the Laboratoire de Recherche Conventonné (LRC) Yves-Rocard joint laboratory between the Commissariat à l'énergie atomique (CEA) and École normale supérieure (ENS). This work also benefited from technical and human resources provided by the Centre national de la recherche scientifique (CNRS) Infrastructures de Recherche (IR) ECOTRONS and CEREEP-Ecotron IleDeFrance (CNRS/ENS UMS 3194), as well as financial support from the Regional Council of Ile-de-France under the DIM (Domains of Major Interest) Program R2DS bearing the reference I-05-098/R and 2011-11017735 and from the European Union Fonds Européens de Développement Régional (FEDER) program 2007–2014. It received support under the program “Investissements

d'Avenir" launched by the French government and implemented by the Agence nationale de la recherche (ANR) with the reference ANR-11-INBS-0001 AnaEE France and ANR-10-IDEX-0001-02-PSL. Amandine Hansart is thanked for assistance in choosing and growing plants and for advice for watering. Jean-François Le Galliard, Florent Barbecot, and Sophie Guillon are thanked for fruitful discussions. We thank two anonymous reviewers as well as Scott Jones as associate editor for their comments that greatly helped improve the manuscript.

ORCID

Clement Alibert  <https://orcid.org/0000-0002-8032-1140>

Eric Pili  <https://orcid.org/0000-0002-5328-2107>

Pierre Barre  <https://orcid.org/0000-0002-0822-0556>

Florent Massol  <https://orcid.org/0000-0001-5017-121X>

Simon Chollet  <https://orcid.org/0000-0001-7551-6616>

REFERENCES

- Armenise, E., Simmons, W. S., Ahn, A., Garbout, A., Doerr, S. H., Mooney, S. J., ... Ritz, K. (2018). Soil seal development under simulated rainfall: Structural, physical and hydrological dynamics. *Journal of Hydrology*, *556*, 211–219. <https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2017.10.073>
- Bosquilia, R. W. D., Neale, C. M. U., Duarte, S. N., Longhi, S. J., Ferraz, S. F., de, B., & Muller-Karger, F. E. (2019). Evaluation of evapotranspiration variations according to soil type using multivariate statistical analysis. *Geoderma*, *355*. <https://doi.org/10.1016/j.geoderma.2019.113906>
- Camarda, M., Prano, V., Cappuzzo, S., Gurrieri, S., & Valenza, M. (2017). Temporal variations in air permeability and soil CO₂ flux in volcanic ash soils (island of Vulcano, Italy). *Geochemistry Geophysics Geosystems*, *18*, 3241–3253. <https://doi.org/10.1002/2017GC006857>
- Carrigan, C. R., & Sun, Y. W. (2014). Detection of noble gas radionuclides from an underground nuclear explosion during a CTBT on-site inspection. *Pure and Applied Geophysics*, *171*, 717–734. <https://doi.org/10.1007/s00024-012-0563-8>
- Carrigan, C. R., Sun, Y., & Simpson, M. D. (2019). The characteristic release of noble gases from an underground nuclear explosion. *Journal of Environmental Radioactivity*, *196*, 91–97. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2018.10.015>
- Ding, X., Kennedy, B. M., Evans, W. C., & Stonestrom, D. A. (2016). Experimental studies and model analysis of noble gas fractionation in porous media. *Vadose Zone Journal*, *15*(2), vzj2015.06.0095. <https://doi.org/10.2136/vzj2015.06.0095>
- Ding, X., Kennedy, B. M., Molins, S., Kneafsey, T., & Evans, W. C. (2017). Experimental studies and model analysis of noble gas fractionation in low-permeability porous media. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, *205*, 149–167. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2017.02.005>
- Evans, W. C., Sorey, M. L., Kennedy, B. M., Stonestrom, D. A., Rogie, J. D., & Shuster, D. L. (2001). High CO₂ emissions through porous media: Transport mechanisms and implications for flux measurement and fractionation. *Chemical Geology*, *177*, 15–29. [https://doi.org/10.1016/S0009-2541\(00\)00379-X](https://doi.org/10.1016/S0009-2541(00)00379-X)
- Freundt, F., Schneider, T., & Aeschbach-Hertig, W. (2013). Response of noble gas partial pressures in soil air to oxygen depletion. *Chemical Geology*, *339*, 283–290. <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2012.07.026>
- Garcia-Anton, E., Cuezva, S., Fernandez-Cortes, A., Benavente, D., & Sanchez-Moral, S. (2014). Main drivers of diffusive and advective processes of CO₂-gas exchange between a shallow vadose zone and the atmosphere. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, *21*, 113–129. <https://doi.org/10.1016/j.ijggc.2013.12.006>
- Guillon, S., Gréau, C., & Pili, E. (2016). Continuous monitoring of the vadose zone gas phase by mass spectrometry. *Vadose Zone Journal*, *15*(8), vzj2015.12.0168. <https://doi.org/10.2136/vzj2015.12.0168>
- Guo, L. L., Nishimura, T., Imoto, H., & Sun, Z. G. (2015). Applicability of soil column incubation experiments to measure CO₂ efflux. *International Agrophysics*, *29*, 413–421. <https://doi.org/10.1515/intag-2015-0047>
- Hutchinson, G. L., & Mosier, A. R. (1981). Improved soil cover method for field measurement of nitrous oxide fluxes. *Soil Science Society of America Journal*, *45*, 311–316. <https://doi.org/10.2136/sssaj1981.03615995004500020017x>
- Islam, A., Chevalier, S., Salem, I. B., & Sassi, M. (2018). Numerical simulation of gas injection in vertical water saturated porous media. *Environmental Modeling and Assessment*, *23*, 459–469. <https://doi.org/10.1007/s10666-017-9587-x>
- Khan, F. I., Husain, T., & Hejazi, R. (2004). An overview and analysis of site remediation technologies. *Journal of Environmental Management*, *71*, 95–122. <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2004.02.003>
- Kilgallon, R., Gilfillan, S. M. V., Edlmann, K., McDermott, C. I., Naylor, M., & Haszeldine, R. S. (2018). Experimental determination of noble gases and SF₆, as tracers of CO₂ flow through porous sandstone. *Chemical Geology*, *480*, 93–104. <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2017.09.022>
- Kong, X-Z., Kinzelbach, W., & Stauffer, F. (2010). Morphodynamics during air injection into water-saturated movable spherical granulates. *Chemical Engineering Science*, *65*, 4652–4660. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2010.05.007>
- Kuang, X. X., Jiao, J. J., & Li, H. L. (2013). Review on airflow in unsaturated zones induced by natural forcings. *Water Resources Research*, *10*, 6137–6165. <https://doi.org/10.1002/wrcr.20416>
- Midwood, A. J., Thornton, B., & Millard, P. (2008). Measuring the ¹³C content of soil-respired CO₂ using a novel open chamber system. *Rapid Communications in Mass Spectrometry*, *22*, 2073–2081. <https://doi.org/10.1002/rcm.3588>
- Neave, M., & Rayburg, S. (2007). A field investigation into the effects of progressive rainfall-induced soil seal and crust development on runoff and erosion rates: The impact of surface cover. *Geomorphology*, *87*, 378–390. <https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2006.10.007>
- Nitao, J. J. (1998). *User's manual for the USNT module of the NUFT code, Version 3.0 (NP-phase, NC-Component, Thermal)*. Livermore, CA: Lawrence Livermore National Laboratory.
- Norris, J. Q., Turcotte, D. L., Moores, E. M., Brodsky, E. E., & Rundle, J. B. (2016). Fracking in tight shales: What is it, what does it accomplish, what are its consequences? *Annual Review of Earth and Planetary Sciences*, *44*, 321–351. <https://doi.org/10.1146/annurev-earth-060115-012537>
- Oldenburg, C. M., Mukhopadhyay, S., & Cihan, A. (2016). On the use of Darcy's law and invasion-percolation approaches for modeling large-scale geologic carbon sequestration. *Greenhouse Gases: Science and Technology*, *6*, 19–33. <https://doi.org/10.1002/ghg.1564>

- Pauliukonis, N., & Schneider, R. (2001). Temporal patterns in evapotranspiration from lysimeters with three common wetland plant species in the eastern United States. *Aquatic Botany*, *71*, 35–46. [https://doi.org/10.1016/S0304-3770\(01\)00168-1](https://doi.org/10.1016/S0304-3770(01)00168-1)
- Plampin, M., Illangasekare, T., Sakaki, T., & Pawar, R. (2014). Experimental study of gas evolution in heterogeneous shallow subsurface formations during leakage of stored CO₂. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, *22*, 47–62. <https://doi.org/10.1016/j.ijggc.2013.12.020>
- Sander, R. (2015). Compilation of Henry's law constants for water as solvent. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *15*, 4399–4981. <https://doi.org/10.5194/acp-15-4399-2015>
- Sathaye, K. J., Larson, T. E., & Hesse, M. A. (2016). Noble gas fractionation during subsurface gas migration. *Earth and Planetary Science Letters*, *450*, 1–9. <https://doi.org/10.1016/j.epsl.2016.05.034>
- Schuur, E. A. G., McGuire, A. D., Schadel, C., Grosse, G., Harden, J. W., Hayes, D. J., ... Vonk, J. E. (2015). Climate change and the permafrost carbon feedback. *Nature*, *520*, 171–179. <https://doi.org/10.1038/nature14338>
- Smith, K. A., Ball, T., Conen, F., Dobbie, K. E., Massheder, J., & Rey, A. (2003). Exchange of greenhouse gases between soil and atmosphere: Interactions of soil physical factors and biological processes. *European Journal of Soil Science*, *54*, 779–791. <https://doi.org/10.1046/j.1351-0754.2003.0567.x>
- Verdier, B., Jouanneau, I., Simonnet, B., Rabin, C., Van Dooren, T. J. M., Delpierre, N., ... Le Galliard, J. F. (2014). Climate and atmosphere simulator for experiments on ecological systems in changing environments. *Environmental Science and Technology*, *48*, 8744–8753. <https://doi.org/10.1021/es405467s>
- Vriens, B., Lenz, M., Charlet, L., Berg, M., & Winkel, L. H. E. (2014). Natural wetland emissions of methylated trace elements. *Nature Communications*, *5*. <https://doi.org/10.1038/ncomms4035>
- Yang, X., Fan, J., & Jones, S. B. (2018). Effect of soil texture and estimate of soil-column carbon dioxide flux comparing chamber and gradient methods. *Vadose Zone Journal*, *17*(1), 180112. <https://doi.org/10.2136/vzj2018.05.0112>

SUPPORTING INFORMATION

Additional supporting information may be found online in the Supporting Information section at the end of the article.

How to cite this article: Alibert C, Pili E, Barre P, Massol F, Chollet S. Biologically influenced gas fluxes revealed by high-resolution monitoring of unsaturated soil columns. *Vadose Zone J.* 2020;19:e20018. <https://doi.org/10.1002/vzj2.20018>

3.3. Discussions complémentaires

Les résultats présentés montrent que le dispositif est non seulement fonctionnel pour un suivi à long terme (plusieurs mois) et à haute résolution (5 minutes), mais également pertinent pour mettre en évidence les différents processus qui contrôlent les flux de gaz à la surface des sols. La haute résolution de l'acquisition, temporelle et métrologique (notamment quelques mL sur le bilan en eau, quelques centièmes de mbar, soit le Pa, sur les gradients de pression) a tout particulièrement permis de mettre en évidence les différents contrôles sur les flux de gaz mesurés. Le dispositif a permis de réaliser une expérience de plusieurs mois en ayant un traitement de données quotidien. C'est un avantage dans le cas où il faudrait ajuster des paramètres en cours d'expérience, suite à un problème ou en fonction de l'évolution du système. Dans le cadre de cette expérience, la haute résolution a permis à plusieurs reprises de remarquer une désynchronisation entre la fermeture de la cloche et les mesures de concentrations. Ces premières observations ont permis de tirer des enseignements importants et ont également révélé des axes d'améliorations. Ces enseignements et ces pistes d'améliorations sont discutés ci-dessous.

3.3.1. Importance de l'utilisation d'au moins deux colonnes

L'utilisation de deux colonnes, l'une avec des plantes et l'autre sans afin de mettre en évidence l'effet de la présence de plantes, a été un choix crucial pour la compréhension des données. En effet, l'observation et la quantification des effets de différents forçages sur les flux de gaz dans les deux colonnes (par exemple l'effet de la variation de la pression barométrique visible sur les deux colonnes : Figure 5 de l'article, ROI I-3) a permis de bien caractériser, par différence, les modulations des flux de gaz attribuables aux plantes. Ces résultats montrent la nécessité de travailler *a minima* avec deux colonnes, dont une colonne témoin.

Cependant, malgré l'utilisation d'un sable homogène et le suivi méticuleux d'un protocole de remplissage précis, les milieux poreux des deux colonnes ne sont pas rigoureusement identiques. En effet, les pressions d'entrée d'air et les profils de saturation différaient légèrement entre les deux colonnes, tout comme leur densité apparente et donc leur porosité. Malgré des écarts pouvant aller jusque 5 mbar pour les pressions d'entrée d'air, les flux mesurés pour une même période d'injection donnée sont néanmoins identiques pour les deux colonnes, ce qui prouve

que l'injection s'est tout de même réalisée dans les bonnes conditions. Ces différences inévitables entre colonnes seront à prendre en compte si l'interprétation des résultats nécessite des caractéristiques de sol identiques (porosité, perméabilité intrinsèque, tortuosité...). Ces différences peuvent être palliées par une bonne instrumentation des colonnes, une caractérisation du milieu poreux et la réalisation de tests de validation en colonne avant expériences.

3.3.2. Importance de la teneur en eau

Bien que l'expérience ait été réalisée dans une cellule climatique, toutes les conditions ne peuvent être contrôlées intégralement. Par exemple, la variation de la teneur en eau dans les colonnes était importante malgré les arrosages fréquents pour compenser l'évaporation et la transpiration. Cependant, notre expérience a pu mettre en évidence certains contrôles sur les flux de gaz grâce à ces variations de teneur en eau. Il semble donc intéressant de ne pas contrôler dans l'absolu toutes les conditions expérimentales. Dans notre cas, nous étions intéressés par l'effet des plantes. J'avais pensé, au départ, à contrôler le profil de teneur en eau afin qu'il soit constant au cours du temps malgré l'évapotranspiration. Si j'avais réussi à mettre cela en place, il est fort probable que je n'aurais pas pu voir l'effet de la transpiration associée à la photosynthèse sur les flux de gaz pendant le jour, ni l'effet de l'évaporation seule pendant la nuit.

Cette observation du lien entre l'évapotranspiration des plantes, la variation de la teneur en eau du sol et les fluctuations des flux de gaz à la surface, ouvre de nouveaux axes de recherche. Il serait intéressant de réaliser la même expérience en changeant le couvert végétal pour évaluer le lien entre l'intensité d'évapotranspiration et les variations de flux de gaz pour différentes espèces. On peut s'attendre à ce que cet effet soit plus fort pour des plantes à fort métabolisme. L'effet de xérophytes, capables de prélever de l'eau fortement retenue par le sol, serait également intéressant à observer, de même que l'effet des plantes à racines profondes par opposition à celles dont les racines sont superficielles. D'autres études que la nôtre montrent en effet que les variations de teneur en eau dans les milieux poreux sont une source importante de variations des émissions de gaz à l'interface sol-atmosphère, que ce soit en régime diffusif ou advectif, en agissant sur les propriétés physiques ou biologiques du système étudié (Machado et al., 2016 ; Barnard et al., 2020 ; Joun et al., 2020).

3.3.3. Facteur commun aux deux colonnes : les variations de pression barométrique

Les variations de la pression barométrique influent fortement sur les flux de gaz, ce qui peut masquer certains processus de second ordre. Il est malheureusement très difficile de garder ce paramètre constant. Avec une pression barométrique constante, dans la configuration présentée dans cette expérience, toutes variations du gradient de pression mesurées auraient été automatiquement liées à des variations dans la colonne, ce qui aurait permis une meilleure compréhension du système. En effet, comme montré dans le cas de la Figure 6 de l'article, les variations barométriques sont souvent cycliques avec des pseudo-périodes de 12 à 24 heures et peuvent donc se superposer à d'autres effets ayant des périodicités proches, tels que le métabolisme ou les variations thermiques. Il est, dans ce cas, impossible de décorréler la partie du signal attribuable à la variation de pression barométrique de celle attribuable à un autre effet que l'on souhaite tester. Il serait donc vraiment intéressant de s'affranchir des variations de flux de gaz provoquées par les variations de pression barométrique.

Malheureusement, la maîtrise de la pression barométrique dans les cellules climatiques est un élément compliqué à développer. En effet, cela impliquerait de disposer de réservoirs d'air tampon capables de prélever de l'air dans la cellule si celle-ci se retrouve en surpression, et inversement si elle est en dépression. Cette régulation impliquerait aussi une régulation en boucle fermée, pouvant poser des problèmes pour le renouvellement d'air en cas d'accumulation de traceurs. Afin d'éviter cette contrainte technologique forte, une astuce serait de décorréler les signaux barométriques des signaux imposés par l'expérience en modifiant la durée des autres cycles. En particulier, dans le cadre de l'expérience présentée ici, il aurait été optimal de réaliser des cycles jour-nuit avec des périodes très différentes de 12 ou 24 heures (par exemple 15 heures). En faisant cela, il aurait été beaucoup plus facile de décorréler l'effet des variations de pression barométrique lors de l'interprétation des données.

3.3.4. Optimisation de la mesure de flux

3.3.4.1. Choix de l'analyseur

Concernant les mesures de flux, trois axes sont à améliorer si l'on souhaite aller plus loin avec le dispositif qui a été présenté dans cet article. Le premier est lié à la sensibilité de l'analyseur. En effet, aucun flux de SF₆ n'a été mesuré lors de la période d'injection de SF₆ en mode diffusif. Bien qu'il soit probable que le transport soit lent et que la frange capillaire forme une barrière

trop importante sur la période de temps d'observation, on ne peut exclure que la quantité de SF₆ passant de la colonne à la chambre d'accumulation ait été trop faible pour être mesurée par l'analyseur Innoval412i. Outre le faible flux de SF₆, il est également possible que de l'air atmosphérique soit rentré dans la chambre d'accumulation durant la mesure du fait du débit de pompage conséquent de l'analyseur, diluant significativement cette pression partielle de SF₆ déjà faible. Dans l'optique de pallier cet effet indésirable, nous avons choisi de remplacer l'IRGA et l'Innoval412i par un spectromètre de masse PrimaPro à faible débit (4 mL.min⁻¹). Le second axe d'amélioration est un autre argument en faveur du remplacement de l'analyseur photoacoustique Innoval412i par le spectromètre de masse PrimaPro. Comme nous l'avons mentionné précédemment, les caractéristiques d'analyse de l'Innoval412i (volume d'échantillonnage et de rinçage important ; durée d'analyse avec les différents filtres) ont pour conséquences un faible nombre de mesures par période d'accumulation. Plus le nombre de mesures sera élevé, plus les flux seront déterminés avec précision. Le passage au PrimaPro permet précisément d'augmenter le nombre de mesures dans la chambre d'accumulation en échantillonnant du gaz toutes les minutes contrairement à l'Innoval412i. L'augmentation du volume d'accumulation atténuera, de plus, les effets d'une session d'analyse plus longue.

3.3.4.2. Présence de chemins préférentiels

Nous avons aussi pu remarquer que le flux à la surface des colonnes n'était pas uniforme. Nous n'avons jamais obtenu en sortie 100 % du flux injecté, mais plutôt des rendements estimés entre 75 et 90 % (voir le Tableau 1 de l'article). Or il s'avère que la chambre d'accumulation ne recouvrait qu'un tiers de la surface des colonnes, en leur centre. Une des hypothèses pour expliquer cela serait la présence de chemins préférentiels favorisant la migration du gaz en dehors de la zone recouverte par la chambre d'accumulation. Les chemins préférentiels sont courants en milieux non-saturés lors d'une percolation de gaz à travers une frange capillaire (Islam *et al.*, 2018 ; Kong *et al.*, 2010). Ils peuvent avoir plusieurs origines : (i) la caractéristique intrinsèque du milieu et de sa frange capillaire ; (ii) la présence de racines pouvant créer des hétérogénéités verticales dans la zone racinaire en fonction de la densité du couvert végétal qui était non uniforme dans mon expérience ; (iii) les bords de la colonne en contact avec le milieu n'ayant pas été traité, cette interface forme une hétérogénéité majeure pouvant être à l'origine de chenalisation ; ou (iv) l'arrosage qui, malgré le soin apporté, n'était peut-être pas uniforme entre les portions de surface se trouvant à l'intérieur et à l'extérieur de la collerette. Le point (i) peut être vérifié grâce à la modélisation en simulant différents cas de migrations à profil de

saturation variable. L'étude de différents biomes ou de différentes densités de couvert végétal peut mettre en évidence le point (ii). C'est suite à ces observations que nous avons choisi de commander une nouvelle chambre d'accumulation réalisée sur mesures et recouvrant l'intégralité de la surface des colonnes, nous permettant ainsi de capter l'intégralité des flux émis et d'effectuer un bilan de masse des traceurs plus complet.

3.3.4.3. Nécessité d'un profil de concentration complémentaire aux mesures de flux

Il apparaît qu'une meilleure analyse et compréhension des processus physiques, chimiques et biologiques serait possible si j'avais accès à des mesures de concentration à différents niveaux dans la colonne. En effet, avec cette première version du dispositif expérimental nous avons pu observer des processus mettant en jeu une dynamique dans les colonnes, notamment au niveau de la zone racinaire, en ayant accès seulement à l'injection à la base de la colonne et aux flux sortant à la surface. Il apparaît donc essentiel, pour aller plus loin dans les interprétations, de pouvoir réaliser des mesures de concentration en traceur comme en autres espèces gazeuses (dont O₂ et CO₂) tout le long de la colonne, y compris dans la zone racinaire. C'est pour cela qu'une deuxième version du dispositif ESCAPe a été développée, en intégrant un spectromètre de masse à bas débit ainsi que plusieurs points d'échantillonnage permettant le prélèvement de gaz dans les colonnes de sol (système présenté dans le Chapitre 2).

3.3.5. Importance de la modélisation

Pour terminer, l'utilisation de la modélisation est impérative pour pouvoir comprendre les résultats obtenus grâce au dispositif. De manière intéressante, les jeux de données complets sur le long terme avec la haute résolution fournie par ce dispositif sont des atouts indéniables pour une utilisation facilitée de la modélisation. La modélisation répond à deux objectifs. Le premier consiste à comparer les résultats expérimentaux avec les résultats de simulations en implémentant les jeux de données dans le code de transport réactif. Ce premier point permettrait d'apporter des précisions aux observations faites durant l'expérience en ayant accès des profils de concentrations, de pression ou encore à la répartition de l'eau dans les colonnes en fonction des différentes conditions d'injection et de mesures. Le second objectif consiste à calibrer et valider le modèle à l'aide de plusieurs jeux de données afin de le réutiliser pour imaginer et dimensionner de futures expériences dans d'autres conditions expérimentales. Ce sont ces deux

objectifs que j'ai voulu aborder dans mon projet de thèse et qui seront présentés dans le Chapitre 4. Pour réaliser cela, j'ai travaillé en collaboration avec le Lawrence Livermore National Laboratory sur le code de transport réactif NUFT.

3.4. Autres résultats expérimentaux acquis durant thèse

3.4.1. Étude préliminaire d'une percolation de gaz durant un cycle gel-dégel d'une colonne de sol non-saturé en eau

3.4.1.1. Présentation de la méthode

À la fin de l'expérience présentée dans la section 3.2., j'ai choisi de profiter du dispositif en place pour réaliser une autre expérience. J'ai ainsi voulu étudier l'influence d'un cycle gel-dégel sur la percolation de gaz. Comme l'ECOLAB permet de réguler la température des colonnes de sol à des valeurs différentes de la température ambiante, j'ai pu appliquer un cycle de gel et de dégel pendant une injection de gaz à la base d'une colonne de sol non saturé en eau. Le dispositif utilisé est donc identique à celui présenté dans l'article, à l'exception de l'ajout de tuyaux enroulés autour de la colonne sur 40 cm permettant d'imposer sur deux hauteurs de 10 cm et 30 cm des températures définies grâce à la circulation d'un fluide calorifique (Figure III-1). La colonne utilisée ici correspondait à la colonne avec plantes exceptées qu'elles étaient sénescents.

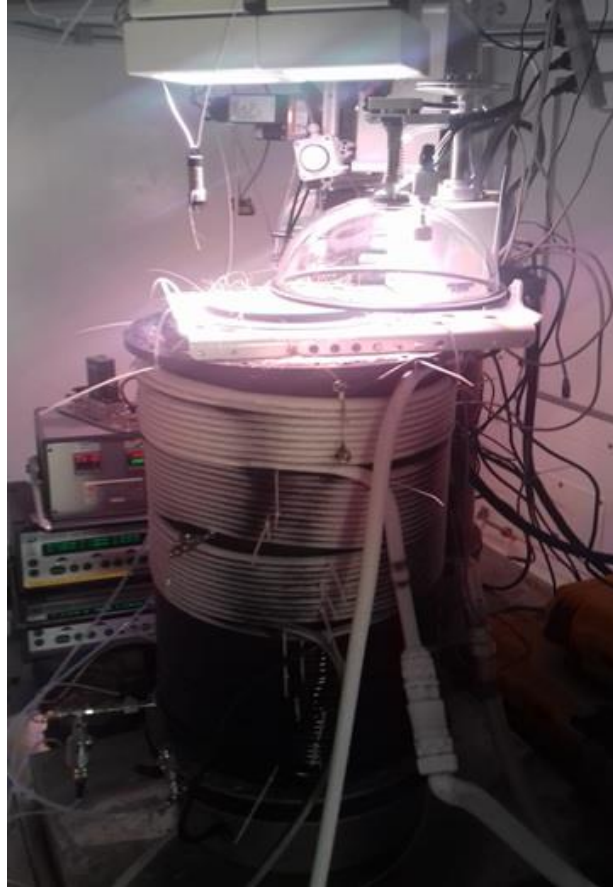


Figure III-1 : Dispositif utilisé pour l'injection de gaz à la base d'une colonne de sable non saturée en eau lors d'un cycle gel-dégel. Un couvert végétal sénescé est présent à la surface de la colonne. Des tuyaux dans lesquels circulent du fluide calorifique sont enroulés autour de la colonne. La température dans les tuyaux était réglée à -10°C pour les 10 premiers centimètres et -5°C pour les 30 derniers centimètres.

Pour rappel, la température ambiante de la cellule climatique a été imposée à 5°C pendant le cycle de gel et dégel avant de revenir à 25°C en fin d'expérience. Pour la sécurité des instruments, il n'était pas possible de descendre en dessous de 5°C . La température imposée aux colonnes est passée de 5°C à des températures à -5°C . L'injection de 2 000 ppm de SF_6 et CO_2 dans 20,9 % d' O_2 , le reste en N_2 , a été réalisée à pression constante (+20 mbar par rapport à la valeur atmosphérique) grâce au régulateur PID décrit au Chapitre 2.

L'expérience s'est déroulée en 4 phases distinctes résumées dans le Tableau III-1 et reportés sur les figures associées (Figure III-2, III-3, III-4) :

- Période 1 : Baisse de la température, passage de la température de la colonne de $+5^{\circ}\text{C}$ à 0°C du jour 0 au jour 4,

- Période 2 : Gel partiel de l'eau contenue dans la colonne avec des températures négatives du jour 4 au 9,
- Période 3 : Gel total de l'eau dans la colonne du jour 9 au jour 14, avec une température négative dans la colonne,
- Période 4 : Dégel de l'eau dans la colonne du jour 14 au jour 22 avec une température passant des températures négatives à +5 puis +25°C.

3.4.1.2. Résultats

Durant cette expérience, quelques aléas ont compliqué l'acquisition de certaines données telles que le débit d'injection ou encore la température dans la colonne lorsqu'elle était négative. Du fait de problèmes liés au froid, les mesures présentées ci-dessous sont indicatives. Pour faciliter la compréhension des données, j'ai choisi de reproduire numériquement au première ordre l'évolution observée de la température, du débit d'injection et de la pression d'injection.

Tableau III-1 : Conditions expérimentales et mesures durant le cycle de gel et de dégel.

Période	1 Refroidissement	2 Gel partiel	3 Gel total	4 Dégel
Température à 5 cm (°C)	+5 / 0	< 0*	< 0*	< 0* / +5 / +25
Pression d'injection (mbar)	+ 20	+ 20	+ 20	+ 12
Débit d'injection (mL.min ⁻¹)	80	80 / 380	0	500
Flux SF ₆ (μmol.m ⁻² .s ⁻¹)	1	1 / 4,8	0	7 / 7,5
Flux CO ₂ (μmol.m ⁻² .s ⁻¹)	0,8	0,8 / 3,1	0	4,3 / 4,5

**Température n'ayant pas pu être acquise*

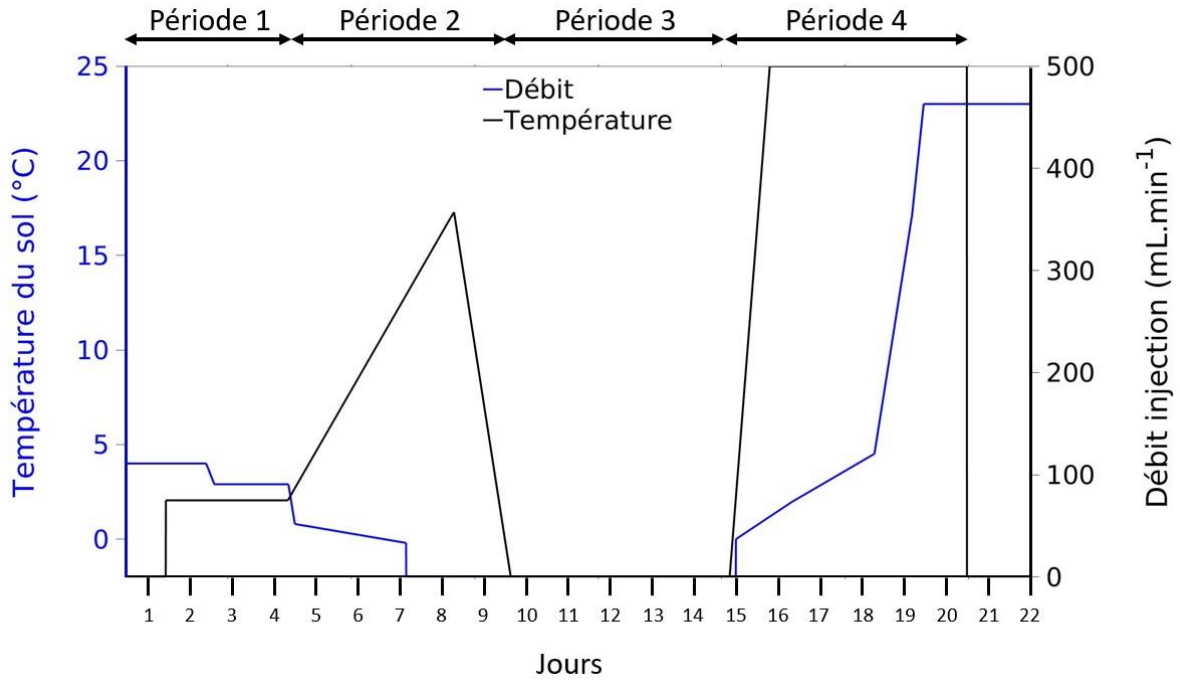


Figure III-2 : Variations du débit de gaz injecté à la base de la colonne et de la température du sol mesurée à 5cm de profondeur lors d'un cycle gel-dégel. La sonde utilisée n'a pas permis d'enregistrer les températures négatives qui ont été fixées à -2 °C ici. Le débit a atteint sa capacité maximale durant la période 4.

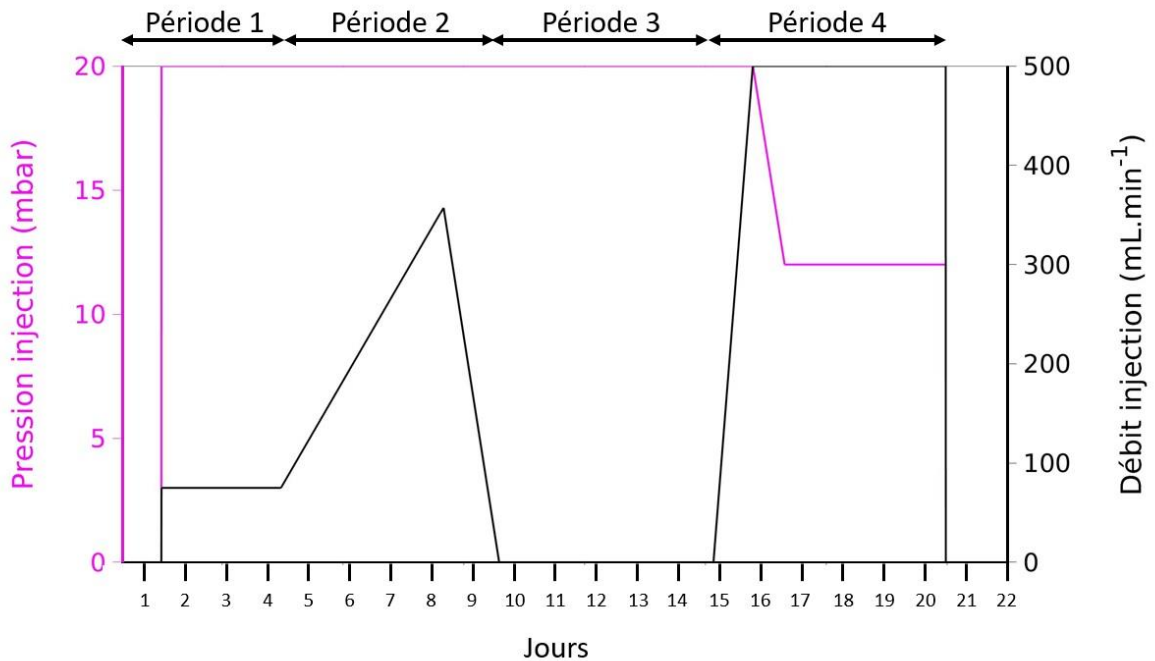


Figure III-3 : Variations du débit en fonction de la pression d'injection imposée par le régulateur. La pression consigne était imposée à +20mbar sur toute la période. Le débit a atteint sa capacité maximale durant la période 4, ne pouvant plus garantir la pression d'injection imposée initialement durant cette période.

Les mesures réalisées avec la chambre d'accumulation ont été utilisées pour calculer le flux de SF₆ et de CO₂ à la surface des colonnes, qui sont reportés dans la Figure III-4 avec la température du sol. La précision des mesures, durant cette expérience, est discutable car il s'avère que les cloches étaient mal synchronisées avec l'acquisition des concentrations par l'analyseur Innova1412i. En conséquence, les calculs de flux ont été réalisés non plus avec 5 points de mesures de concentration mais uniquement 3. Plusieurs calculs de flux n'ont pas pu aboutir pour le CO₂, expliquant l'absence de points entre les jours 0 et 4. Bien que la précision des mesures soit remise en question, il est notable que l'évolution des flux au premier ordre peut donc être discutée, ce qui est suffisant pour mon propos.

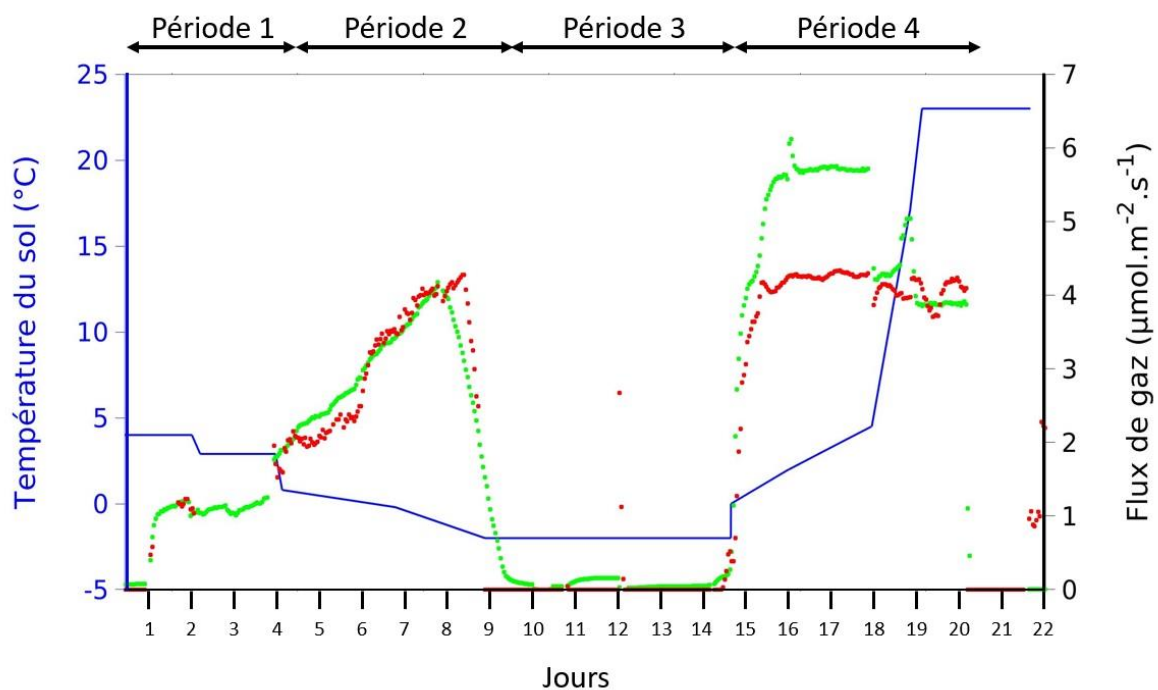


Figure III-4 : Évolution des flux de CO₂ et de SF₆ durant le cycle de gel et de dégel. Les flux injectés sont calculés à partir des conditions expérimentales représentées dans les Figures III-2 et III-3.

3.4.1.3. Discussions

3.4.1.3.1. Influence d'un cycle de gel et de dégel sur les propriétés du sol

Durant la Période 1, bien que la température diminue, cela n'affecte pas les conditions d'injection ou les propriétés de l'eau se trouvant dans la colonne. De ce fait, des flux quasi-constants à la surface de la colonne sont mesurés, comme indiqué sur la Figure III-4.

Durant la Période 2, l'eau commence à geler. Plus l'eau gèle plus le débit d'injection augmente afin de préserver la pression d'injection constante à +20 mbar. Sachant que la colonne refroidit depuis les bords vers le centre (en raison du positionnement des tuyaux de fluide refroidisseur, Figure III-1), il semble donc que des chemins préférentiels se créent, amplifiant le passage du gaz, probablement au centre de la colonne.

Durant la Période 3, le débit d'injection devient nul tout en conservant une pression d'injection à +20 mbar. Ceci se traduit par un flux nul à la surface de la colonne et signifie que l'eau dans la colonne se trouve complètement gelée, empêchant toute percolation de gaz, y compris dans les chemins préférentiels précédemment créés. Bien que la température n'ait pas été enregistrée lors qu'elle était négative, j'ai pu cependant observer que les sondes de teneur en eau, durant cette période, indiquaient des valeurs non-assignées (NaN), indiquant l'absence d'eau liquide). Ces mêmes sondes ont cependant acquis des données durant les périodes précédentes et suivantes.

Durant la Période 4, la colonne est réchauffée, dégelant progressivement l'eau se trouvant dans les pores. Alors que nous aurions pu nous attendre à retrouver des conditions d'injection similaire à la Période 1, des changements importants ont eu lieu. Tout d'abord, le débit d'injection atteint sa capacité maximale de $500 \text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$ pour une pression d'injection de +12 mbar alors que la valeur de consigne était toujours de +20 mbar. Les flux mesurés à la surface de la colonne sont donc supérieurs à ceux mesurés avant le cycle de gel et de dégel. Ceci suggère que d'importants chemins préférentiels se sont créés à la suite du cycle de gel et de dégel. Le gel de l'eau augmentant son volume, la disposition des grains a probablement été modifiée par ce changement de phase. De ce fait, le gaz semble percoler plus facilement après le cycle de gel et de dégel, empêchant le système de régulation d'injection de garantir la pression d'injection imposée initialement.

3.4.1.3.2. Potentiel du dispositif expérimental pour les expériences de gel-dégel

Ce dispositif a permis d'établir des variations de température dans une colonne de sable, simulant ainsi un cycle gel-dégel tout en acquérant des mesures de flux de gaz. Cette capacité du dispositif représente un potentiel intéressant pour l'étude du permafrost dans le cadre du réchauffement climatique et bien d'autres applications encore, tel l'effet de conditions hivernales sur les émissions de radionucléides suite à un essai nucléaire. Bien que des expériences aient déjà été réalisées dans le cadre d'un dégel du permafrost ([Teepe et al., 2001](#) ; [Goldberg et](#)

al., 2008 ; Moghbel et Fall, 2016), il n'est souvent pas possible de pouvoir acquérir des données de flux en même temps que le cycle se réalise. Par exemple, dans l'étude de Goldberg (2008) ou de Moghbel et Fall (2016), des mesures ont été effectuées uniquement avant et après le cycle de gel et dégel.

Cette expérience préliminaire montre néanmoins les limites associées à cette version du dispositif. Tout d'abord, il est important d'augmenter le nombre de mesures de concentration lors d'une accumulation. Ici 3 points sont insuffisants pour réussir à réaliser toutes les approximations nécessaires au calcul de flux. Dans ce cas de figure, les mesures de flux de CO₂ réalisées avec le système LI-COR ont été utiles. Je me suis servi des paramètres déterminés par le système LI-COR pour calculer les flux de SF₆ avec les mesures de concentration de l'analyseur Innova1412i.

Cette expérience montre aussi l'importance de la synchronisation des différents instruments et d'une base de temps commune entre tous les instruments. Enfin, il est nécessaire de prendre en compte la potentielle incapacité des instruments dans les conditions extrêmes.

En outre, pour aller vers des conditions plus réalistes, il serait intéressant de s'affranchir de la contrainte du dégel effectué depuis le bord de la colonne vers le centre, par exemple en augmentant uniquement la température ambiante de la cellule climatique pour dégeler la colonne.

3.4.2. Étude préliminaire d'une percolation de gaz à travers deux colonnes de sol non-saturé en eau avec le spectromètre de masse (ESCAPE v2)

3.4.2.1. Présentation de la méthode

La mise en place d'un spectromètre de masse était nécessaire pour plusieurs raisons suite à l'expérience présentée section 3.2. Tout d'abord, le spectromètre de masse permet de meilleures mesures de concentrations (moins de débit d'échantillonnage, plus de points lors des accumulations, plus de traceurs analysables). Ces caractéristiques permettent d'aller plus loin dans l'interprétation des expériences. Nous avons vu précédemment que des mesures de concentrations à différents niveaux dans la colonne seraient un atout non-négligeable. Nous avons aussi remarqué que des mesures d'O₂ complémentaires avec les mesures de CO₂

permettraient une meilleure compréhension de l'implication de l'activité biologique sur les flux de gaz. Enfin, en relation avec l'amélioration de la détection des essais nucléaires souterrains, les gaz rares tels que le xénon, mais aussi l'argon, sont des traceurs majeurs à prendre en compte, ce qui est maintenant possible avec le spectromètre de masse.

Afin de tester et mettre en lumière toutes ces possibilités, j'ai réalisé une expérience de traçage une fois les développements terminés. Ce test avait deux objectifs : (i) tester la viabilité du dispositif sur les mesures de concentrations des différents traceurs, (ii) comparer la percolation des deux traceurs xénon et SF₆ en présence d'eau et tenter de mettre en évidence l'effet des différences de solubilité. Pour cela, j'ai utilisé deux colonnes de sable non-saturé en eau, sans plantes, dans lesquelles j'ai inséré 4 points de mesures de concentrations (5, 16, 28 et 40 cm), 4 points de mesures de teneur en eau (5, 15, 35 et 45 cm), 2 points de mesures de température (5 et 25 cm), 1 point de mesure de pression (25 cm). Un mélange de gaz a été injecté (Tableau III-2) à pression d'injection constante et débit variable grâce au régulateur PID en ECOLAB à température ambiante constante (+25°C). Bien que le système d'injection ait bien fonctionné pendant une vingtaine de jours, il s'avère que le réglage du PID a été problématique par la suite. Nous concentrerons donc nos observations sur les vingt premiers jours.

Tableau III-2 : Mélange de gaz injecté à la base des deux colonnes A et B. Dans la deuxième colonne se trouve la composition indiquée par le fournisseur. Dans la troisième colonne se trouve la composition indiquée par le spectromètre de masse.

Gaz	Bouteille	Mesuré
N₂	77,60 %	77,78 %
O₂	20,90 %	20,76 %
CO₂	2000 ppm	2421 ppm
SF₆	2000 ppm	1899,7 ppm
Ar	9000 ppm	8811 ppm
Xe	5 ppm	5,05 ppm
Kr	50 ppm	51,16 ppm
He	250 ppm	200,46 ppm
Ne	1000 ppm	1073,4 ppm

3.4.2.2. Résultats

Les débits et les pressions d'injection sont respectivement représentés dans les Figure III-5a et 5b.

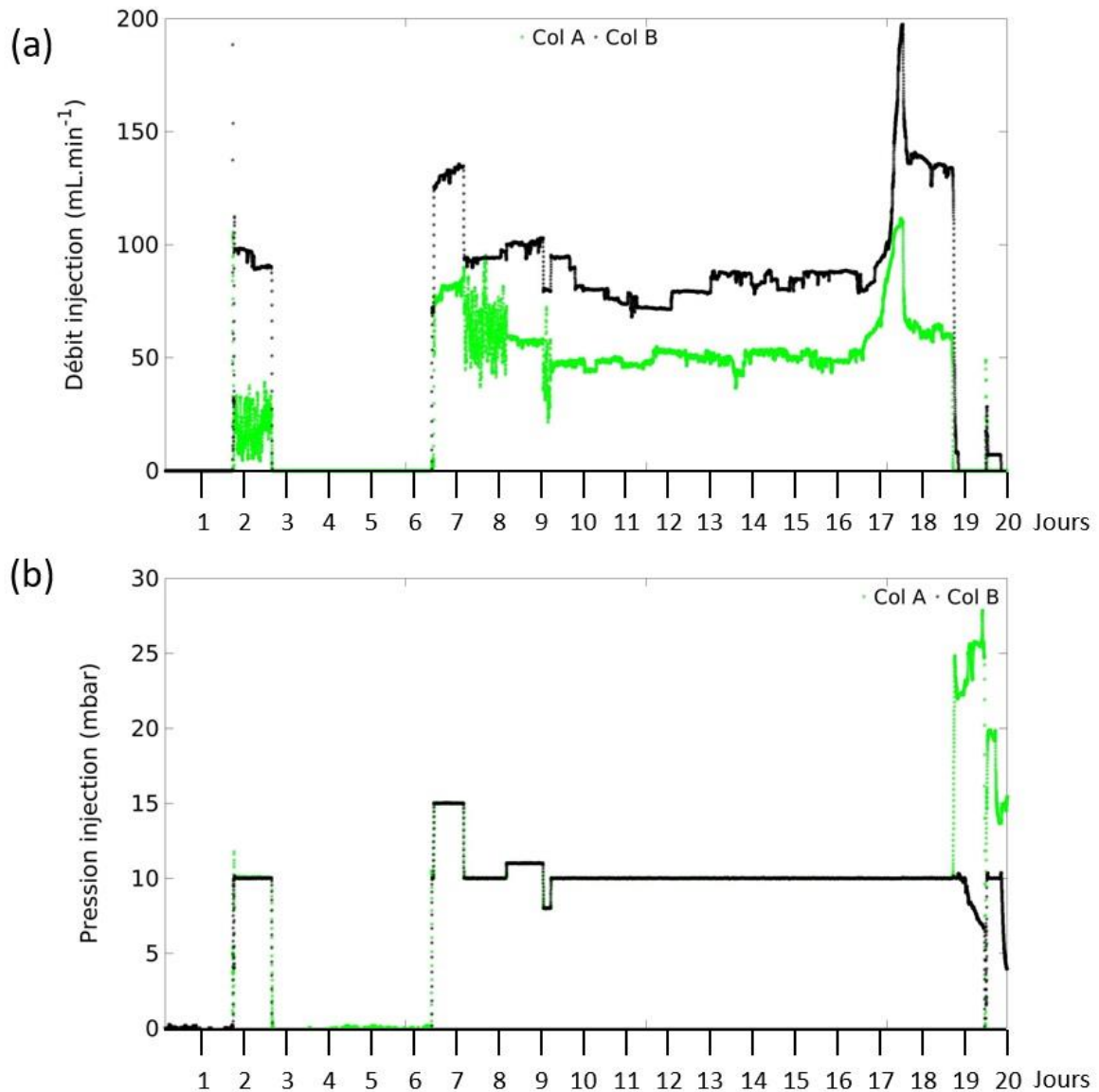


Figure III-5 : (a) Évolution du débit d'injection du mélange de gaz Xe-SF₆ au cours du temps à la base de 2 colonnes de sable non saturé en eau et sans plantes. (b) Évolution des pressions d'injection au cours du temps à la base de 2 colonnes de sable non saturé en eau et sans plantes.

Les concentrations en traceurs ont pu être suivies dans les deux colonnes ainsi que leur flux en surface, via les chambres d'accumulation. La Figure III-6 illustre différents cycles de mesures pour chacune des deux colonnes ainsi que la bouteille de calibration contenant 100% de N₂ et l'atmosphère extérieure. Les Figures III-7 et III-8 représentent l'évolution des concentrations du CO₂, de l'O₂, du Xe et du SF₆ respectivement dans les colonnes A et B. Sur les Figures III-6, 7 et 8, les concentrations sont nulles pour la colonne B à 5 et 16 cm de profondeur. Lors du démantèlement de l'expérience, les capillaires Membrana étaient cassées à ces niveaux.

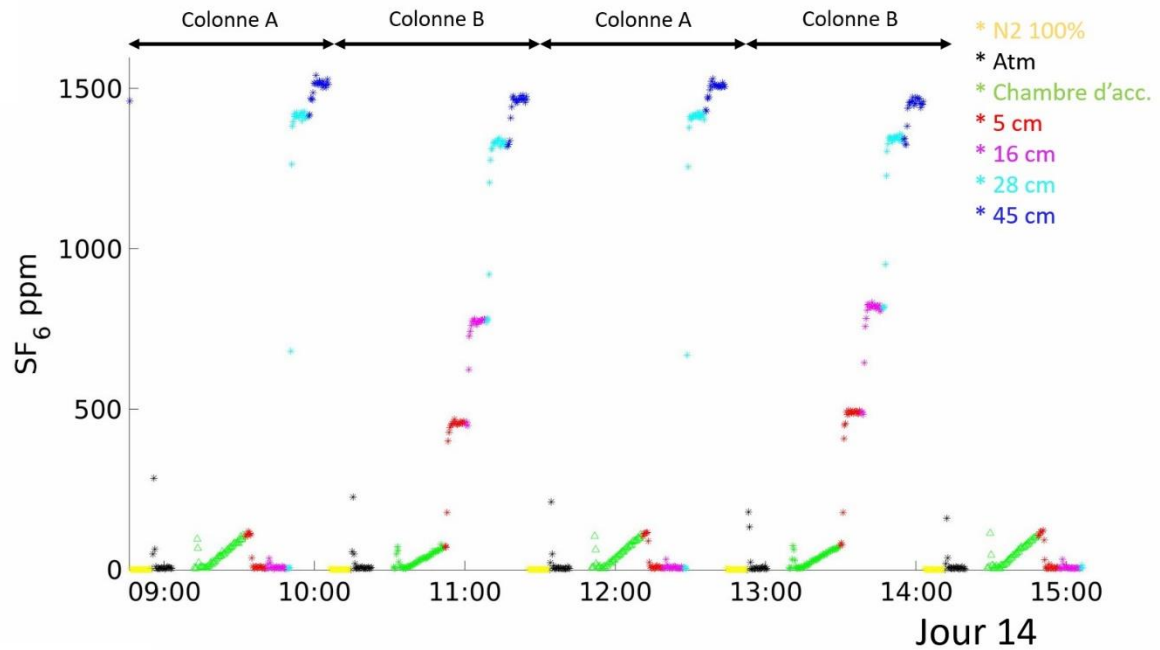


Figure III-6 : Cycles de mesures de concentration en SF₆ au cours du temps (heures) pour les deux colonnes (A et B) dans la chambre d'accumulation et à différentes profondeurs (5, 16, 28, 45 cm) par le spectromètre de masse. Entre chaque cycle de mesures de chaque colonne est réalisée une analyse de l'atmosphère extérieure ainsi que l'analyse d'une bouteille de gaz N₂ à 100% destinée à garantir l'absence d'effet mémoire d'une voie sur l'autre.

Processus physiques, chimiques et biologiques contrôlant les flux de gaz dans les colonnes de sol

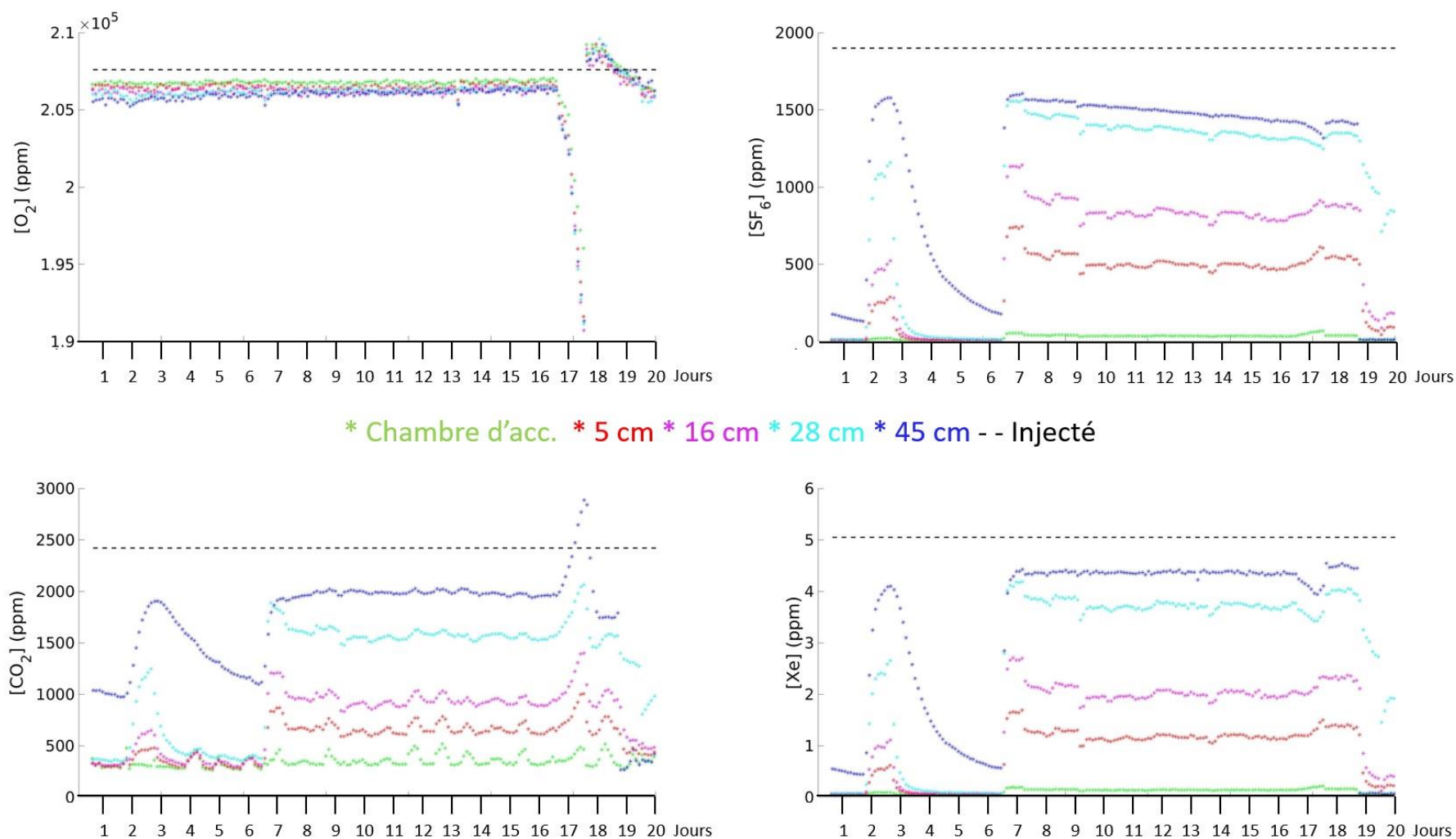


Figure III-7 : Évolution des concentrations en O_2 , CO_2 , Xe et SF_6 aux différents niveaux de la colonne A. Les traits en pointillés noirs représentent la concentration du traceur dans le mélange injecté à la base de la colonne. Chaque point sur ce graphique représente une valeur moyennée de 10 mesures réalisées par niveau.

Processus physiques, chimiques et biologiques contrôlant les flux de gaz dans les colonnes de sol

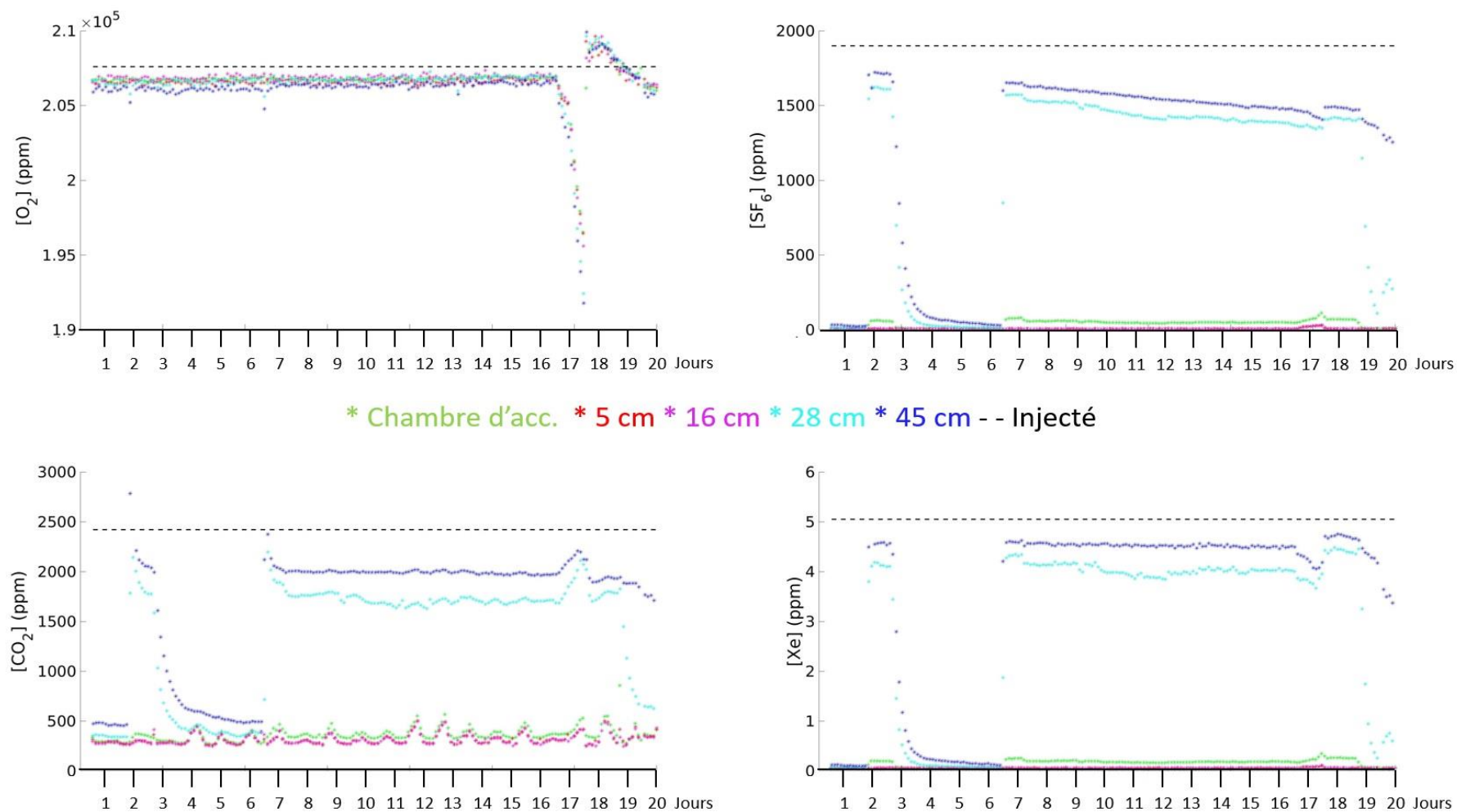


Figure III-8 : Évolution des concentrations en O_2 , CO_2 , Xe et SF_6 aux différents niveaux de la colonne B. Les traits en pointillés noirs représentent la concentration du traceur dans le mélange injecté à la base de la colonne. Chaque point sur ce graphique représente une valeur moyennée de 10 mesures réalisées par niveau.

À partir des mesures d'accumulation il est possible de calculer des flux comme représenté dans les Figures III-9a et III-10b. Cependant, il est important de préciser que le spectromètre de masse était mal calibré, du fait d'une option mal contrôlée du système de pilotage qui lançait une calibration à intervalles répétés alors que le spectromètre de masse n'était pas en situation de faire cette calibration. Il aurait suffi de conserver la calibration initiale effectuée avant de lancer l'expérience. Faute de temps, il n'a cependant pas été possible de lancer une autre expérience. On observera alors que les concentrations mesurées des gaz traceurs ne correspondent pas avec les concentrations injectées (Figures III-7 et III-8). Les valeurs de concentrations et de flux sont donc difficilement discutables et ne servent ici que d'exemple sur les capacités du dispositif expérimental.

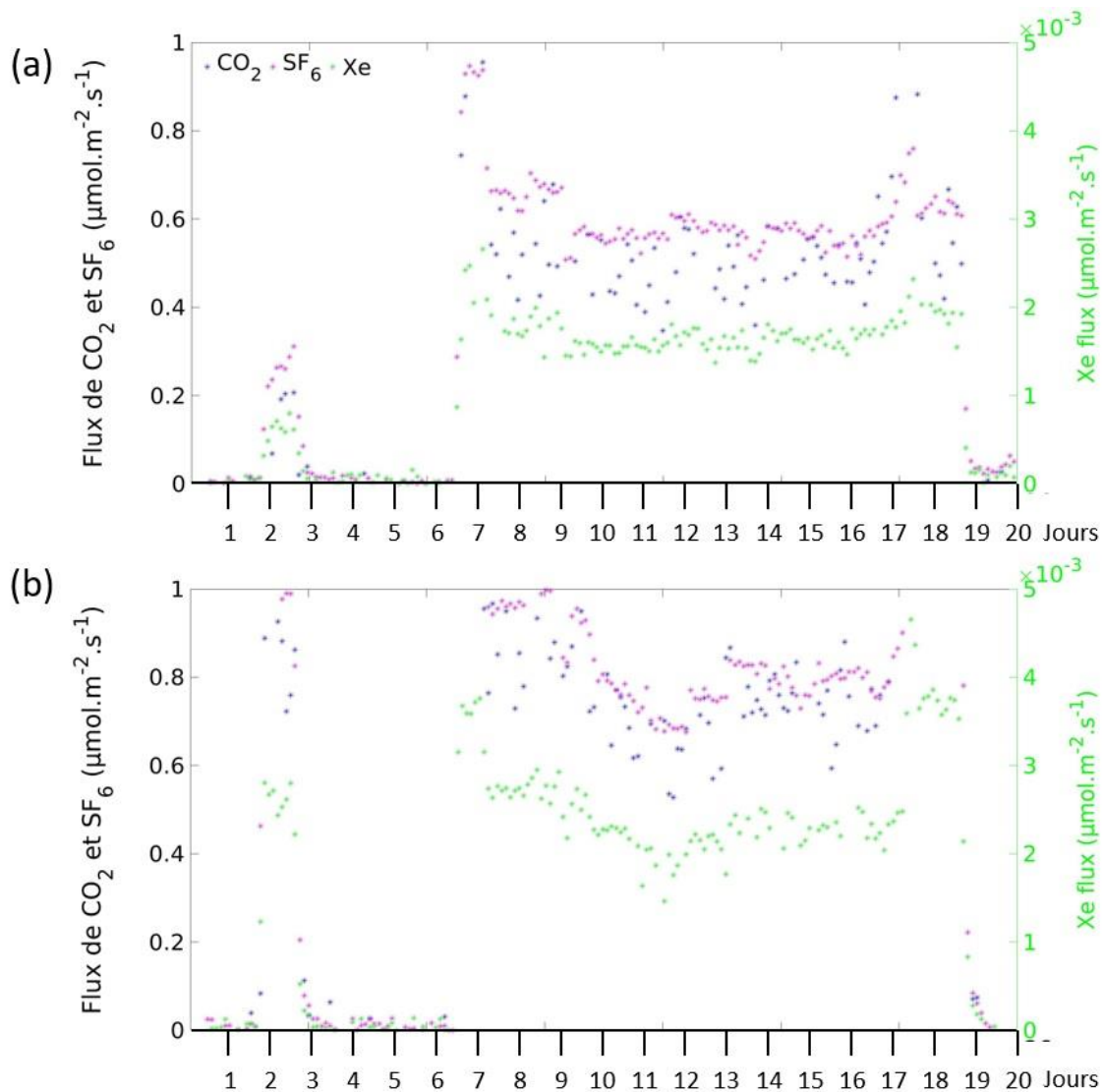


Figure III-9 : Évolution du flux de CO₂, SF₆ et Xe au cours du temps pour (a) la colonne A et (b) la colonne B.

3.4.2.3. Discussions sur le potentiel du dispositif ESCAPe v2

Les résultats de ce premier test permettent de valider le dispositif, tout en déplorant le problème de calibration du spectromètre de masse qui n'a pas permis d'en tirer tout le potentiel. En effet, il a été possible de synchroniser tous les instruments ainsi que de réaliser des mesures de concentrations de nombreux traceurs à différents niveaux dans les deux colonnes. Le spectromètre de masse a permis l'acquisition de 24 points de concentration dans chacune des colonnes à chaque niveau ainsi que de 54 points dans les chambres d'accumulation. Ce nombre de points permet à la fois d'avoir des mesures précises le long des colonnes ainsi que des calculs de flux plus robustes. Cependant, la multiplication des mesures fait que le spectromètre de masse ne peut mesurer à un même endroit qu'à intervalle de 2 heures et 40 minutes.

Néanmoins, avec les premières observations, des points sensibles sont à prendre en compte. Le régulateur de débit asservi à la pression n'est pas encore pleinement maîtrisé, rendant son utilisation difficile sur le long terme. La calibration du spectromètre de masse doit être effectuée lorsque l'instrument est en conditions, et pas entre deux mesures à fortes concentrations. Les mesures de pression au sein des colonnes ne se sont pas révélées pertinentes au cours de cette expérience, avec des variations proches du bruit malgré la forte sensibilité des capteurs. Enfin, le spectromètre de masse dégage beaucoup de chaleur dans les cellules climatiques, nécessitant une régulation de température importante. En effet, une panne de régulation a pu être observée au cours de l'expérience, augmentant en moins de 24 heures la température ambiante dans la cellule de +12°C à +45 °C durant le jour 17.

3.5. Conclusion

Les développements réalisés au cours de ce projet sur la première et la deuxième version du dispositif ESCAPe ont donné de nombreux résultats et sont prometteurs. La première version du dispositif a permis de montrer l'importance de la prise en compte du couvert végétal pour comprendre les mesures de flux de gaz réalisées à l'interface sol-atmosphère. Ceci a notamment été permis par les possibilités d'acquisition à haute résolution sur le long terme offertes par le dispositif ainsi que sa mise en place dans un environnement hautement contrôlé, offert par les ECOLABs. La possibilité de pouvoir travailler sur des colonnes de sols non-saturés en eau, en présence de végétaux tout en contrôlant les

températures ambiantes décorréliées de celles du sol, sont des atouts laissant envisager de nombreuses autres applications, tant dans les domaines du transport en milieu poreux, de l'étude de la zone non-saturée ou encore du permafrost.

La seconde version du dispositif, toujours au stade de validation dans ce manuscrit, représente une opportunité supplémentaire, tant pour explorer de nouveaux champs de recherche avec de nouveaux traceurs que pour compléter les observations réalisées avec la première version. Cependant, il est nécessaire pour cela de pouvoir continuer la maintenance et le développement de ce dispositif expérimental afin de garantir, sur la durée, les capacités explorées jusqu'à aujourd'hui. En effet comme j'ai pu le décrire dans les discussions, la méthode de chambre d'accumulation de par son design et l'analyseur choisi peut être améliorée. L'utilisation du régulateur de pression d'injection en modulant le débit nécessite encore un peu de travail pour être maîtrisé.

Enfin ce dispositif de percolation de gaz hautement contrôlé est un atout intéressant pour la modélisation de transport réactif dans les milieux poreux. Les conditions expérimentales que l'on peut contrôler pour la plupart, et suivre pour les autres, permettent de paramétrer les différentes conditions d'entrée nécessaires aux codes de transport réactifs. C'est ce que j'ai souhaité réaliser dans le cadre de mon projet de thèse avec le code de transport réactif NUFT développé au Lawrence Livermore National Laboratory. Cette partie du projet est présentée dans le Chapitre 4.

4. Modélisation de la migration d'un gaz à travers une colonne de sol non-saturé

Dans ce chapitre, sont présentées les différentes méthodes numériques utilisées dans le cadre de ce projet. Les modélisations ont trois buts : (i) vérifier la pertinence des résultats obtenus en cours ou en fin d'expérience, (ii) quantifier et hiérarchiser les processus mis en évidence lors des expériences en améliorant leur compréhension, (iii) faciliter le design et le dimensionnement des expériences futures à l'aide d'un modèle de transport-réactif.

4.1. Comparaison au premier ordre du flux mesuré à la surface de la colonne avec le flux imposé à la base

Un premier calcul permet de déterminer le flux attendu en surface pour un gaz traceur appliqué à la base d'une colonne, avec une surpression et une concentration donnée, en régime permanent. Ce simple bilan de masse permet de vérifier rapidement la pertinence des résultats. Le principe est tout d'abord expliqué puis ce calcul est appliqué aux expériences que nous avons menées.

4.1.1. Description du calcul de bilan de masse

Cette modélisation part du principe que le milieu poreux n'est pas connu et qu'il est difficile d'établir un profil de concentration. Elle se base donc uniquement sur les conditions imposées à la base et à la surface de la colonne. La colonne est considérée comme un cylindre avec une surface S (m^2) dans lequel circule un gaz traceur, ici le SF_6 , avec une concentration C_{SF_6} (ppmV, partie par million volumique), un débit $D(t)$ ($Nm^3.s^{-1}$), le N indiquant un débit normalisé aux conditions standard P et T , à pression $P_{inj}(t)$ (Pa) et à température $T(t)$ (K). Après plusieurs heures d'injection la colonne est supposée à l'équilibre avec la source de gaz injecté à la base de la colonne et la concentration en SF_6 dans les pores et supposée égale à la concentration en SF_6 de la source de gaz. La concentration en C_{SF_6} doit être exprimée en $mol.m^{-3}$ à partir de la concentration exprimée en ppmV, en tenant compte de la masse molaire M_{SF_6} ($kg.mol^{-1}$) du

traceur et de sa masse volumique ρ_{SF_6} (kg.m^{-3}). Le débit d'injection étant normalisé à pression et température standard (respectivement 101325 Pa et 273.15 K), une correction doit être appliquée en fonction des pressions et températures ambiantes pour obtenir le débit réel $D_{réel}$ grâce à l'équation :

$$D_{réel}(t) = D(t) \cdot \frac{101325}{P_{inj}(t)} \cdot \frac{T(t)}{273.15} \quad (4.1)$$

avec $P_{inj}(t)$ la pression d'injection, soit la somme de la pression atmosphérique et de la surpression imposée à la base de la colonne. Le débit réel est ensuite utilisé pour déterminer le flux imposé à la base de la colonne $F_{inj,SF_6}(t)$ en $\mu\text{mol.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$:

$$F_{inj,SF_6}(t) = C_{SF_6}(t) \cdot \frac{D_{réel}(t)}{S} \cdot \frac{\rho_{SF_6}}{M_{SF_6}} \cdot 10^{-6} \quad (4.2)$$

Dans ce simple bilan de masse en régime permanent, les caractéristiques du milieu poreux ainsi que toutes les modulations ne sont pas prises en compte ici. Ce calcul au premier ordre permet néanmoins de vérifier instantanément la pertinence des mesures comme cela a été montré dans le Chapitre 3. Ce calcul du flux attendu en surface en régime permanent, comparé aux flux mesurés en temps réel à haute résolution, permet d'une part de vérifier le bon déroulement d'une expérience pour intervenir en cas de divergence importante, et d'autre part de mettre en évidence les variations des flux en surface, qui sont la raison d'être de ce dispositif expérimental.

4.1.2. Application aux expériences

Lors de l'expérience décrite dans le Chapitre 3 et objet de l'article [Alibert et al. \(2020\)](#), les flux de SF_6 mesurés à la surface des colonnes ont été comparés avec les flux imposés à la base en utilisant l'équation 4.2 (Figure 4 de l'article [Alibert et al., 2020](#)). Comme il a été montré dans le Tableau 1 de l'article, les flux mesurés représentaient entre 74 et 91 % des flux imposés, selon les conditions, si l'on excepte les premières 24 heures de l'expérience, où le flux mesuré ne représentait que 56 à 65 % du flux imposé.

Une partie de l'écart entre flux imposé et flux mesurés pourrait provenir de l'erreur réalisée lors des mesures de concentration dans la chambre d'accumulation ainsi que lors du calcul des flux, mais il n'est pas attendu d'erreur supérieure à 10 % ([Pavelka et al., 2018](#)). Cet écart plus important que le seul problème de mesure peut s'expliquer par la présence de chemins préférentiels qui déboucheraient sur une partie de la surface non couverte par la cloche lors des mesures, ce qui aboutirait à une sous-estimation de la mesure du flux à la surface de la colonne.

Ces chemins préférentiels pourraient être liés à la présence de racines, qui créent des hétérogénéités verticales dans la zone racinaire en fonction de la densité du couvert végétal qui était non uniforme dans mon expérience (Figure IV-1). Rappelons que la chambre d'accumulation étant immobile et ne recouvrant que 30 % de la surface de la colonne, le flux ainsi mesuré n'est pas nécessairement représentatif de toute la surface de la colonne. Un autre type de chemins préférentiels aurait pu se développer à l'interface entre le sable et le matériau (PEHD) de la colonne qui le contient.

L'écart entre flux imposé et flux mesurés est relativement insensible au débit imposé (Tableau 1 de l'article).

Sur la Figure IV-1 sont représentés, en surface d'une colonne de surface totale S_{tot} de 0,105 m² : (i) la zone utilisée pour la mesure de flux à l'intérieur de la collerette (F_{int}), d'une surface S_{int} de 0,0317 m² et (ii) la zone où le flux n'est pas mesuré à l'extérieur de la collerette (F_{ext}), d'une surface S_{ext} de 0,0733 m². Le flux à l'extérieur de la collerette peut être estimé en formulant l'hypothèse de conservation de la masse, selon :

$$S_{tot} \cdot F_{tot} = S_{int} \cdot F_{int} + S_{ext} \cdot F_{ext} \quad (4.3)$$

Avec

$$S_{tot} = S_{int} + S_{ext} \quad (4.4)$$

Il vient :

$$\frac{F_{int}}{F_{ext}} = \frac{F_{tot}}{F_{ext}} \left(\frac{S_{ext}}{S_{int}} + 1 \right) - \frac{S_{ext}}{S_{int}} \quad (4.5)$$

On observe ainsi que les flux estimés à l'extérieur de la collerette sont toujours supérieurs à ceux mesurés à l'intérieur et que les écarts entre flux mesurés à l'intérieur de la collerette et flux estimés à l'extérieur varient de 19 % à 26 % durant les différentes phases d'injection de l'expérience présentée dans l'article (32 % entre les jours 0-1 et 54-61). Parce que le couvert végétal (et donc le développement racinaire) était plus faible à l'extérieur de la collerette qu'à l'intérieur (Figure IV-1), on peut conclure que l'écart de flux entre ces deux zones ne provient pas de chemins préférentiels formés par les racines des plantes. Cependant, ces calculs ne permettent pas de discuter de la présence de chemins préférentiels au contact sable-PEHD qui reste une hypothèse toujours valable.

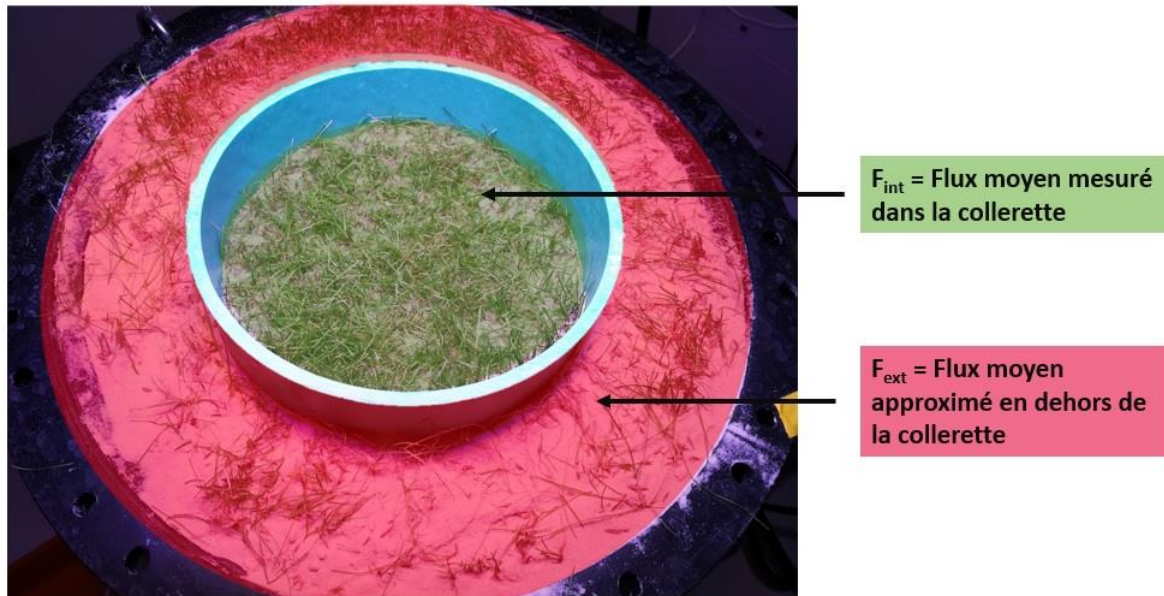


Figure IV-1 : Représentation des deux zones à la surface de la colonne : en vert, la surface utilisée pour la mesure du flux de SF_6 à l'intérieur de la collerette ; en rouge, la surface sans mesure de flux. Une différence de densité du couvert végétal est notable avec plus de plantes à l'intérieur de la collerette.

Le calcul du flux attendu en surface pour un gaz traceur appliqué à la base d'une colonne, avec une surpression et une concentration donnée, est rapide et ne nécessite pas de connaître les caractéristiques hydrodynamiques du sol étudié. Le fait ne pas prendre en compte les caractéristiques du milieu poreux limite l'utilisation de ce calcul à un rôle de supervision d'une expérience plutôt qu'à une interprétation particulière. L'intégration de ce calcul dans le système d'acquisition et de traitement des données, couplé à des messages d'alerte pourrait informer l'utilisateur d'éventuelles dérives indiquant un problème ou, au contraire, que des processus intéressants sont en train de se produire.

4.2. Modélisation 1D en utilisant les variations des conditions des colonnes

Le calcul présenté précédemment ne permet pas une compréhension précise de la migration des gaz dans une colonne de sol. Parce qu'il a été difficile d'avoir des résultats avec un code de transport réactif au début du projet, j'ai tout de même souhaité réaliser mes propres calculs d'advection-diffusion à une dimension pour le design expérimental mis en place. Cette modélisation, réalisée sous Matlab, a pour objectif de déterminer un profil de concentration au cours du temps puis de calculer le flux émis en surface en multipliant la concentration dans la maille en contact avec l'atmosphère par la vitesse de Darcy du gaz. Ces flux calculés pouvaient

alors être comparés avec les mesures. En comparaison avec le calcul de bilan de masse réalisé en régime permanent (voir section précédente), ce calcul tient compte les variations des conditions expérimentales mesurées aux extrémités de la colonne ainsi que les caractéristiques du milieu poreux non saturé.

Pour obtenir les concentrations dans la maille à l'interface entre la colonne et l'atmosphère, j'ai utilisé différentes équations dont les paramètres varient avec la température et la saturation en eau. Pour cela, je me suis aidé de la disposition des sondes de teneur en eau et de température pour réaliser un maillage de 3 cellules (Figure IV-2). Les 3 mailles découpant le milieu poreux non-saturé sont configurées de sorte à comporter chacune une sonde de teneur en eau pour les caractériser.

Les hypothèses pour réaliser les calculs présentés par la suite sont les suivantes :

- Parce qu'il est difficile de prendre en compte, dans le calcul, la saturation totale en eau de la frange capillaire, j'ai arbitrairement choisi d'appliquer les conditions aux limites à son sommet, alors qu'elles sont expérimentalement appliquées à sa base.
- Les variations de hauteur de la frange capillaire n'ayant pas pu être mesurées avec les sondes de teneur en eau, elle est ici supposée constante au cours du temps avec une hauteur approximée à 16 cm (à l'aide du code Hydrus-1D et des paramètres de Van Genuchten déterminés expérimentalement), malgré les variations de teneurs en eau observée au cours de l'expérience.

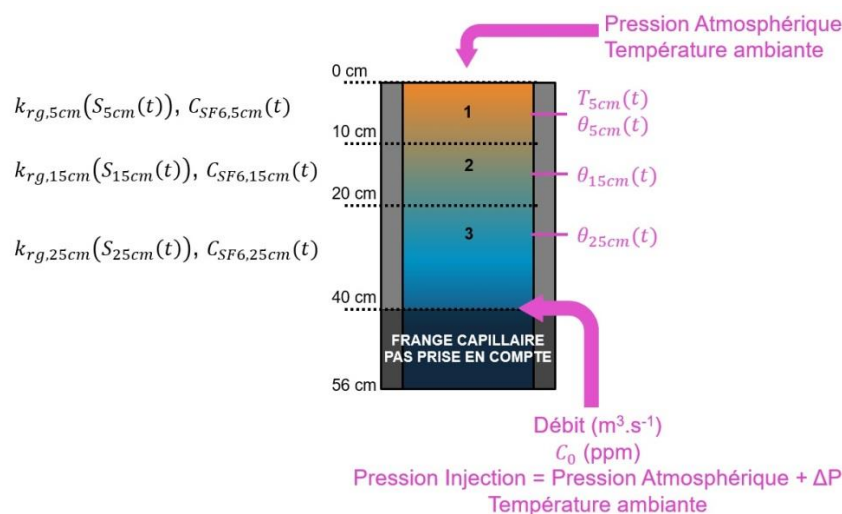


Figure IV-2 : Géométrie utilisée pour le modèle 1D. La colonne est découpée en 3 mailles entre le sommet de la frange capillaire et l'atmosphère. Dans chaque maille sont calculées une valeur de la perméabilité relative au gaz (k_{rg} , dépendante de la saturation en eau moyenne dans la maille, $S(t)$) ainsi qu'une concentration en SF_6 (C_{SF6}). Chaque maille comporte une sonde de teneur en eau. En rose sont représentées les conditions aux limites.

Pour établir un profil de concentration du SF₆ en fonction des conditions expérimentales, j'ai appliqué l'équation d'advection-dispersion suivante à chacune des mailles (d'après Ogata et Banks, 1961) :

$$C_{SF_6}(t) = \frac{C_0}{2} \cdot \left[\operatorname{erfc} \left(\frac{1-\zeta(t)}{2\sqrt{\zeta(t)\eta(t)}} \right) + e^{\frac{1}{\eta(t)}} \cdot \operatorname{erfc} \left(\frac{1+\zeta(t)}{2\sqrt{\zeta(t)\eta(t)}} \right) \right] \quad (4.6)$$

Avec pour chaque maille les paramètres utilisés et calculés suivants :

$$\zeta(t) = u_{SF_6}(t) \cdot \frac{\Delta t}{\Delta h} \quad (4.7)$$

$$\eta(t) = \frac{D_{SF_6}}{u_{SF_6}(t) \cdot \Delta h} \quad (4.8)$$

Avec C_0 la concentration à la base de la maille (mol.m⁻³), $u_{SF_6}(t)$ la vitesse de Darcy du SF₆ (m.s⁻¹), Δt le pas de temps (s), Δh la hauteur de la maille (m) et D_{SF_6} le coefficient de dispersion du SF₆ (1.10⁻⁵ m².s⁻¹).

Le flux de SF₆, $F_{SF_6}(t)$, exprimé en μmol.m⁻².s⁻¹, est ensuite déduit comme suit :

$$F_{SF_6}(t) = C_{SF_6,5cm}(t) \cdot u_{SF_6,5cm}(t) \cdot 10^6 \quad (4.9)$$

Deux cas ont été considérés :

CAS 1 : L'écoulement est supposé à l'état stationnaire impliquant dans chaque maille à chaque instant t :

$$u_{SF_6,5cm}(t) = u_{SF_6,15cm}(t) = u_{SF_6,25cm}(t) = u_{SF_6,inj}(t) \quad (4.10)$$

La vitesse est ensuite multipliée à la concentration modélisée dans la maille 1 à 5 cm de profondeur à l'aide de l'équation (4.6). La modélisation 0D utilisant l'équation (4.2) ne considèrerait pas le milieu poreux. Seules étaient prises en compte les conditions aux limites et la nature de l'injection (concentration en SF₆ de la source et débit). À la différence de l'équation (4.2), le cas 1 prend en compte l'effet du milieu poreux sur la concentration en SF₆ présent dans la maille numéro 1, à l'interface avec l'atmosphère, en supposant que le régime permanent est établi. Ceci est permis grâce aux caractérisations en amont du milieu poreux et des mesures réalisées au cours de l'expérience.

CAS 2 : Tout comme le cas 1, je me suis intéressé aux caractéristiques de la maille numéro 1, en contact avec l'atmosphère, en gardant l'hypothèse que le régime permanent est établi. Les mesures de températures et de teneur en eau sont utilisées pour appliquer deux facteurs de correction sur $u_{SF_6,5cm}(t)$ en fonction de la saturation en eau S_{5cm} et de la température T_{5cm} dans la maille numéro 1 située entre 0 et 5 cm sous la surface avec l'équation suivante :

$$u_{SF_6,5cm}(t) = u_{SF_6,inj}(t) \cdot \frac{k_{int}}{k_{rg,5cm}(S_{5cm}(t))} \cdot \frac{\mu_{5cm}(T_{5cm}(t))}{\mu_0} \quad (4.11)$$

avec k_{int} la perméabilité intrinsèque du sable ($3.6.10^{-12} \text{ m}^2$), $k_{rg,5cm}(S_{5cm}(t))$ la perméabilité relative au gaz du milieu poreux en fonction de la saturation en eau, μ_0 la viscosité standard du mélange contenant le SF₆ ($1.81.10^{-5} \text{ kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$ à 15°C) et $\mu_{5cm}(T_{5cm}(t))$ la viscosité réelle du SF₆ à la température mesurée à 5 cm. La perméabilité relative dans la maille n°1 est calculée à l'aide du modèle de Brooks et Corey (1966) à l'aide des équations (1.9) et (1.10) du Chapitre 1 appliquées à la maille numéro 1 de mon modèle donnant les équations suivantes :

$$S_{e,5cm}(t) = \frac{S_{5cm}(t) - S_{wr}(t)}{S_{wmax} - S_{wr}(t)} \quad (4.12)$$

avec $S_{e,5cm}(t)$ la saturation en eau effective à 5cm, S_{wr} la saturation en eau résiduelle choisie arbitrairement (voir discussion ci-dessous) et S_{wmax} la saturation maximale du système choisie à 1, donnant par la suite :

$$k_{rg,5cm}(S_{5cm}(t)) = (1 - S_{e,5cm})^2 (1 - S_{e,5cm}^{3-2m}) \quad (4.13)$$

avec m valant $1,7.10^{-1}$.

La viscosité s'exprime en fonction de la température selon :

$$\mu_{5cm}(T_{5cm}(t)) = \mu_0 \cdot \frac{T_{5cm}(t) + 273,15}{298,15} \cdot \frac{298,15 + T_{suth}}{T_{5cm} + 273,15 + T_{suth}} \quad (4.14)$$

Avec $T_{5cm}(t)$ la température mesurée dans la maille n°1 (°C) et T_{suth} la température de Sutherland, constante valant 110,4 K pour l'air.

Suite à une estimation présentée en annexe de l'article Alibert et al. (2020), j'ai choisi de négliger la solubilité du SF₆ dans le calcul des concentrations dans chaque maille car les quantités dissoutes généraient peu de variations sur les flux (moins de 0. 1 %).

Sur la Figure IV-3, est représenté le profil de concentration en SF₆ obtenu par la modélisation 1D dans le cas de l'expérience décrite dans le Chapitre 3 et objet de l'article Alibert et al. (2020). Pour modéliser les flux de SF₆, la concentration en SF₆ à 5 cm est ensuite utilisée dans les équations (4.9) et (4.11) respectivement pour les cas 1 et 2. Les différents flux obtenus sont représentés sur la Figure IV-4.

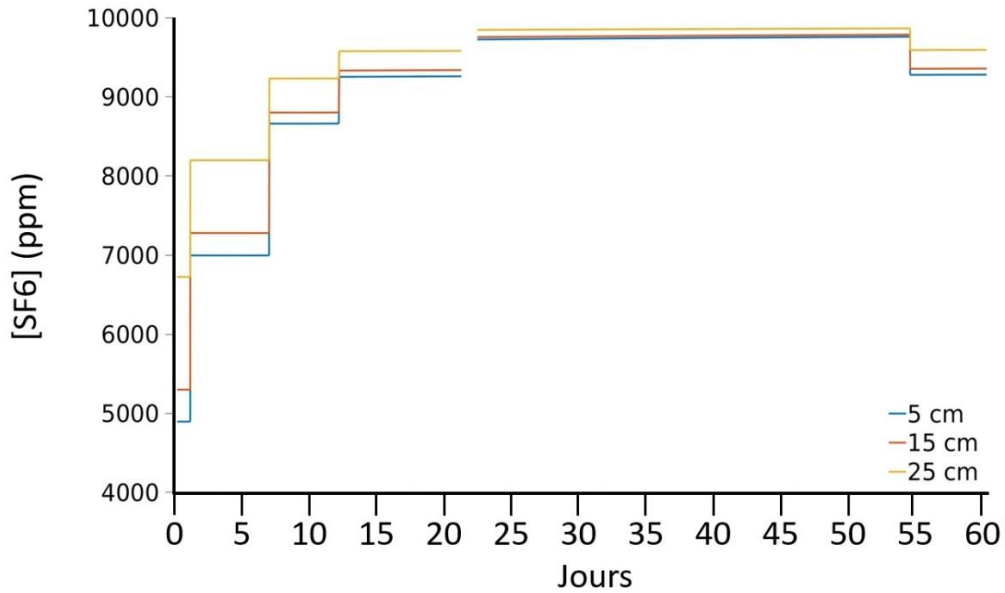


Figure IV-3 : Profils de concentrations en SF_6 calculés en fonction du temps dans 3 mailles, à 5, 15 et 25 cm de profondeur dans la colonne, dans le cas de l'expérience décrite dans le Chapitre 3 et objet de l'article Alibert et al. (2020).

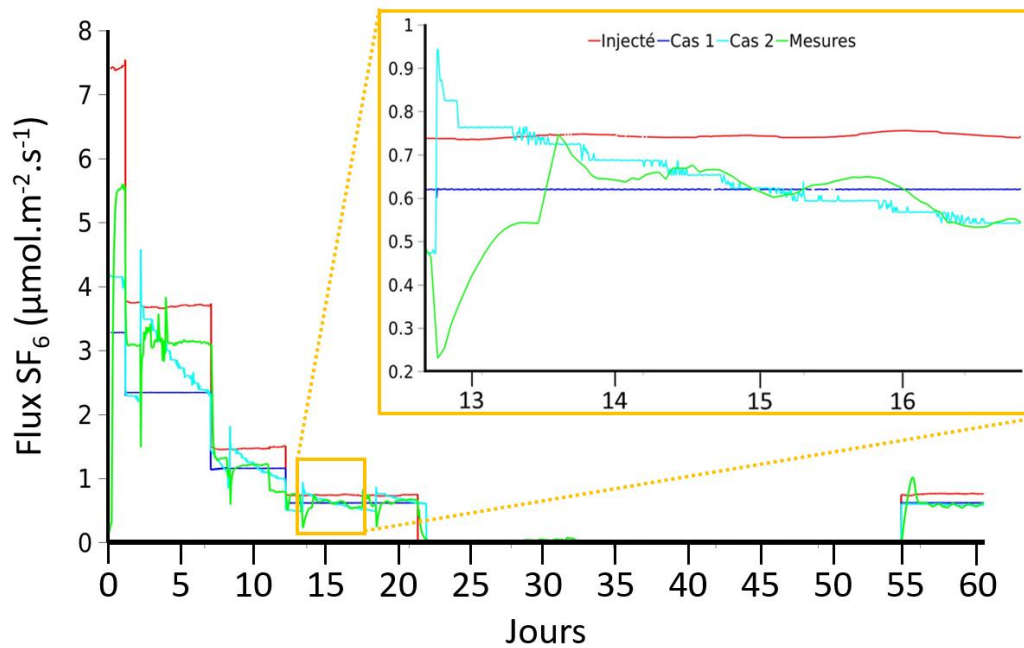


Figure IV-4 : Comparaison des différents flux de SF_6 , mesurés et modélisés, dans le cas de l'expérience objet de l'article Alibert et al. (2020) décrite dans le Chapitre 3. En rouge, le flux injecté calculé à partir de l'équation (4.2). En bleu, le modèle en régime permanent en prenant l'équation (4.9) dans le Cas 1. En cyan, le modèle utilisant l'équation (4.11) dans le Cas 2. En vert, le flux mesuré. En insert, un agrandissement permet de mieux visualiser les améliorations apportées par le modèle 1D (courbes en cyan et en bleu) par rapport à la courbe en rouge.

On peut alors faire les observations suivantes. Tout d'abord, dans les deux cas, les concentrations en SF₆ dans la colonne, même à l'équilibre après 21 jours d'injection, est différent de la concentration injectée. Ces différences expliquent dans un premier les écarts observables avec le modèle 0D.

CAS 1 : Le modèle 1D a permis d'améliorer l'estimation du flux en surface qui était surestimé par le simple bilan de masse en régime stationnaire. Les écarts entre les flux mesurés et injectés ont été supprimés pour les périodes 6-12, 12-21 et 54-61 (plus faibles débits d'injection). À contrario, les flux estimés pour des débits plus forts (les 6 premiers jours) sont inférieurs aux flux mesurés. Ceci va à l'encontre de l'hypothèse avancée précédemment sur la présence de chemins préférentiels. Ce modèle semble indiquer que des chemins préférentiels favoriseraient la migration de gaz au centre de la colonne. Ceci aurait donc pour conséquence de favoriser l'accumulation du gaz dans la chambre d'accumulation et donc une valeur de flux mesurée supérieure à la valeur modélisée.

CAS 2 : En intégrant les variations de température et de saturation en eau du système dans le Cas 2 (courbe en cyan Figure IV-4) on peut rendre compte, pour la première fois, de variations dans le flux de SF₆. Ces variations, beaucoup plus liées aux variations de teneur en eau qu'aux variations de température, sont corrélées avec les cycles d'arrosage et d'évaporation/évapotranspiration, comme discuté dans l'article au Chapitre 3. En étudiant la sensibilité des paramètres de ce modèle 1D variable, il semble que la valeur imposée pour la saturation en eau résiduelle (S_{wr}) dans l'équation (4.12) soit trop grande. Ce paramètre n'ayant pas pu être estimé expérimentalement, j'ai optimisé sa valeur afin d'obtenir le meilleur ajustement entre le flux modélisé et le flux mesuré. La courbe en cyan présentée dans la Figure IV-4 a été calculée avec une saturation résiduelle variable selon les différentes phases de l'expérience, dont les valeurs sont présentées dans le Tableau IV-1 et seront discutées par la suite.

Tableau IV-1 : Valeur de la saturation en eau résiduelle (S_{wr}) imposée au modèle pour l'obtention d'un meilleur calcul de flux de SF₆ à la surface de la colonne.

Date (jours)	0 – 1	1 – 6	6 – 12	12 – 21	54 – 61
S_{wr}	0,0005	0,08	0,17	0,2	0,001

L'écart entre les flux modélisés et mesurés a été largement réduit sur les périodes à fort débit d'injection entre les jours 1 et 6. Les flux modélisés de cette façon prennent en compte les arrosages ainsi que l'évapotranspiration : (i) lorsque de l'eau est ajoutée, le modèle décrit une forte augmentation du flux comme il a pu être observé expérimentalement, (ii) lorsqu'il y a des pertes d'eau au cours du temps, les flux modélisés diminuent progressivement, ce qui a également été mesuré expérimentalement. Afin de commenter plus en détail cette variation, j'ai ajouté, en insert à la figure IV-4, un zoom entre les jours 12 et 17.

Le flux augmente abruptement dans le modèle, après l'arrosage, alors qu'expérimentalement cette augmentation est progressive, associée au drainage de l'eau ajoutée dans la colonne au jour 12. Ceci est dû à la faible quantité de mailles et de pas de temps du modèle, qui obligent à intégrer instantanément l'eau ajoutée au système, empêchant la modélisation de régime transitoire. Cependant, la modélisation du flux à la surface durant la période d'évapotranspiration entre les jours 12 et 17 décrit correctement la diminution du flux de SF₆ mesuré à la surface. En effet expérimentalement sur la période entre les jours 13 et 17, le flux mesuré diminue de 29,5 % en passant de 0,74 à 0,53 $\mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ et le flux modélisé diminue de 24,3 % en passant de 0,70 à 0,53 $\mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$.

Bien que les modèles reposent sur des hypothèses (écoulement stationnaire permanent) et approximations (faible nombre de mailles considérées, hauteur de la frange capillaire) et que l'estimation de certains paramètres soit discutable (saturation résiduelle en eau), il est intéressant de voir qu'il est ici possible de réaliser de meilleurs calculs au premier ordre pour vérifier la pertinence des résultats expérimentaux et mieux mettre en évidence l'origine des modulations des flux. Grâce aux deux cas, il nous est possible de rejeter l'hypothèse de chemins préférentiels pouvant créer un flux non-uniforme à la surface de la colonne. Ces modèles mettent clairement en évidence le contrôle des variations de teneur en eau sur les flux de gaz émis à la surface de la colonne. L'avantage de ce modèle réside dans l'accessibilité du calcul, en utilisant seulement 3 mesures de teneur en eau et la perméabilité intrinsèque caractérisée en amont. Néanmoins, la sensibilité à la saturation en eau résiduelle du modèle 1D dans le Cas 2 doit être approfondie. La notion de saturation résiduelle en eau ne fait pas l'unanimité selon les auteurs et dépend souvent du modèle utilisé (Sirois, 2014). Pour le modèle de Brooks et Corey (1964) la saturation résiduelle en eau est atteinte pour des forces de tension (capillaire + adsorption) infinie, alors que pour Van Genuchten (1980) lorsque les forces avoisinent les 1500 kPa. Le point commun de ces définitions est de considérer que la saturation en eau résiduelle est atteinte lorsque l'eau sous forme liquide est discontinuée au sein de la colonne de sol. Selon

la granulométrie des sables étudiés, la définition de chacun et les méthodes de détermination appliquées, la saturation en eau résiduelle varie entre 0,001 et 0,37 (Yang et You, 2013 ; Sirois, 2014 ; Ella *et al.*, 2016). Dans notre cas, il semble que la valeur de saturation résiduelle en eau optimale pour le modèle possède un ordre de grandeur équivalent à la valeur de saturation en eau mesurée à 5 cm de profondeur (qui varie entre 0,1 et 0,4 en fonction des conditions de la colonne, des arrosages et des séchages). En effet, pour réaliser la meilleure approximation, il a fallu augmenter au cours du temps la valeur de S_{wr} de 0,08 à 0,2 entre les jours 2 et 21. Étant donné que la saturation résiduelle en eau est dépendante de la présence des plantes (Carminati *et al.*, 2010), il semble que l'augmentation de la valeur de S_{wr} imposée à mon modèle au cours du temps soit corrélée à un développement racinaire dans la colonne au cours du temps. Concernant la période entre les jours 54 et 61, la colonne n'a pas été arrosée depuis plus de 11 jours, expliquant la faible valeur imposée à la saturation en eau résiduelle.

Il est difficile de déterminer si les valeurs imposées sont pertinentes ou non sans modélisation, via une simulation numérique plus poussée. De plus, ces modèles ne permettent pas de travailler sur les variations de second ordre associées au métabolisme des plantes. Afin d'aller plus loin dans l'analyse et la compréhension du système, il apparaît donc impératif de travailler avec des codes de transport réactif. Pour cela, j'ai eu l'opportunité de travailler avec les codes HYTEC et NUFT. Ce travail est présenté dans la Section 4.3. suivante.

4.3. Modélisation 2D à symétrie cylindrique en utilisant des codes de transport réactif

L'utilisation de codes de transport réactif a été beaucoup plus difficile que prévu à l'origine de ce projet. J'ai pourtant bénéficié de collaborations existantes entre le CEA et deux organismes qui ont développé des codes, dont il semblait, d'après la littérature et un premier niveau de discussion avec leurs développeurs, qu'ils seraient tout à fait pertinents pour nos applications. Rappelons que l'objectif était de pouvoir établir rapidement un modèle de percolation de gaz dans une colonne de sol non saturé en eau, afin de pouvoir ajouter, comme mis en évidence dans le Chapitre 3 et l'article Alibert *et al.* (2020), dans un premier temps, une fonction d'évaporation/évapotranspiration, et dans un second temps, une source de CO₂ et un puits d'O₂, avec des solubilités contrastées, pour simuler un autre effet du métabolisme des plantes.

Tout d'abord, nous nous sommes rapprochés de MINES ParisTech qui a développé le code HYTEC et dont le Centre de Géosciences, à Fontainebleau, est situé à proximité de l'Ecotron

IleDeFrance. Par la suite, nous nous sommes rapprochés du Lawrence Livermore National Laboratory (Californie), qui a développé le code NUFT. Les descriptifs de ces codes sont donnés dans le Chapitre 1.

Avec les codes HYTEC et NUFT, il s'est avéré cependant beaucoup plus compliqué que prévu de prendre en compte les conditions utilisées pour nos expériences. En effet, la percolation d'un gaz à travers une frange capillaire (saturée en eau) à la base d'une colonne de milieu poreux est impossible dans les conditions actuelles d'utilisation de ces codes. Cette condition d'injection ne faisant pas partie des applications principales de chacun des deux organismes, les développements permettant une telle modélisation n'entraient malheureusement pas dans leurs priorités, même si cette problématique était jugée intéressante. Ceci explique l'aide modérée mais néanmoins appréciée dont j'ai pu bénéficier sur ce problème, non sans avoir au préalable bénéficié des formations à l'usage général de ces codes.

Après avoir travaillé un temps avec les deux codes de transport, j'ai fini par choisir NUFT, qui semblait plus adapté, au moins en partie, aux conditions que je souhaitais modéliser. J'ai dû alors adapter ma stratégie de modélisation pour continuer à avancer sur l'étude des processus mis en évidence par les expériences. Tout d'abord, je me suis intéressé à l'établissement d'un profil de saturation en eau. En effet, la teneur en eau étant un facteur important des variations de flux à l'interface sol-atmosphère, la maîtrise de la répartition de l'eau dans les modèles est essentielle pour la suite du travail. Dans un second temps j'ai travaillé sur l'injection d'un gaz traceur à la base d'une colonne de sol non saturé en eau tout en essayant de m'affranchir du problème numérique lié à la présence d'une frange capillaire complètement saturée. Les principales avancées sur ces deux aspects sont décrites ci-après.

4.3.1. Présentation de la méthode

Grâce à l'utilisation de NUFT, le modèle devient 2D alors que je travaillais uniquement en 1D jusqu'à présent. Le modèle prend en compte la totalité de la colonne, y compris le volume d'injection composé à 100 % d'une phase gaz, sous la frange capillaire, dont la porosité est saturée en eau. Pour y parvenir, les étapes de la modélisation ont été les suivantes :

- (i) Modéliser un profil de teneur en eau dans la matrice similaire au profil mesuré, en ajustant les paramètres α et m ;
- (ii) Réaliser une injection de gaz à débit constant dans un volume d'injection situé à la base de la frange capillaire en utilisant la méthode de double-perméabilité et en ajustant les paramètres k , α et m des matrices et des fractures.

- (iii) Obtenir un flux à la sortie du modèle similaire aux flux expérimentaux, en accord avec les conditions d'injection, tout en garantissant la conservation de la masse du traceur dans le système, en comparant les quantités de SF₆ injectées et les quantités intégrées de SF₆ dans le système.
- (iv) Étudier la sensibilité des modulations du flux de gaz en surface aux paramètres tels que la perméabilité et la porosité de la matrice, les caractéristiques des fractures ainsi que les profils de teneur en eau,
- (v) Implémenter dans le modèle les conditions aux limites mesurées au cours du temps pendant l'expérience, dont les fluctuations de pression barométrique,
- (vi) Implémenter la réaction de respiration sur plusieurs mailles décrivant la zone racinaire (production de CO₂, consommation d'O₂).

Dans le cadre de ce projet je me suis arrêté au point (iv) par manque de temps.

4.3.2. Établissement du profil de saturation en eau dans une colonne de sol non-saturé avec double perméabilité

L'artifice que nous avons utilisé afin de pouvoir réaliser une injection de gaz à travers la frange capillaire (saturée en eau) a été de générer artificiellement un passage permettant au gaz de franchir la frange capillaire. C'est avec cet objectif que j'ai utilisé la méthode de double-perméabilité avec le code NUFT. Cette méthode consiste à considérer le milieu comme composé d'une matrice poreuse et de fractures discrètes. Ces fractures peuvent avoir des propriétés physiques différentes de la matrice, tels que la perméabilité intrinsèque et les paramètres de Van Genuchten α et m (Tableau IV-2). Il est ainsi possible de tester différentes configurations de fractures en paramétrant leur espacement dans le milieu (longueur et surface de contact) et leurs propriétés hydrodynamiques. Les fractures ont une perméabilité intrinsèque égale à celle du sable utilisé dans l'expérience, tandis que la matrice a une perméabilité plus faible pour forcer la migration du gaz dans les fractures. La difficulté a été de choisir les paramètres de Van Genuchten de la matrice de sorte que le profil de teneur en eau obtenu soit similaire aux mesures (la matrice étant la composante majeure du milieu poreux) tout en faisant en sorte la teneur en eau dans les fractures ne soit pas trop forte pour faciliter la migration du gaz. Sur la Figure IV-5, sont représentés les profils de saturation dans la matrice et les fractures. Comme souhaité, les fractures possèdent moins d'eau afin de faciliter la percolation du gaz du

volume d'injection dans le milieu poreux. Le profil de saturation dans la matrice correspond avec les mesures réalisées expérimentalement à trois niveaux de la colonne au cours du temps.

Tableau IV-2 : Paramètres hydrodynamiques (perméabilité intrinsèque k et coefficients de Van Genuchten α et m) utilisés pour décrire le milieu poreux à double perméabilité, composé d'une matrice et de fractures.

	k (m ²)	α (Pa-1)	m
Matrice	$1,83 \cdot 10^{-22}$	$2,6 \cdot 10^{-4}$	$1,7 \cdot 10^{-1}$
Fracture	$3,6 \cdot 10^{-12}$	$2,6 \cdot 10^{-4}$	$7,4 \cdot 10^{-4}$

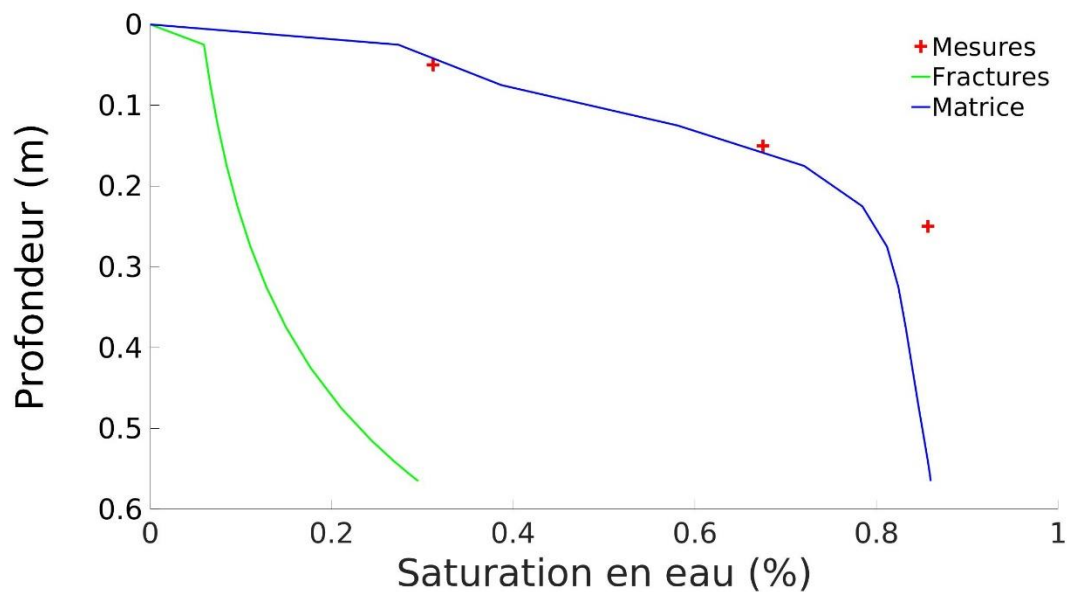


Figure IV-5 : Profil de teneur en eau modélisé dans la colonne de sable avec le code NUFT. En vert dans les fractures, en bleu dans la matrice et en rouge la mesure expérimentale.

4.3.3. Modélisation d'une percolation de SF₆ à travers une colonne de sol non-saturée en eau à double-perméabilité

Pour modéliser un flux de SF₆ à la surface d'une colonne de sol non-saturé en eau avec double perméabilité, j'ai écrit un script utilisant le code NUFT (voir Annexe 1 de ce manuscrit). Le script utilise un module de calcul diphasique (équations de Richards) et le SF₆ est considéré comme un traceur peu soluble. La colonne de sol est décrite par 4 compartiments pour un total de 600 mailles représentant (i) l'atmosphère, (ii) le milieu poreux à double porosité, (iii) le volume d'injection et (iv) les bords et le fond de la colonne en PEHD. Les conditions aux limites ont été imposées uniquement dans l'atmosphère et sur les mailles des bords et du fond, en empêchant tout écoulement dans ces mailles. J'ai ensuite configuré une injection à

concentration et débit constants dans le volume d'injection. Pour ces étapes, j'ai choisi de me baser sur les conditions expérimentales pour la période entre les jours 15 et 20 durant laquelle la modulation du flux induite par les plantes était observable. L'injection était de $10 \text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$ avec une concentration de 10 000 ppm de SF_6 . J'ai choisi de modéliser ces conditions d'injection sur une période plus longue de 500 heures afin d'observer la pertinence des résultats simulés concernant les profils de saturation, les flux de SF_6 à la surface et la conservation de la masse en SF_6 dans tout le système. Sur la Figure IV-6, sont représentés les flux de SF_6 imposés à la base de la colonne dans le volume d'injection et les flux en surface calculés pour la matrice et les fractures. Nous pouvons observer un flux positif sortant de la colonne montrant qu'une percolation de gaz a bien lieu à travers la frange capillaire. Il apparaît que le traceur passe effectivement en majorité par les fractures avec un flux quasi égal au flux d'injection. La somme des deux flux sortants est bien égale au flux imposé. Un bilan de masse sur l'ensemble du système permet de vérifier la robustesse de la simulation. Après les 500 heures, la somme des quantités de SF_6 présentes dans la colonne (phase liquide, phase gaz) et la quantité intégrée dans le temps du SF_6 sortant à la surface de la colonne correspond bien à la quantité de SF_6 ayant été injectée. Cette conservation de la masse est représentée dans le Tableau IV-3.

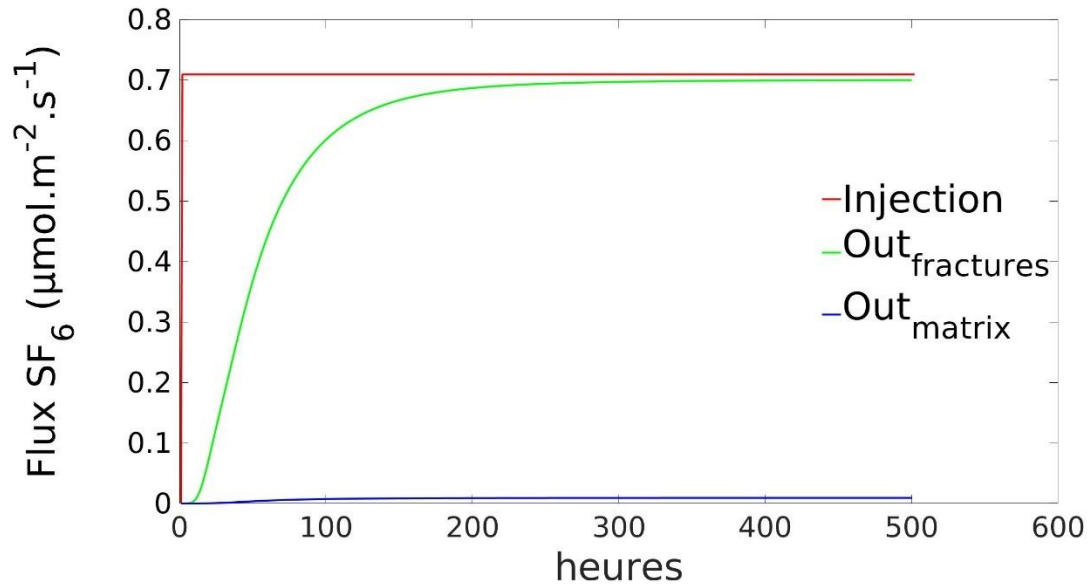


Figure IV-6 : Comparaison des flux de SF₆ sortant par les fractures (vert), par la matrice (bleu) avec le flux imposé en injection (rouge). Modélisation réalisée pour une colonne de sable non-saturé avec le code NUFT.

Tableau IV-3 : Masses de SF₆ (kg) dans une colonne de sol non saturé en eau dans les différents compartiments (Fracture, Matrice) et dans les différentes phases (gaz, eau) et comparaison avec les flux injectés et sortants.

		Fracture	Matrice	Tot	Injecté
Compar timents	Gaz	0.0012	$9.8841.10^{-4}$	0.0022	0.0186
	Eau	$5.3292.10^{-7}$	$5.5973.10^{-4}$	$6.1302.10^{-6}$	
	Flux sortant	0.0162	$2.0358.10^{-4}$	0.0164	
	Total gaz + eau	0.0174	0.0012	0.0186	

4.3.4. Étude de la sensibilité du flux de SF₆ à différents paramètres

Ces premières avancées dans la modélisation ont permis de réaliser une injection de gaz à travers une frange capillaire tout en respectant la géométrie et les conditions de l'expérience. Même si pour cela il a fallu utiliser un artifice en imposant numériquement des fractures dans le milieu poreux et que cela s'écarte de la réalité expérimentale, les premiers résultats obtenus correspondent aux observations. Avant de pouvoir passer à des études de cas variables, l'étape suivante consiste à utiliser le logiciel d'optimisation de paramètres PSUADE, développé par le Lawrence Livermore National Laboratory. Cette étape revient à déterminer une fonction dite objective à partir des mesures expérimentales. La fonction objective correspond à une fonction décrivant spécifiquement le système étudié permettant au modélisateur d'optimiser le modèle

par rapport aux observations (ex : évolution de la masse d'eau du système, intégration dans le temps de la quantité de traceur émis à la surface du système). Grâce à ce logiciel, il est possible de réaliser l'étude de sensibilité de la fonction objective de différents modèles choisis aléatoirement, chacun étant associés à différents paramètres ciblés, sur des gammes de valeurs imposées. Ainsi, il est possible d'obtenir la meilleure combinaison de paramètres décrivant la fonction objective la plus ressemblante à l'expérience. J'ai initié ce travail en effectuant 1000 simulations faisant varier les paramètres de Van Genuchten ainsi que 500 simulations faisant varier la perméabilité et la densité des fractures. Cependant, aucun traitement des données en lien avec une fonction objective n'a pu être apporté à temps pour ce manuscrit.

4.4. Conclusion

La philosophie de ce projet était de lier, dès le départ, la modélisation à l'expérimentation. C'est avec cette volonté de monter un projet expérimental « assisté » par la modélisation que des collaborations ont été montées avec MINES ParisTech pour HYTEC et le Lawrence Livermore National Laboratory pour NUFT.

Comme nous avons découvert trop tard qu'il n'existait pas encore de modèle de transport permettant de modéliser le système ESCAPE avec nos conditions expérimentales, j'ai choisi, dans un premier temps, d'effectuer un calcul de bilan de masse (modèle 0D) puis de coder un modèle 1D sous Matlab, en parallèle de la prise en main des codes HYTEC et NUFT, dans l'attente des développements nécessaires. Ce modèle 1D, calculé pour différents cas et associé à un bilan de masse, m'a permis de vérifier la pertinence de mes résultats expérimentaux. L'avantage de ces modèles (0D et 1D) réside dans leur simplicité d'utilisation une fois développés. Bien qu'ils utilisent des hypothèses parfois fortes, leur utilisation en cours d'expérience est rapide et les résultats sont suffisants pour permettre un suivi de l'expérience. Les différents degrés de précision selon les calculs utilisés permettent d'adapter le suivi possible de l'expérience en cours, en fonction de l'instrumentation et de la caractérisation du milieu poreux étudié. À la fin du développement, il a aussi été possible de réaliser un modèle prenant en compte les changements d'état hydriques de la colonne en intégrant les mesures de teneur en eau. Ceci a permis la validation des résultats, tant sur les ordres de grandeur des flux mesurés, que sur les variations au premier ordre engendrées par le gain ou la perte d'eau du système. Ces modèles ont aussi permis de discuter des chemins préférentiels et de l'effet possible de la dissolution du SF₆ au cours de l'expérience. Ces deux facteurs (chemins préférentiels et dissolution) ont alors pu être écartés des interprétations des résultats. Une

discussion a pu être ouverte concernant le possible rôle des plantes sur la valeur de saturation résiduelle en eau du milieu poreux, paramètre sensible pour le modèle 1D.

Bien que les calculs au premier ordre soient utiles en cours d'expérience pour des vérifications rapides, il est nécessaire de passer par un modèle numérique de transport réactif complet pour aller plus loin dans l'analyse des résultats. Dans le cadre de ce projet, j'ai pu développer mes scripts NUFT jusqu'à l'obtention d'un profil de saturation correspondant aux mesures réalisées *in-situ*. Parce que les codes n'arrivent pas à décrire le passage d'une phase gaz à travers une frange capillaire d'un milieu poreux homogène, j'ai dû utiliser la méthode de double-perméabilité pour pallier cette contrainte numérique. En modélisant un système de fractures dans une matrice poreuse, j'ai pu réaliser la simulation d'une injection de gaz dans des conditions simplifiées proches de celles de mon expérience. Les résultats de cette modélisation sont pertinents et permettent d'avancer dans le développement du modèle afin d'intégrer, étape par étape, les différentes complexités et variations du système réel étudié. Plusieurs mois de travaux sont encore nécessaires, selon l'appui qui pourra être apporté par le Lawrence Livermore National Laboratory. Bien que le script nécessite encore du développement pour aider à l'interprétation et la compréhension des résultats expérimentaux, les futures étapes au développement de la simulation numérique utilisée dans le cadre d'expérience en colonne sont présentées dans les perspectives du Chapitre 5. Le code HYTEC ne semble toujours pas prêt à l'emploi. Cependant la collaboration est toujours d'actualité et des discussions sont toujours en cours sur un potentiel travail en commun autour de ce projet.

5. Conclusion générale et perspectives

Les flux de gaz à l'interface sol-atmosphère sont soumis à des conditions dynamiques et variables dans le temps et l'espace. Cette complexité a soulevé trois questions auxquelles j'ai souhaité répondre au cours de ce projet de thèse. Une réponse à chacune de ces questions est apportée dans ce chapitre, suivi des perspectives de futures expériences et développements, tant techniques que numériques.

5.1. Flux de gaz émis du sol vers l'atmosphère : des mécanismes de contrôle couplés

Quels sont les mécanismes physiques, chimiques et biologiques pouvant contrôler les flux de gaz à l'interface sol - atmosphère ?

Le gaz dans les sols est soumis à des conditions de transfert dynamiques. À l'interface sol-atmosphère, des mécanismes physiques sont appliqués, telles que l'advection par gradient de pression et la diffusion par gradient de concentration. La présence d'eau, et sa variation dans les sols, induit des mécanismes tant physiques (pression d'entrée d'air, perméabilité relative au gaz) que chimiques (solubilisation des gaz, réaction de dissolution / précipitation de certains minéraux). La présence de biote (plantes, micro-organismes, etc.) génère des processus biologiques tels que : la respiration, la méthanisation, la photosynthèse, la transpiration.

Il apparaît rapidement que les processus biologiques induisent un couplage fort des différents mécanismes cités précédemment. La photosynthèse est accompagnée d'une transpiration d'eau prélevée au niveau des racines, faisant varier la teneur en eau dans les sols et tous les mécanismes qui en résultent. La respiration (micro-organisme, racines) modifie les pressions partielles en O₂ et en CO₂, modifiant les gradients de concentration et les équilibres de réactions chimiques.

Le second objectif de mon projet de recherche consiste à améliorer la compréhension de tous ces mécanismes contrôlant les flux de gaz à l'interface sol-atmosphère, notamment en essayant de les décorrélérer.

5.2. La création d'un « Géotron » : les développements techniques moteurs de ce projet

Comment décorréler chacun des processus ?

Une approche réductionniste d'expériences en colonne, dans des conditions contrôlées, a été retenue pour décorréler les différents signaux. Ceci a permis d'identifier, quantifier et hiérarchiser les différents processus (section 5.3).

Les développements, incluant l'instrumentation, l'acquisition et le traitement de données, ont permis de mettre en place la première version d'un « Géotron », dispositif essentiel pour comprendre les mécanismes, à l'œuvre dans le sol, qui contrôlent les flux de gaz entre la surface et l'atmosphère. Il est constitué : (i) d'un dispositif innovant et complet pour l'étude du transport de gaz dans les milieux poreux secs ou non-saturés en colonne (appelé « ESCAPE » pour Experimental Setup for Controlled Analysis of gas Percolation) et (ii) d'un ECOLAB, chambre climatique permettant d'effectuer les expériences en condition hautement contrôlées (plateforme appartenant au CEREEP Ecotron IleDeFrance). L'avantage de ce Géotron réside dans sa forte instrumentation et dans son important contrôle des conditions expérimentales, pour des expériences suivies à long terme et à haute résolution. Ceci permet de décorréler les différents processus impliqués dans le contrôle des flux de gaz mesurés à la surface, en s'affranchissant de certaines variations (température par exemple) ou en mesurant avec précision celles qu'il est impossible de contrôler (pression barométrique par exemple). Enfin, l'intégration d'un spectromètre de masse, dans la dernière version de ce dispositif, est une nouvelle amélioration du système, offrant la possibilité de mesurer les flux de nombreux traceurs gazeux à la surface ainsi que la dynamique des profils de concentrations de gaz dans les colonnes. Ce dispositif a été conçu pour ne pas être spécifique à un cas d'étude particulier. La description parfois très technique du dispositif dans ce manuscrit a précisément pour but de permettre l'adaptation du Géotron à toutes thématiques en lien avec la migration des gaz dans la zone non-saturée.

5.3. Contrôles physiques, chimiques et biologiques des sols sur les flux de gaz

Quels processus ont été identifiés, quantifiés et hiérarchisés ?

La première version du dispositif a permis de mettre en évidence l'importance de la prise en compte du couvert végétal, en plus des forçages physiques, pour comprendre les mesures de flux de gaz réalisées à l'interface sol-atmosphère. Il apparaît naturellement dans un premier temps que l'advection, en fonction de l'injection imposée, est le premier mécanisme expliquant les flux mesurés à la surface des colonnes (le flux en surface étant corrélé avec les débits d'injection imposés à concentration de SF₆ injecté constant). Dans un second temps, il apparaît aussi un contrôle principalement physique en fonction des variations du gradient de pression entre la source d'injection de gaz et l'atmosphère. Ces variations sont gouvernées à la fois par la pression d'entrée d'air et la pression atmosphérique. Il a été observé que, suite à une augmentation rapide de la pression atmosphérique, le gradient de pression a diminué, conduisant à une diminution du flux de SF₆ mesuré à la surface des colonnes. Le second effet est indirect et en lien avec le profil de saturation du milieu poreux. La présence d'une frange capillaire saturée impose une pression d'entrée d'air devant être atteinte par la source de gaz afin de percoler à travers la colonne de sol non-saturé. Au cours des différents cycles d'apport ou de perte d'eau de la colonne, il s'avère que le profil de saturation était modifié, impliquant une modification de la pression d'entrée d'air et *in fine* du gradient de pression entre la base et la surface de la colonne. Après un arrosage, l'apport d'eau augmente la hauteur de frange capillaire ce qui augmente la valeur de la pression d'entrée d'air, augmentant le gradient de pression et les flux à la surface. A contrario suite à la perte d'eau, la hauteur de frange capillaire diminue ce qui fait décroître la valeur de la pression d'entrée d'air, diminuant le gradient de pression et les flux à la surface. Ces mécanismes ont généré de variations du signal de l'ordre de 30 % dans le cadre de nos expériences.

A ces variations de premier ordre, vient s'ajouter une modulation du flux de gaz inerte corrélée avec le métabolisme des plantes :

- Lors des périodes d'éclairage, les plantes réalisent la photosynthèse en plus de la respiration racinaire. Cette activité métabolique au niveau de la partie aérienne des plantes est accompagnée d'une perte accrue d'eau du système via l'évapotranspiration. L'eau prélevée au niveau des racines est émise sous forme de vapeur dans l'atmosphère, modifiant

indirectement les caractéristiques du milieu poreux et résultant à une diminution du flux de SF₆ mesuré à la surface de 10 % en moyenne. De par la transpiration, la photosynthèse exerce un contrôle sur des mécanismes physiques de migration de gaz.

- Durant les périodes nocturnes, l'arrêt de la photosynthèse réduit la perte d'eau. Dans ces conditions le flux de SF₆ augmente avec un ordre de grandeur équivalent à la diminution décrite précédemment. L'hypothèse ici avancée réside dans la solubilité préférentielle du CO₂ comparé à l'O₂ dans la zone racinaire. Ce mécanisme, à la fois physique et chimique, favoriserait la diminution de pression dans la zone racinaire, augmentant ainsi le gradient de pression entre la source de gaz et la zone racinaire, avec pour conséquence l'augmentation du flux de SF₆ à la surface malgré le fait qu'il soit inerte.

Ces deux processus couplés à des mécanismes physiques, chimiques et biologiques ont pu être observés à plusieurs reprises, pour des gradients de pression de différents ordres de grandeur. Ces processus, dépendant du couvert végétal présent pendant l'expérience, ont généré des variations de flux de 10 %.

L'étude de la migration du CO₂ et du SF₆ lors d'un cycle de gel et de dégel montre aussi l'importance de l'eau dans la colonne, que ce soit sur sa répartition ou encore son changement d'état. Le cycle de gel et de dégel semble avoir modifié la structure du milieu poreux, amplifiant la migration des gaz par l'accentuation de chenaux/ chemins préférentiels. Ce mécanisme physique se traduit par des changements de pression d'entrée d'air.

Mes observations recoupées avec l'état actuel de la compréhension de la migration des gaz dans les sols montrent l'importance majeure de projets pluridisciplinaires. La variation de la teneur en eau dans les sols semble être le premier axe à explorer dans différentes conditions, intervenant à la fois sur les caractéristiques physiques, chimiques et biologiques des sols étudiés

5.4. Modélisation des expériences en Géotron

Comment rendre compte des modulations de flux dans les codes de simulation numérique ?

Ce dispositif à l'échelle du laboratoire permet d'imposer successivement des conditions expérimentales contrôlées que l'on peut implémenter par la suite dans des codes de transports réactifs. Ces allers-retours entre l'expérimentation et la modélisation sont facilités grâce à ce dispositif, permettant à l'expérimentation d'améliorer les codes de transport mais également aux codes de transport d'aider à dimensionner les futures expériences.

Afin de développer cette assistance de l'expérimentation par la modélisation j'ai bénéficié de deux collaborations, d'abord avec le Centre de Géosciences de MINES ParisTech en utilisant le code de transport réactif HYTEC, puis avec le Lawrence Livermore National Laboratory en utilisant le code NUFT. Parce que ces collaborations se sont avérées d'un apport mitigé pour mon projet, j'ai aussi réalisé un travail de développement de modèles 1D en parallèle sous MATLAB.

Grâce à ces modélisations 1D, j'ai pu réaliser des calculs permettant de vérifier la pertinence des mesures de flux, ajoutant un aspect de supervision au Géotron. De plus, ce modèle 1D a permis de montrer l'importance de la prise en compte de la variation de la teneur en eau au premier ordre dans les modèles, en l'incluant dans les calculs de perméabilité relative aux gaz. Ce modèle a aussi permis d'exclure tout effet possible de la solubilité du SF₆ dans l'eau.

Cependant, ces modélisations 1D ont des limites que seuls les codes de transport réactifs peuvent dépasser. En effet, les codes de transports réactifs sont nécessaires pour modéliser finement les processus en jeux dans mes expériences, le but étant de reproduire les variations de quantité d'eau dans les sols et la dynamique associée à la respiration dans une zone racinaire. J'ai donc initié un travail de modélisation 2D à l'aide du code NUFT. La difficulté majeure rencontrée sur les codes de transport réactif, y compris NUFT, réside dans le fait que reproduire mes conditions expérimentales était particulièrement complexe. En effet le fait d'imposer une source à 100 % constituée de gaz à la base d'une frange capillaire complètement saturée en eau rendait la percolation impossible sans ajustements numériques. Pour cela j'ai choisi l'utilisation d'un modèle à double perméabilité. Grâce à cette méthode, j'ai incorporé dans le milieu poreux des fractures permettant de faciliter la migration du gaz. J'ai ainsi obtenu un profil de saturation dans la matrice du modèle équivalent au profil de saturation mesuré expérimentalement ainsi que la génération d'un flux de gaz à la surface de colonne en accord avec les conditions imposées.

5.5. Perspectives

5.5.1. Aide à la détection et à la surveillance de sites

La mesure de flux de gaz à l'interface sol-atmosphère est nécessaire pour la détection de sources de gaz en profondeur ou encore la surveillance de sites à risques. Bien que les conditions soient spécifiques à chaque zone d'étude, mon projet de thèse permet toutefois de livrer des recommandations afin d'améliorer les mesures effectuées en surface et leur interprétation. Si la zone d'étude peut être couverte par des mesures de flux directement à la surface du sol, il semble impératif que le sol soit caractérisé (perméabilité, paramètres de Van Genuchten, composition minéralogique)

pour chaque mesure de flux tout en mesurant l'évolution de la teneur en eau dans le sol. Il est aussi fortement conseillé de caractériser la présence des biomes sur l'emplacement de la mesure afin de le prendre en compte lors de l'analyse des flux (prise en compte de la transpiration en lien avec la perte d'eau dans le sol, de la concentration de CO₂ en lien avec la respiration). En effet, dans certaines applications telle que la détection d'une fuite associée à un réservoir de séquestration de CO₂ ou encore la détection d'un essai nucléaire souterrain, la quantité de traceur émis à la surface des sols peut être faible, nécessitant la prise en compte de toutes les modulations possibles pouvant nuire à la précision des mesures ou à leur interprétation. Dans le cas de mes expériences, le couvert végétal était peu développé comparé à ce qu'il est possible de trouver dans certaines régions. Cependant, il était suffisant pour générer des modulations du flux. Il apparaît donc essentiel de considérer l'effet du vivant dans la zone d'étude, que ce soient les plantes ou les micro-organismes et ce, même si le traceur recherché n'intervient pas dans les réactions métaboliques en question. Il semble que des mesures à haute résolution durant plusieurs jours puissent être nécessaires pour permettre de prendre en compte tous les processus cités précédemment.

Cependant, pour des enjeux plus globaux recouvrant de vastes régions tel que le permafrost, la problématique du changement d'échelle reste toujours un problème majeur. Les codes utilisés pour établir des bilans à l'échelle de la Terre sur plusieurs dizaines/centaines d'années reposent à la fois sur des mesures principalement satellitaires et un travail numérique lourd. La stratégie actuelle consiste généralement à calibrer un modèle à l'aide de mesures de terrain précises, avant de générer un modèle global. Là aussi, il semble important de pouvoir réaliser les mesures de flux les plus compréhensibles et précises possibles tout en prenant en compte les facteurs clefs de variations sur chaque site au cours de la mesure, telles que les variations de teneur en eau du sol et la présence du vivant sur l'emplacement de la mesure.

Ce projet de thèse ouvre surtout des pistes sur l'amélioration de la compréhension des émissions de gaz à l'interface sol-atmosphère, et cela nécessitera certainement de nouvelles expériences avec le Géotron ainsi qu'une poursuite dans le développement numérique associé au dispositif expérimental tel qu'ESCAPE. Les observations réalisées avec la première expérience mise en œuvre au Géotron démontrent l'importance d'intégrer une vision pluridisciplinaire à l'étude des flux de gaz à l'interface sol-atmosphère, intégrant la physique à la géochimie et à la biologie ainsi que l'importance de l'implémentation de cette pluridisciplinarité dans les codes de transport actuel en étroite relation avec les aspects expérimentaux.

5.5.2. Mise en place de nouvelles expériences ou de nouveaux développements

5.5.2.1. ESCAPe v2 : couplage des mesures de flux en surface avec des mesures de concentration dans les colonnes

La possibilité de pouvoir travailler sur des colonnes de sol non saturés en eau, en présence de végétaux, tout en contrôlant la température ambiante décorrélée de celles du sol, sont des atouts laissant envisager de nombreuses autres applications, tant dans les domaines du transport en milieu poreux, de l'étude de la zone non-saturée ou encore du permafrost. La seconde version du dispositif, toujours au stade de validation dans ce manuscrit, représente une opportunité supplémentaire, tant pour explorer de nouveaux champs de recherche avec de nouveaux traceurs que pour compléter les observations réalisées avec la première version. Cette opportunité réside dans la possibilité de pouvoir effectuer des mesures de concentrations le long des colonnes en plus des mesures de flux en surface, ceci à l'aide d'un spectromètre de masse à bas débit. Cependant il est nécessaire pour cela de pouvoir continuer la maintenance et le développement de ce dispositif expérimental afin de garantir sur la durée les capacités explorées jusqu'à aujourd'hui.

5.5.2.2. Compréhension approfondie de l'effet des plantes

Une première série d'expériences consisterait à explorer à nouveau l'effet des plantes sur les flux de gaz mesurés à la surface. Dans un premier temps, il serait possible de réaliser la même expérience présentée dans ce manuscrit en réutilisant des colonnes de sable de Fontainebleau non-saturé et en ajoutant la dynamique du CO₂, de l'O₂ et de la pression du gaz dans la zone racinaire pour mieux comprendre les mécanismes en jeu. Dans un second temps, il serait intéressant de réaliser la même injection de SF₆ à la base de différentes colonnes de sable non-saturé possédant des biomes différents tout en gardant une colonne témoins. Ce protocole permettrait d'observer l'effet de différents biomes, impliquant différents taux de respiration et d'évapotranspiration, sur les flux mesurés en surface.

5.5.2.3. Observation des mécanismes géochimiques associés au milieu poreux et/ou aux traceurs

Une seconde série d'expériences consisterait à changer de milieu poreux pour observer d'autres mécanismes. Dans ce manuscrit a été exprimé l'intérêt d'étudier le pouvoir d'adsorption de la zéolite

comparé au sable de Fontainebleau. Il pourrait être intéressant d'injecter un traceur, dans les mêmes conditions, à la base de deux colonnes, l'une composée de sable sec et l'autre de zéolite sèche. Dans le cadre de la détection d'essai nucléaire souterrain, le SF₆ est utilisé comme proxy géochimique au radioxénon. Cette approximation, clivante selon les laboratoires, pourrait être étudiée en injectant du SF₆ et du Xe à la même concentration à la base des différentes colonnes. Avec une colonne de sable sec et l'autre de zéolithe sèche, il serait possible de déterminer si les deux traceurs réagissent de la même manière dans un milieu poreux adsorbant ou non. Il est aussi possible d'observer la dissolution de ces deux traceurs en réalisant une autre expérience avec des colonnes de sable et/ou de zéolithe non-saturés.

5.5.2.4. Complexification du milieu poreux et des conditions expérimentales

Une troisième série d'expériences consisterait à complexifier le milieu poreux utilisé dans les expériences en colonne. Il serait intéressant d'utiliser un milieu poreux comportant des minéraux favorisant la précipitation et modifiant ainsi la perméabilité, la porosité et la tortuosité de la colonne de sol utilisée. Il serait aussi intéressant de complexifier étape par étape le milieu poreux utilisé et tendre vers un sol naturel, constitué de différents horizons.

Au cours de ces expériences, certaines réactions peuvent être dépendantes du pH. Bien que ce paramètre n'ait pas encore été discuté dans ce manuscrit, il semble néanmoins important dans certains mécanismes géochimiques et biologiques.

5.5.2.5. Détection d'une fuite de CO₂ marqué

Les marqueurs isotopiques sont d'utilité cruciale pour les bilans de masse lorsque les interactions sont multiples, comme suggéré dans ce manuscrit avec la prise en compte du vivant. Il pourrait être intéressant de réaliser des injections simulant une fuite de CO₂ souterrain à l'aide du Géotron. L'injection de CO₂ isotopique à la base d'une colonne de milieu poreux avec couvert végétal permettrait de décorrélérer la part du vivant et la part de la fuite sur des mesures de flux de CO₂ réalisées à la surface. De plus, il pourrait s'avérer qu'au cours des variations des conditions expérimentales, le rapport entre le CO₂ provenant de la respiration et le CO₂ provenant de la fuite varie au cours du temps. Il serait alors possible d'améliorer la surveillance des sites à risques.

5.5.2.6. Effets des cycles gel-dégel

Les résultats à ce propos, présentés dans ce manuscrit, montre l'importance du changement d'état de l'eau dans les sols non-saturés. Il serait intéressant de réaliser à nouveau cette expérience dans de meilleures conditions. De plus ces variations décorréliées entre la température du sol et la température atmosphérique sont autant de cas différents à explorer avec les points cités précédemment (en fonction du milieu poreux, des traceurs, de la présence de plantes...).

5.5.2.7. Améliorations techniques

Plus spécifiquement, pour la mesure de flux en surface, le design de la chambre d'accumulation et l'analyseur choisi, peuvent être améliorés afin d'augmenter la précision ainsi que la pertinence des processus mesurés. C'est pour cela qu'une nouvelle chambre d'accumulation a été conçue afin de mesurer le flux sur l'intégralité de la surface de la colonne, garantissant ainsi le bilan de masse en traceurs même en présence de chemins préférentiels par exemple. A contrario, il pourrait être intéressant d'utiliser ou développer une chambre d'accumulation à la surface d'échantillonnage plus faible et mobile, pouvant permettre de réaliser des mesures à différents points de la surface des colonnes afin d'observer la non-uniformité de certains processus.

Parce que le dispositif ESCAPE a été développé de sorte à pouvoir utiliser tous types d'instrumentations et d'analyseurs, il serait intéressant de pouvoir réaliser des expériences intégrant le marquage isotopique. Cela peut demander des adaptations à prendre en compte pour le développement de nouvelles expériences.

Enfin l'utilisation du régulateur de pression d'injection en modulant le débit nécessite encore un peu de travail pour être maîtrisé. Cependant, il constitue un atout non-négligeable pour un travail couplé à la modélisation puisqu'il permettrait d'assurer un gradient de pression constant, condition aux limites facile à implémenter dans les codes numériques.

5.5.3. Développement d'un modèle robuste

5.5.3.1. Modélisation des expériences au Géotron

L'utilisation couplée de l'expérimentation et de la modélisation est impérative pour la compréhension des différents processus en jeux lors des campagnes de mesures de flux, que ce soit sur site ou en colonne. Bien que le travail ait pu être initié au cours de ce projet, des développements sont encore

nécessaires afin d'arriver à l'objectif ambitieux de : « réaliser des expériences assistées par la modélisation ». L'écriture d'un script standardisé permettant de représenter les colonnes utilisées durant les expériences dans le Géotron serait un gain de temps et d'efficacité tant dans la compréhension des résultats expérimentaux que dans le design de futures expériences. Pour arriver à cet objectif, il est nécessaire de vérifier la robustesse du code présenté dans ce manuscrit. Une étude de sensibilité des flux aux principaux paramètres est donc nécessaire. Une fois la robustesse du code établie, il est primordial de réussir à contrôler (ou du moins générer) et mesurer des variations de teneur en eau dans le modèle afin d'observer le contrôle qu'elles exercent sur les flux modélisés en surface.

Pour finir, il est important de considérer les autres possibilités de simulation. En effet, l'utilisation de la double perméabilité pour décrire les colonnes de sable constitue un artifice intéressant mais pas nécessairement représentatif. Avec la volonté d'intégrer la modélisation à l'expérience et l'expérience à la modélisation, il est envisageable d'améliorer encore le design du dispositif ESCAPE pour rendre la numérisation de celui-ci plus intégrative.

5.5.3.2. Modélisation inversée du flux de CO₂

En parallèle des développements sur les codes de transport réactif tel que NUFT et HYTEC, il est toujours possible de poursuivre les efforts sur les modèles 1D développés sous Matlab.

À l'aide de mes modèles 1D, il serait intéressant de réaliser un calcul inversé à partir des flux de CO₂ mesurés à la surface de la colonne avec plantes pendant les périodes nocturnes. Durant ces périodes, seule la respiration dans la zone racinaire produit du CO₂. Tout en connaissant les débits imposés, ceci nous permettrait de connaître à la fois l'ordre de grandeur de la concentration de CO₂ présente dans cette zone et d'approximer la quantité pouvant être solubilisée dans l'eau grâce à l'application de l'équation de Henry avec les mesures de teneur en eau.

5.5.3.3. Implémentation de l'effet des plantes dans les codes de transport réactif

Dans la suite des développements à réaliser sous NUFT, il serait intéressant d'incorporer l'effet des plantes dans les modèles. Bien que cette composante biologique ne puisse pas être prise directement en compte par le code, certains artifices peuvent s'avérer suffisant pour observer des effets. Pour les mécanismes physiques en lien avec la présence d'un réseau racinaire, il est facile de décrire un compartiment dans le modèle associé à cette couche, de quelques centimètres de profondeur, à l'interface avec l'atmosphère. La présence d'un réseau racinaire dans le milieu poreux pourrait se

traduire, numériquement au premier ordre, comme un compartiment de ce milieu poreux possédant une hétérogénéité préférentielle selon l'axe z (hauteur/profondeur).

L'implémentation de la respiration peut aussi se faire via un artifice numérique consistant à générer une source de CO_2 et un puit d' O_2 localement dans le compartiment racinaire. Après discussion avec l'école des MINES ParisTech et le Lawrence Livermore National Laboratory, la création d'un minéral fictif (ne perturbant pas le milieu poreux) dans le compartiment racinaire modélisé, suffirait à générer une réaction consommant de l' O_2 et produisant du CO_2 . Parce que ce minéral est fictif, il suffit de lui associer des constantes de réactions semblables à celles estimées de la respiration du biome étudié, ajouté à la solubilité préférentielle du CO_2 dans l'eau comparé à l' O_2 .

Référence :

- Achim, P.,** Generoso, S., Morin, M., Gross, P., Le Petit, G., Moulin, C. (2016). Characterization of Xe-133 Global Atmospheric Background: Implications for the International Monitoring System of the Comprehensive Nuclear Test Ban Treaty.
- Adamczyk, B.,** Sietiö, O.M., Strakova, P., Prommer, J., Wild, B., Hagner, M., Pihlatie, M., Fritze, H., Richter, A., Heinonsalo, J. (2019). Plant Roots Increase both Decomposition and Stable Organic Matter Formation in Boreal Forest Soil. *Nature Communications*. DOI : 10.1038/s41467-019-11993-1.
- Aiuppa, A.,** Fischer, T.P., Plank, T., Bani, P. (2019). CO₂ Flux Emissions from the Earth's Most Actively Degassing Volcanoes, 2005–2015. *Scientific Reports*, 9. DOI : 10.1038/s41598-019-41901-y.
- Alcade, J.,** Flude, S., Wilkinson, M., Johnson, G., Edlmann, K., Bond, C.E., Scott, V., Gilfillon, S.M.V., Ogaya, X., Haszeldine, R.S. (2018). Estimating Geological CO₂ Storage Security to Deliver on Climate Mitigation. *Nature Communications*, 9. DOI : 10.1038/s41467-018-04423-1.
- Allard, P.,** Carbonnelle, J., Dajlevic, D., Le Bronec, J., Morel, P., Robe, M.C., Maurenas, J.M., Faivre-Pierret, R., Martin, D., Sabroux, J.C., Zettwoog, P. (1991). Eruptive and Diffuse Emissions of CO₂ from Mount Etna. *Letters to Nature*, 351, 387-391. DOI : 10.1038/351387a0.
- Alibert, C.,** Pili, E., Barre, P., Massol, F., Chollet, S. (2020). Biologically Influenced Gas Fluxes Revealed by High-Resolution Monitoring of Unsaturated Soil Columns. *Vadose Zone Journal*, 19. DOI : 10.1002/vzj2.20018.
- Altevogt, A.S.,** Rolston, D.E., Venterea, R.T. (2003). Density and Pressure Effects on the Transport of Gas Phase Chemicals in Unsaturated Porous Media: Gas Phase Chemicals in Unsaturated Porous Media. *Water Resources Research*, 39, DOI : 10.1029/2002WR001338.
- Alzaydi, A.A.,** Moore, C.A., Rai, I.S. (1978). Combined Pressure and Diffusional Transition Region Flow of Gases in Porous Media. *AIChE Journal*, 24, 35-43. DOI : 10.1002/aic.690240105.
- Armenise, E.,** Simmons, R.W., Ahn, S., Garbout, A., Doerr, S.H., Mooney, S.J., Sturrock, C.J., Ritz, K. (2018). Soil Seal Development Under Simulated Rainfall: Structural, Physical and Hydrological Dynamics. *Journal of Hydrology*, 556, 211-219. DOI : 10.1016/j.jhydrol.2017.10.073.
- Arneth, A.,** Sitch, S., Bondeau, A., Butterbach-Bahl, K., Foster, P., Gedney, N., de Noblet-Ducoudre, N., Prentice, I.C., Sanderson, M., Thonicke, K., Wania, R., Zaehle, S. (2010). From Biota to Chemistry and Climate: Towards a Comprehensive Description of Trace Gas Exchange Between the Biosphere and Atmosphere. *Biogeosciences*, 7, 121-149. DOI : 10.5194/bg-7-121-2010.
- Barnard, R.L.,** Blazewicz, S.J., Firestone, M.K. (2020). Rewetting of Soil: Revisiting the Origin of Soil CO₂ Emissions. *Soil Biology and Biochemistry*, 147. DOI : 10.1016/j.soilbio.2020.107819.
- Bauer, S.J.,** Gardner, W.P., Lee, H. (2016). Release of Radiogenic Noble Gases as a New Signal of Rock Deformation: Mechanical Gas Release. *Geophysical Research Letters*, 43, 10688-10694. DOI : 10.1002/2016GL070876.
- Blagodatsky, S.,** Smith, P. (2012). Soil Physics Meets Soil Biology: Towards Better Mechanistic Prediction of Greenhouse Gas Emissions from Soil. *Soil Biology and Biochemistry*, 47, 78-92. DOI : 10.1016/j.soilbio.2011.12.015.
- Boudoire, G.,** Di Muro, A., Liuzzo, M., Ferrazzini, V., Peltier, A., Gurrieri, S., Michon, L., Giudice, G., Kowalski, P., Boissier, P. (2017). New Perspectives on Volcano Monitoring in a Tropical Environment: Continuous Measurements of Soil CO₂ Flux at Piton de la Fournaise (La Réunion Island, France): Soil CO₂ Volcanic Monitoring in Tropics. *Geophysical Research Letters*, 44, 8244-8253. DOI : 10.1002/2017GL074237.
- Brooks, R.H. et** Corey, A.T. (1966). Properties of Porous Media Affecting Fluid Flow. *Journal of the Irrigation and Drainage Division*, 2, 61–88.
- Camarda, M.,** Prano, V., Cappuzzo, S., Gurrieri, S., Valenza, M. (2017). Temporal Variations in Air Permeability and Soil CO₂ Flux in Volcanic Ash Soils (Island of Vulcano, Italy). *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 18, 3241-3253. DOI : 10.1002/2017GC006857.
- Caramanna, G.,** Wei, Yang, Maroto-Valer, M.M., Nathanail, P., Steven, M. (2013). Laboratory Experiments and Field Study for the Detection and Monitoring of Potential Seepage from CO₂ Storage Sites. *Applied Geochemistry*, 30, 105-113. DOI : 10.1016/j.apgeochem.2012.09.009.
- Carminati, A.,** Moradi, A.B., Vetterlein, D., Vontobel, P., Lehmann, Weller, U., Vogel, H.J., Oswald, S.E. (2010). Dynamic of Soil Water Content in the Rhizosphere. *Plant Soil*, 332. DOI : 10.1007/s11104-010-0283-8.

- Carrigan, C.R.,** Heinle, R.A., Hudson, G.B., Nitao, J.J., Zucca, J.J. (1996). Trace Gas Emissions on Geological Faults as Indicators of Underground Nuclear Testing. *Nature*, 382, 528-531. DOI : 10.1038/382528a0.
- Carrigan, C.R.** et Sun, Y. (2014). Detection of Noble Gas Radionuclides from an Underground Nuclear Explosion During a CTBT On-Site Inspection. *Pure and Applied Geophysics*, 171, 717-734. DOI : 10.1007/s00024-012-0563-8.
- Carrigan, C.R.,** Sun, Y., Simpson, M.D. (2019). The Characteristic Release of Noble Gases from an Underground Nuclear Explosion. *Journal of Environmental Radioactivity*, 196, 91-97. DOI : 10.1016/j.jenvrad.2018.10.0.
- Carrigan, C.R.,** Sun, Y., Hunter, S.L., Ruddle, D.G., Simpson, M.D., Obi, C.M., Huckins-Gang, H., Prothro, L.B., Townsend, M.J. (2020). Gas Transport Across the Low-Permeability Containment Zone of an Underground Nuclear Explosion. *Scientific Reports*, 10. DOI : 10.1038/s41598-020-58445-1.
- Chamindu Deepagoda, T.K.K.,** Smits, K.M., Oldenburg, C.M. (2016). Effect of Subsurface Soil Moisture Variability and Atmospheric Conditions on Methane Gas Migration in Shallow Subsurface. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 55, 105-117. DOI : 10.1016/j.ijggc.2016.10.016.
- Charlet, L.,** Hureau, C., Chapron, Y. (2008). Clay – Prion Protein Interactions. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 72, A150-A150. DOI : 10.1080/07391102.2013.83646.
- Chen, Z.,** Liu, J., Henze, D.K., Huntzinger, D.N., Wells, K.C., Miller, S.M. (2020). Linking Global Terrestrial CO₂ Fluxes and Environmental Drivers Using OCO-2 and a Geostatistical Inverse Model. *Atmospheric Chemistry and Physics*. DOI : 10.5194/acp-2020-285.
- Chen, Z.X.** (1989). Transient Flow of Slightly Compressible Fluids Through Double-Porosity, Double Permeability Systems - A State-of-the-art Review. *Transport in Porous Media*, 4, 147–184.
- Chenu, C.,** Klumpp, K., Bispo, A., Angers, D., Colnenne, C., Metay, A. (2014). Stocker du Carbone dans les Sols Agricoles : Evaluation de Leviers d'Action pour la France. *Innovations Agronomiques*, 37, 23-37.
- Chiodini, G.,** Cioni, R., Guidi, M., Raco, B. (1998). Soil CO₂ Flux Measurements in Volcanic and Geothermal Areas. *Applied Geochemistry*, 13, 543-552. DOI : 10.1016/S0883-2927(97)00076-0.
- Cohen, G.,** Loisy, C., Laveuf, C., Le Roux, O., Delaplace, P., Magnier, V., Rouchon, V., Garcia, B., Cerepi, A. (2013). The CO₂-Vadose Project: Experimental Study and Modelling of CO₂ Induced Leakage and Tracers Associated in the Carbonate Vadose Zone. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 14, 128-140. DOI : 10.1016/j.ijggc.2013.01.008.
- Costanza-Robinson, M.S.** et Brusseau, M.L. (2002). Gas Phase Advection and Dispersion in Unsaturated Porous Media: Gas Advection and Dispersion. *Water Resources Research*, 38. DOI : 10.1029/2001WR000895.
- Cotel, S.,** Schäfer, G., Traverse, S., Marzougui-Jaafar, S., Gay, G., Razakarisoa, O. (2015). Evaluation of VOC Fluxes at the Soil-Air Interface Using Different Flux Chambers and a Quasi-Analytical Approach. *Water Air Soil Pollut*, 226-356. DOI : 10.1007/s11270-015-2596-y.
- Dane, J. H.,** Hofstee, C., Corey, A. T. (1998). Simultaneous Measurement of Capillary Pressure, Saturation, and Effective Permeability of Immiscible Liquids in Porous Media. *Water Resources Research*, 34, 3687–3692.
- Darcy, H.** (1856). Les Fontaines Publiques de la Ville de Dijon : Exposition et Application des Principes à Employer dans les Questions de Distribuion d'Eau. Victor Dalmont, éditeur, Paris.
- Davies-Barnard, T.,** Meyerholt, J., Zaehle, S., Friedlingstei, P., Brovkin, V., Fan, Y., Fisher, R.A., Jones, C., Lee, H., Peano, D., Smith, B., Warlind, D., Wiltshire, A. (2020). The Nitrogen Cycling in CMIP6 Land Surface Models : Progress and Limitations. *Biogeosciences, Discussions*. DOI : 10.5194/bg-2019-513.
- De Marsily, G.** (1986). Quantitative Hydrogeology. United States ; N. p. Web.
- Di Martino, R.M.R.,** Camarda, M., Gurrieri, S., Valenza, M. (2016). Asynchronous changes of CO₂, H₂, and He Concentrations in Soil Gases: A Theoretical Model and Experimental Results: Changes in Soil Gas Concentrations. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 121, 1565-1583. DOI : 10.1002/2015JB012600.
- Ding, X.** Kennedy, B.M., Evans, W.C., Stonestrom, D.A. (2016). Experimental Studies and Model Analysis of Noble Gas Fractionation in Porous Media. *Vadose Zone Journal*, 15. DOI : 10.2136/vzj2015.06.0095
- Druhan, J.L.,** Steefel, C., Conrad, M., DePaolo, D.J. (2014). A Large Column Analog Experiment of Stable Isotope Variations During Reactive Transport: A Comprehensive Model of Sulfur Cycling and $\delta^{34}\text{S}$ Fractionation. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 124, 366-393. DOI : 10.1016/j.gca.2013.08.037.

- Dusza, Y., Sanchez-Cañete, E.P., Galliard, J.F., Ferrière, R., Chollet, S., Massol, F., Hansart, A., Juarez, S., Dontsova, K. Haren, J., Toch, P., Pavao-Zuckerman, M.A., Hamerlynck, E., Barron-Gafford, G.A. (2019).** Biotic Soil-Plant Interaction Processes Explain Most of Hysteretic Soil CO₂ Efflux Response to Temperature in Cross-Factorial Mesocosm Experiment. *Scientific Reports*, 10. DOI : 10.1038/s41598-019-55390-6.
- El Yazidi, A. (2018).** Estimation of the CO₂ and CH₄ Fluxes in France Using Atmospheric Concentrations from ICOS Network and Data-Assimilation Techniques. *Ph.D. manuscript*.
- Evans, W.C., Sorey, M.L., Kennedy, B.M., Stonestrom, D.A., Rogie, J.D., Shuster, D.L. (2001).** High CO₂ Emissions Through Porous Media: Transport Mechanisms and Implications for Flux Measurement and Fractionation. *Chemical Geology*, 177, 15-29. DOI : 10.1016/S0009-2541(00)00379-X.
- Fee, C., Nawada, S., Dimartino, S. (2014).** 3D Printed Porous Media Columns With Fine Control of Column Packing Morphology. *Journal of Chromatography*, 1333, 18-24. DOI : 10.1016/j.chroma.2014.01.043.
- Feldman, J., M. Paul, G. Xu, D. X. Rademacher, J. Wilson, and T. M. Nenoff (2020),** Effects of Natural Zeolites on Field-Scale Geologic Noble Gas Transport. *Journal of Environmental Radioactivity*, 220-221, 106279. DOI : 10.1016/j.jenvrad.2020.106279.
- Fetzer, T., Vanderborght, J., Mosthaf, K. Smits, K.M., Helmig, R. (2017).** Heat and Water Transport in Soils and Across the Soil-Atmosphere Interface: 2. Numerical analysis: Evaporation: Numerical Simulations. *Water Resources Research*, 53, 1080-1100.
- Fischer, T.P., Arellano, S., Carn, S., Aiuppa, A., Galle, B., Allard, P., Lopez, T., Shinohara, H., Kelly, P., Werner, C., Cardellini, C., Chiodini, G. (2019).** The Emission of CO₂ and Other Volatiles from the World's Subaerial Volcanoes. *Scientific Reports*, 9. DOI : 10.1038/s41598-019-54682-1.
- Fischer, U., Schulin, R., Keller, M. (1996).** Experimental and Numerical Investigation of Soil Vapor Extraction. *Water Resources Research*, 32, 3413-3427. DOI : 10.1029/95WR02668.
- Freundt, F., Schneider, T., Aeschbach-Hertig, W. (2013).** Response of Noble Gas Partial Pressures in Soil Air to Oxygen Depletion. *Chemical Geology*. DOI : 10.1016/j.chemgeo.2012.07.026.
- Friedlingstein, P., Jones, M. W., O'Sullivan, M., Andrew, R. M., Hauck, J., Peters, G. P., Peters et al. (2019).** Global Carbon Budget 2019. *Earth System Science Data*, 11, 1783–1838. DOI : 10.5194/essd-11-1783-2019.
- Fry, V.A., Selker, J.S., Gorelick, S.M. (1997).** Experimental Investigations for Trapping Oxygen Gas in Saturated Porous Media for in situ Bioremediation. *Water Resources Research*, 33, 2687-2696. DOI : 10.1029/97WR02428.
- Ganzeveld, L.N. (2002).** Atmosphere-Biosphere Trace Gas Exchanges Simulated with a Single-Column Model. *Journal of Geophysical Research*, 107. DOI : 10.1029/2001JD000684.
- Ghirardo, A., Lindstein, F., Koch, K., Buegger, F., Schloter, M., Winkler, J.B., Schnitzler, J.-P., Rinnan, R. (2020).** Origin of Volatile Organic Compound Emissions from Subarctic Tundra Under Global Warming. *Global Change Biology*. DOI : 10.1111/gcb.14935.
- Giammanco, S., Inguaggiato, S., Valenza, M. (1998).** Soil and Fumarole Gases of Mount Etna: Geochemistry and Relations with Volcanic Activity. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 81, 297-310.
- Gimmi, T. et Flüher, H. (1996).** Flux and Resident Injection in Gaseous Advection Experiments. *Water Resources Research*, 32, 1-7. DOI : 10.1029/95WR02719.
- Goldberg, S.D., Muhr, J., Borken, W., Gebauer, G. (2008).** Fluxes of Climate-Relevant Trace Gases Between a Norway Spruce Forest Soil and Atmosphere During Repeated Freeze-Thaw Cycles in Mesocosms. *Journal of Plant Nutrition and Soil Science*, 171, 729-739. DOI : 10.1002/jpln.200700317.
- Guillon, S. (2013).** Détection et Migration des Gaz dans les Milieux Géologiques : Expériences et Simulations au Laboratoire Naturel de Roselend. *Ph.D. manuscript*.
- Guillon, S., Vu, M.T., Pili, E., Adler, P.M. (2013).** Field and Numerical Determinations of Pneumatic Flow Parameters of Unsaturated Fractured Porous Rocks on Various Scales: Flow Parameters of Unsaturated Fractured Rocks. *Water Resources Research*, 49, 2801-2811. DOI : 10.1002/wrcr.20263.
- Guillon, S., C. Gréau, and E. Pili (2016),** Continuous Monitoring of the Vadose Zone Gas Phase by Mass Spectrometry. *Vadose Zone Journal*, 15(8), 6. DOI : 10.2136/vzj2015.12.0168.
- Guo, L., Nishimura, T., Imoto, H., Sun, Z. (2015).** Applicability of Soil Column Incubation Experiments to Measure CO₂ Efflux. *International Agrophysics*, 29, 413-421. DOI : 10.1515/intag-2015-0047.
- Han, L., Wang, Q.F., Chen, Z., Yu, G.R., Zhou, G.S., Chen, S.P., Li, Y.N., Zhang, Y.P., Yan, J.H., Wang, H.M., Han, S.J., Wang, Y.F., Sha, L.Q., Zhang, Y.I., Xiang, W.H., Zhao, L., Zhang; Q.L., He, Q.H., Mo,**

- X.G., Guo, J.X. (2020). Spatial Patterns and Climate Controls of Seasonal Variations in Carbon Fluxes in China's Terrestrial Ecosystems. *Global and Planetary Change*, 189. DOI : 10.1016/j.gloplacha.2020.103175.
- Hannaway**, D., Fransen, S., Cropper, J., Teel, M., Chaney, M., Griggs, T., Halse, R., Hart, J., Cheeke, P., Hansen, D., Klinger, R., Lane, W. (1999). Tall Fescue (*Festuca arundinacea* Schreb.). Oregon State University.
- Harrison**, A.L., Dipple, G.M., Power, I.M., Mayer, K.U. (2016). The Impact of Evolving Mineral–Water–Gas Interfacial Areas on Mineral–Fluid Reaction Rates in Unsaturated Porous Media. *Chemical Geology*, 421, 65-80. DOI : 10.1016/j.chemgeo.2015.12.005.
- Heppe**, R.P. et Benson, S.M. (2005). Geologic Storage of Carbon Dioxide as a Climate Change Mitigation Strategy: Performance Requirements and the Implications of Surface Seepage. *Environmental Geology*, 47, 576-585.
- Hibi**, Y., Kanou, Y., Ohira, Y. (2012). Estimation of Mechanical Dispersion and Dispersivity in a Soil–Gas System by Column Experiments and the Dusty Gas Model. *Journal of Contaminant Hydrology*, 131, 39-53. DOI : 10.1016/j.jconhyd.2012.01.003.
- Hibi**, Y., Kashihara, A. (2018). Estimation of Knudsen Diffusion Coefficients from Tracer Experiments Conducted with a Binary Gas System and a Porous Medium. *Journal of Contaminant Hydrology*, 210, 65-80. DOI : 10.1016/j.jconhyd.2018.02.007.
- Hou**, L., Chen, L., Kibbey, T.C.G. (2015). Dynamic Capillary Effects in a Small-Volume Unsaturated Porous Medium: Implications of Sensor Response and Gas Pressure Gradients for Understanding System Dependencies: Dynamic Capillary Effects. *Water Resources Research*, 48. DOI : 10.1029/2012WR012434.
- Hou**, L., Sleep, B.E., Kibbey, T.C.G. (2015). Gas Pressure Gradients in Unsaturated Porous Media and the Assumption of Infinite Gas Mobility. *Water Resources Research*, 51, 5623-5639. DOI : 10.1002/2015WR017189.
- Hu**, J., VanZomeran, C.M., Inglett, K.S., Wright, A.L., Clark, M.W., Reddy, K.R. (2017). Greenhouse Gas Emissions Under Different Drainage and Flooding Regimes of Cultivated Peatlands: Greenhouse Gas Emissions From Peatlands. *Journal of Geophysical Research*, 112, 3047-3062. DOI : 10.1002/2017JG004010.
- Hutchinson**, G.L. and Mosier, A.R. (1981). Improved Soil Cover Method for Field Measurement of Nitrous Oxide Fluxes. *Soil Science Society of America Journals*, 45, 311-316. DOI : 10.2136/sssaj1981.03615995004500020017x.
- IPCC**. (2005). Intergovernmental Panel on Climate Change. Special Report on CO₂ Capture and Storage, Edited. pp. 208–210.
- Islam**, A., Chevalier, S., Salem, I.B., Sassi, M. (2018). Numerical Simulation of Gas Injection in Vertical Water Saturated Porous Media. *Environmental Modeling & Assessment*, 23, 459-469. DOI : 10.1007/s10666-017-9587-x.
- Joun**, W.T. et Lee, K.K. (2020). Reproducing Natural Variations in CO₂ Concentration in Vadose Zone Wells with Observed Atmospheric Pressure and Groundwater Data. *Journal of Environmental Management*, 266. DOI : 10.1016/j.jenvman.2020.110568.
- Kalinowski**, M.B., Axelsson, A., Bean, M., Blanchard, X., Bowyer, T.W., Brachet, G., Hebel, S., McIntyre, J.I., Peters, J., Pistner, C., Raith, M., Ringbom, A., Saey, P.R.J., Schlosser, C., Stocki, T.J., Taffary, T., Kurt Ungar, R. (2010). Discrimination of Nuclear Explosions against Civilian Sources Based on Atmospheric Xenon Isotopic Activity Ratios. *Pure and Applied Geophysics*, 167, 517-539. DOI : 10.1007/s00024-009-0032-1.
- Khan**, A.M., Wick, L.Y., Harms, H., Thullner, M. (2016). Biodegradation of Vapor-Phase Toluene in Unsaturated Porous Media: Column Experiments. *Environmental Pollution*, 221, 325-331. DOI : 10.1016/j.envpol.2016.01.013.
- Kilgallon**, R., Gilfillan, S.M.V., Edlmann, K., McDermott, C.I., Naylor, M., Haszeldine, R.S. (2018). Experimental Determination of Noble Gases and SF₆, as Tracers of CO₂ Flow Through Porous Sandstone. *Chemical Geology*, 480, 93-104. DOI : 10.1016/j.chemgeo.2017.09.022.
- Kong**, X-Z., Kinzelbach, W., Stauffer, F. (2010). Morphodynamics During Air Injection into Water-Saturated Movable Spherical Granulates. *Chemical Engineering Science*, 65, 4652–4660. DOI : 10.1016/j.ces.2010.05.007.
- Jordan**, A.B., Stauffer, P.H., Knight, E.E., Rougier, E., Anderson, D.N. (2015). Radionuclide Gas Transport

- through Nuclear Explosion-Generated Fracture Networks. *Scientific Reports*, 5. DOI : 10.1038/srep18383.
- Ju, Y., M.B. Gilfillan, S., Lee, S.S., Kaown, D., Hahm, D., Lee, S., Park, I.W., Ha, S.W., Park, K., Do, H.K., Yun, S.T., Lee, K.K.** (2020) Application of Noble Gas Tracers to Identify the Retention Mechanisms of CO₂ Migrated from a Deep Reservoir into Shallow Groundwater. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 97. DOI : 10.1016/j.ijggc.2020.103041.
- Lagneau, V.** (2013). Modélisation des Couplages entre Réactions Géochimiques et Processus Hydrodynamiques en Milieu Poreux - Applications au Stockage de CO₂ et à l'Exploitation d'Uranium. *Géochimie. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI*. fftel-00879817f
- Levin, L., Naegler, T., Heinz, R., Osusko, D., Cuevas, E., Engel, A., Ilmberger, J., Langenfelds, R.L., Neininger, B., Rohden, C.V., Steel, L.P., Weller, R., Worthy, D.E., Zimov, S.A.** (2010) The Global SF₆ Source Inferred From Long-Term High Precision Atmospheric Measurements and its Comparison with Emission Inventories. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 2655-2661. DOI : 10.5194/acp-10-2655-2010.
- Levintal, E., Dragila, M.I., Kamai, T., Weisbrod, N.** (2017). Free and Forced Gas Convection in Highly Permeable, Dry Porous Media. *Agricultural and Forest Meteorology*, 232, 469-478. DOI : 10.1016/j.agrformet.2016.10.001.
- Levy, P.E., Gray, A., Leeson, S.R., Gaiawyn, J., Kelly, M.P.C., Cooper, M.D.A., Dinsmore, K.J., Jones, S.K., Sheppard, L.J.** (2011). Quantification of Uncertainty in Trace Gas Fluxes Measured by the Chamber Method. *European Journal of Soil Science*, 62, 811-821. DOI : 10.1111/j.1365-2389.2011.01403.x.
- Lewis, J., Sjöstrom, J.** (2010). Optimizing the Experimental Design of Soil Columns in Saturated and Unsaturated Transport Experiments. *Journal of Contaminant Hydrology*, 115, 1-13. DOI : 10.1016/j.jconhyd.2010.04.001.
- Lin, X., Zhu, X., Han, Y., Geng, Z., Liu, L.** (2020). Economy and Carbon Dioxide Emissions Effects of Energy Structures in the World: Evidence Based on SBM-DEA Model. *Science of the Total Environment*, 729. DOI : 10.1016/j.scitotenv.2020.138947.
- Machado, C.B., Lima, J.R.S., Antonino, A.C.D., Souza, E.D., Souza, R.M.S., Alves, M.** (2016). Daily and Seasonal Patterns of CO₂ Fluxes and Evapotranspiration in Maize-Grass Intercropping. *Revista Brasileira de Engenharia Agrícola e Ambiental*, 20. DOI : 10.1590/1807-1929/agriambi.v20n9p777-782.
- Masyagina, O.V. et Menyailo O.V.** (2020). The Impact of Permafrost on Carbon Dioxide and Methane Fluxes in Siberia: Meta-Analysis. *Environmental Research*, 182. DOI : 10.1016/j.envres.2019.109096.
- Marland, G., Boden, T.A., Andres, R.J.** (2003). Global, Regional, and National Fossil Fuel CO₂ Emissions. In Trends: A Compendium of Data on Global Change. Carbon Dioxide Information Analysis Center, Oak Ridge National Laboratory, U.S. Department of Energy, Oak Ridge, Tenn., United States.
- Massmann, J., Farrier, D. F.** (1992). Effects of Atmospheric Pressures on Gas-Transport in the Vadose Zone. *Water Resources Research*, 28, 777-791.
- Mayer, U.K., Xie, M., Su, D., MacQuarrie, K.** (2017). MIN3P-THCm, A Three-dimensional Numerical Model for Multicomponent Reactive Transport in Variably Saturated Porous Media. *User Manual*. University of British Columbia Department of Earth, Ocean and Atmospheric Sciences Vancouver, BC, Canada V5T 2M1.
- Metz, B., Davidson, O., Coninck, H., Loos, M., Meyer, L.** (2005). Rapport Spécial du GIEC: Piégeage et Stockage du Dioxyde de Carbone : Résumé à l'Intention des Décideurs. *Rapport du Groupe de travail III du GIEC*.
- Moghbel, F. et Fall, M.** (2016). Response of Compost Biocover to Freeze-Thaw Cycles: Column Experiments. *Cold Regions Science and Technology*, 131, 39-45. DOI : 10.1016/j.coldregions.2016.09.005.
- Moon, T.A., Overeem, I., Druckenmiller, M., Hollend, M., Huntington, H., Kling, G., Lovecraft, A.L., Miller, G., Scambos, T., Schädel, C., Schuur, E.A.G., Trochim, E., Wiese, F., Williams, D., Wong, G.** (2019). The Expanding Footprint of Rapid Arctic Change. *Earths Future*, 7, 212-218. DOI : 10.1029/2018EF001088.
- Mourzenko, V.V., Varloteaux, C., Guillon, S., Thovert, J.F., Pili, E., Adler, P.M.** (2014). Barometric Pumping of a Fractured Porous Medium. *Geophysical Research Letters*, 41, 6698-607. DOI : 10.1002/2014GL060865.
- Mualem, Y.** (1976). Hysteretical Models for Prediction of the Hydraulic Conductivity of Unsaturated Porous Media. *Water Resources Research*, 12, 1248-1254. DOI : 10.1029/WR012i006p01248.
- Neave, M. et Rayburg, S.** (2007). A Field Investigation into the Effects of Progressive Rainfall-Induced Soil Seal and Crust Development on Runoff and Erosion Rates: *The impact of surface cover*. *Geomorphology*,

- 87, 378-390. DOI : 10.1016/j.geomorph.2006.10.007.
- Niinemets, Ü., Kuhn, U., Harley, P.C., Staudt, M., Arneth, A., Cescatti, A., Cicciooli, P., Copolovici, L., Geron, C., Guenther, A., Kesselmeier, J., Lerda, M.T., Monson, R.K., Peñuelas, J. (2011).** Estimations of Isoprenoid Emission Capacity from Enclosure Studies: Measurements, Data Processing, Quality and Standardized Measurement Protocols. *Biogeosciences*, 8, 2209-2246. DOI : 10.5194/bg-8-2209-2011.
- Nitao, J.J., Sun, Y. (2015).** USNT Reference Manual of the NUFT Code for Yucca Mountain Project. U. S. Department of Energy by the University of California Lawrence Livermore National Laboratory.
- O'Brien, K.E., Risk, D., Rainham, D., O'Beirne-Ryan, A.M. (2014).** Using Field Analogue Soil Column Experiments to Quantify Radon-222 Gas Migration and Transport through Soils and Bedrock of Halifax, Nova Scotia, Canada. *Environmental Earth Sciences*, 72, 2607-2620. DOI : 10.1007/s12665-014-3168-y.
- Ogata, A. et Banks, R. B. (1961).** A Solution of the Differential Equation of Longitudinal Dispersion in Porous Media. *US Geological Survey, Professional Paper, No. 411-A, 1961.*
- Oldenburg, C.M. et Unger, A.J.A. (2003).** On Leakage and Seepage from Geologic Carbon Sequestration Sites: Unsaturated Zone Attenuation. *Vadose Zone Journal*, 2. DOI : 10.2136/vzj2003.2870.
- Oldenburg, C.M. et Unger, A.J.A. (2004).** Coupled Vadose Zone and Atmospheric Surface-Layer Transport of Carbon Dioxide from Geologic Carbon Sequestration Sites. *Vadose Zone Journal*, 3, 848-857. DOI : 10.2136/vzj2004.0848.
- Oliveira, I.B., Demond, A.H., Salehzadeh, A. (1996).** Packing of Sands for the Production of Homogeneous Porous Media. *Soil Science Society of America Journal*, 60, 49-53. DOI : 10.2136/sssaj1996.03615995006000010010x.
- Pacyna, J.M., Graedel, T.E. (1995).** Atmospheric Emissions Inventories: Status and Prospects. *Annual Reviews of Environment and Resources*, 20, 265-300. DOI : 10.1146/annurev.eg.20.110195.001405.
- Parazoo, N.C., Commane, R., Wosfy, S.C., Koven, C.D., Sweeney, C., Lawrence, D.M., Lindaas, J., Chang, R.Y.W., Miler, C.E. (2016).** Detecting Regional Patterns of Changing CO₂ Flux in Alaska. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 113. DOI : 10.1073/pnas.1601085113
- Paul, M.J., Biegalski, S.R., Haas, D.A., Lowrey, J.D. (2014).** Diffusive Transport of SF₆ vs. Xe in a Porous Media Column. *Poster.*
- Pavelka, M., Acosta, M., Altimir, N., Brümmer, C., Crill, P., Darenova, E., Fuß, R., Gielen, B., Graf, A., Klemedtsson, L., Lohila, A., Longdoz, B., Lindroth, A., Nilsson, M., Jiménez, S.M., Merbold, L., Montagnani, L., Peichl, M., Pihlatie, M., Pumpanen, J., Ortiz, P.S., Silvennoinen, H., Skiba, U., Vestin, P., Weslien, P., Janous, D., Kutsch, W. (2018).** Standardization of Chamber Technique for CO₂, N₂O and CH₄ Fluxes Measurements from Terrestrial Ecosystems. *International Agrophysics*, 32, 569-587. DOI : 10.1515/intag-2017-0045.
- Peng, B., Sun, J., Liu, J., Dai, W., Sun, L., Pei, G., Gao, D., Wang, C., Jiang, P., Bai, E. (2019).** N₂O Emission from a Temperate Forest Soil during the Freeze-Thaw Period: A Mesocosm Study. *Science of The Total Environment*, 648, 350-357. DOI : 10.1016/j.scitotenv.2018.08.155.
- Peylin, P., Rayner, P.J., Bousquet, P., Carouge, C., Hourdin, F., Heinrich, P., Ciais, P. (2005).** Daily CO₂ Flux Estimates Over Europe from Continuous Atmospheric Measurements: 1, Inverse Methodology. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5, 3173-3186. DOI : 1680-7324/acp/2005-5-3173.
- Plampin, M., Illangasekare, T., Sakaki, T., Pawar, R. (2014).** Experimental Study of Gas Evolution in Heterogeneous Shallow Subsurface Formations during Leakage of Stored CO₂. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 22, 47-62. DOI : 10.1016/j.ijggc.2013.12.020.
- Porter, M.L., Plampin, M., Pawar, R., Illangasekare, T. (2015).** CO₂ Leakage in Shallow Aquifers: A Benchmark Modeling Study of CO₂ Gas Evolution in Heterogeneous Porous Media. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 39, 51-61. DOI : 10.1016/j.ijggc.2015.04.017.
- Pütz, T., Fank, J., Flury, M. (2018).** Lysimeters in Vadose Zone Research. *Vadose Zone Journal*, 17. DOI : 10.2136/vzj2018.02.0035
- Rhino, K., Loisy, C., Cerepi, A., Garcia, B., Rouchon, V., Khamlichi, A.E., Noirez, S. (2018).** Characterization and Quantification of a CO₂ and CH₄ Leakage Experiment from a Well into the Carbonate Vadose Zone. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 77, 55-69. DOI : 10.1016/j.ijggc.2018.07.025.
- Ringbom, A., Axelsson, A., Aldener, M., Auer, M., Bowyer, T.W., Fritioff, T., Hoffman, I., Khrustalev, K., Nikkinen, M., Popov, V., Popov, Y., Ungar, K., Wotawa, G. (2014).** Radioxenon Detections in the CTBT International Monitoring System Likely Related to the Announced Nuclear Test in North Korea on February 12, 2013. *Journal of Environmental Radioactivity*, 128, 47-63. DOI :

- 10.1016/j.jenvrad.2013.10.027. Bulletin of the Seismological Society of America, 110, 742-753. DOI : 10.1785/0120190258.
- Risk, D.**, Lavoie, M., Nickerson, N. (2015). Using the Kerr Investigations at Weyburn to Screen Geochemical Tracers for Near-Surface Detection and Attribution of Leakage at CCS/EOR Sites. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 35, 13–17. DOI : 10.1016/j.ijggc.2015.01.019.
- Ritchie, H.** et Roser, M. (2020). Land use. Published online at OurWorldInData.org. Retrieved from 'https://ourworldindata.org/land-use' [Online Resource].
- Romanak, K.D.**, Wolaver, B., Yang, C., Sherk, G.W., Dale, J., Dobeck, L.M., Spangler, L.H. (2014). Process-Based Soil Gas Leakage Assessment at the Kerr Farm: Comparison of Results to Leakage Proxies at ZERT and Mt. Etna. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 30, 42-57. DOI : 10.1016/j.ijggc.2014.08.008.
- Rotmans, J.**, den Elzen M. (1999) Global Biogeochemical Cycles. In: Martens P., Rotmans J., Jansen D., Vrieze K. (eds) Climate Change: An Integrated Perspective. *Advances in Global Change Research*, vol 1. Springer, Dordrecht
- Sakaki, T.**, Plampin, M.R., Pawar, R., Komatsu, M., Illangasekare, T.H. (2013). What Controls Carbon Dioxide Gas Phase Evolution in the Subsurface? Experimental Observations in a 4.5m-long Column under Different Heterogeneity Conditions. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 17, 66-77. DOI : 10.1016/j.ijggc.2013.03.025.
- Sander, R.** (2015). Compilation of Henry's Law Constants (Version 4.0) for Water as Solvent. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15, 4399-4981. DOI : 10.5194/acp-15-4399-2015
- Sathaye, K.J.**, Larson, T.E., Hesse, M.A. (2016). Noble Gas Fractionation During Subsurface Gas Migration. *Earth and Planetary Science Letters*, 450, 1-9. DOI : 10.1016/j.epsl.2016.05.034
- Schuur, E.A.G.**, McGuire, A.D., Schädel, C., Grosse, G., Harden, J.W., Hayes, D.J., Hugelius, G., Koven, C.D., Kuhry, P., Lawrence, D.M., Natali, S.M., Olefeldt, D., Romanovsky, V.E., Schaefer, K., Turetsky, M.R., Treat, C.C., Vonk, J.E. (2015). Climate Change and the Permafrost Carbon Feedback. *Nature*, 7546, 171-179. DOI : 10.1038/nature14338.
- Šimůnek, J.**, Van Genuchten M.T., Wendroth O. (1998). Parameter Estimation Analysis of the Evaporation Method for Determining Soil Hydraulic Properties. *Soil Science Society of America Journal*. DOI : 10.2136/sssaj1998.03615995006200040007x.
- Sirois, P.** (2014). Estimation de la Conductivité Hydraulique des Sables Granitiques Saturés. *Ph.D. manuscript*.
- Spangler, L.H.**, Dobeck, L.M., Repasky, K., Nehrir, A., Humphries, S., Barr, J., Keith, C., Shaw, J., Rouse, J., Cunnungham, A., Benson, S., Oldenburg, C.M., Lewicki, J.L., Wells, A., Diehl, R., Strazisar, B., Fessenden, J., Rahn, T., Amonette, J., Barr, J., Pickles, W., Jacobson, J., Silver, E., Male, E., Rauch, H., Gullickson, K., Trautz, R., Kharaka, Y., Birkholzer, J., Wielopolski, L. (2009) A Controlled Field Pilot for Testing Near Surface CO₂ Detection Techniques and Transport Models. *Energy Procedia*, 1. DOI : 10.1016/j.egypro.2009.01.279.
- Spangler, L.H.**, Dobeck, L.M., Repasky, K., Nehrir, A., Humphries, S., Barr, J., Keith, C., Shaw, J., Rouse, J., Cunnungham, A., Benson, S., Oldenburg, C.M., Lewicki, J.L., Wells, A., Diehl, R., Strazisar, B., Fessenden, J., Rahn, T., Amonette, J., Barr, J., Pickles, W., Jacobson, J., Silver, E., Male, E., Rauch, H., Gullickson, K., Trautz, R., Kharaka, Y., Birkholzer, J., Wielopolski, L. (2010). A Shallow Subsurface Controlled Release Facility in Bozeman, Montana, USA, for Testing Near Surface CO₂ Detection Techniques and Transport Models. *Environmental Earth*, 60, 227-239.
- Staudt, M.**, Mir, C., Joffre, R., Rambal, S., Bonin, A., Landais, D., Lumaret, R. (2004). Isoprenoid Emissions of Quercus spp. (Q. suber and Q. ilex) in Mixed Stands Contrasting in Interspecific Genetic Introgression. *New Phytologist*, 163, 573-584. DOI : 10.1111/j.1469-8137.2004.01140.x.
- Stroujkova, A.**, Leidig, M., Ferris, A., Salerno, J., Lewkowicz, J. (2020). Acoustic Overpressure Signals from Fully Confined and Vented Chemical Explosions.
- Sun, Y.** et Carrigan, C.R. (2016). Thermally Driven Advection for Radioxenon Transport from an Underground Nuclear Explosion. *Geophysical Research Letters*, 43, 4418-4425. DOI : 10.1002/2016GL068290
- Teepe, R.**, Brumme, R., Beese, F. (2001). Nitrous Oxide Emissions from Soil during Freezing and Thawing Periods. *Soil Biology and Biochemistry*, 33, 1269-1275/ DOI : 10.1016/S0038-0717(01)00084-0.
- Tootchi, A.**, Jost, A., Ducharme, A. (2019). Multi-Source Global Wetland Maps Combining Surface Water Imagery and Groundwater Constraints. *Earth System Science Data*, 11, 189-220. DOI : 189–220.

- Turetsky, M.R.,** Abbot, B.W., Jones, M.C., Anthony, K.W., Olefeldt, D., Schuur, E.A.G., Grosse, G., Kuhry, P., Hugelius, G., Koven, C., Lawrence, D.M., Gibson, C., Sannel, A.B.K. McGuire, A.D. (2020). Carbon Release Through Abrupt Permafrost Thaw. *Nature Geosciences*, 13, 138-143. DOI : 10.1038/s41561-019-0526-0.
- Van Der Lee, J.,** De Windt, L., Lagneau, V., Goblet, P. (2002). Module-Oriented Modeling of Reactive Transport with HYTEC. *Computers & Geosciences*, 29, 265-275. DOI : 10.1016/S0098-3004(03)00004-9.
- Van Genuchten, M.Th.** (1980). A Closed-Form Equation for Predicting the Hydraulic Conductivity of Unsaturated Soils. *Soil Science Society America Journal*, 44, 892-898.
- Verdier, B.,** Jouanneau, I., Simmonet, B., Rabin, C., Van Dooren, T.J.M., Delpierre, N., Clobert, J., Abbadie, L., Ferrière, R., Le Galliard, J.-F. (2014). Climate and Atmosphere Simulator for Experiments on Ecological Systems in Changing Environments. *Environmental Science & Technology*, 48, 8744-8753. DOI : 10.1021/es405467s
- Vereecken, H.,** Schnepf, A., Hopsman, J.W., Jarvau, M., Or, D., Roose, T., Vanderborght, J., Young, M.H., Amelung, W., Aitkenhead, M., Allison, S.D., Assouline, S., Baveye, P., Berli, M., Brüggelann, N., Finke, P., Flury, M., Gaiser, T., Govers, G., Ghezzehei, T., Hallett, P., Hendricks Franssen, H.J., Heppell, J., Horn, R., Huisman, J.A., Jacques, D., Jonard, F., Kollet, S., Lafolie, F., Lamorski, K., Leitner, D., McBratney, A., Minasny, B., Montzka, C., Nowak, W., Pachepsky, Y., Padarian, J., Romano, N., Roth, K., Rothfuss, Y., Rowe, E.C., Schwen, A., Šimůnek, J., Tiktak, A., Van Dam, J., Van Der Zee, S.E.A.T.M., Vogel, H.J., Vrugt, J.A., Wöhling, T., Young, I.M. (2016). Modeling Soil Processes: Review, Key Challenges, and New Perspectives. *Vadose Zone Journal*, 15. DOI : 10.2136/vzj2015.09.0131.
- Verginelli, I.,** Pecoraro, R., Baciocchi, R. (2018). Using Dynamic Flux Chambers to Estimate the Natural Attenuation Rates in the Subsurface at Petroleum Contaminated Sites. *Science of the Total Environment*, 619-620, 470-479. DOI : 10.1016/j.scitotenv.2017.11.100.
- Wind, G.P.** (1968). Capillary conductivity data estimated by a simple method. *Water in the Unsaturated Zone*, 1.
- Xu, M. et Shang, H.** (2016). Contribution of Soil Respiration to the Global Carbon Equation. *Journal of Plant Physiology*, 203, 16-28. DOI : 10.1016/j.jplph.2016.08.007.
- Xu, T.,** Sonnenthal, E., Spycher, N., Zheng, L. (2014). TOUGHREACT V3.0-OMP Reference Manual: A Parallel Simulation Program for Non-Isothermal Multiphase Geochemical Reactive Transport. Earth Sciences Division, Lawrence Berkeley National Laboratory University of California, Berkeley, CA 94720.
- Yanful, E.K. et Choo, L.P.** (1997). Measurement of evaporative fluxes from candidate cover soils. *Canadian Geotechnical Journal*, 34, 447-459.
- Yang, X. et You, X.** (2013). Estimating Parameters of Van Genuchten Model for Soil Water Retention Curve by Intelligent Algorithms. *Applied Mathematics & Information Sciences*, 5. DOI : 10.12785/amis/070537.
- Yang, X.,** Fan, J., Jones, S.B. (2018). Effect of Soil Texture on Estimates of Soil-Column Carbon Dioxide Flux Comparing Chamber and Gradient Methods. *Vadose Zone Journal*, 17. DOI : 10.2136/vzj2018.05.0112.
- Zhang, S.,** Zhang, F., Shi, Z., Qin, A., Wang, H., Sun, Z., Yang, Z., Zhu, Y., Pang, S., Wang, P. (2020). Sources of Seasonal Wetland Methane Emissions in Permafrost Regions of the Qinghai-Tibet Plateau. *Scientific Reports*. DOI : 10.1038/s41598-020-63054-z

ANNEXE 1

Ci-dessous est retranscrit le script utilisé avec le code NUFT pour modéliser l'injection de SF₆ à la base d'une colonne de sol non-saturé en eau. La méthode de double-perméabilité a été appliquée pour permettre la migration du gaz à travers une frange capillaire saturée en eau.

```
(usnt
  (title "USNT LYMN SHALLOW and LOW YIELD")
  (modelname usnt)
  (pbase-largest-Keq off)
  (input-mass-fraction off)
;;
;;
;; TIMING FOR SIMULATION
  (tstop 22d)(stepmax 100000)(time 0d)(dtmax 1e12)(dt 1e-6)
;;
;;
;; ABSOLUTE AND RELATIVE TIMESTEP CONTROL
  (tolerdt (P 1000.0)(S 0.2)(C 0.001))
  (reltolerdt (P 0.1)(S 0.0)(C 0.001))
;;
;;
;; NEWTON-RAPHSON CONVERGENCE PARAMETERS
  (tolerconv (P 1000.0)(S 0.005)(C 0.001))
  (reltolerconv (P 0.2)(S 0.000)(C 0.001))
;;
;;
;; INITIAL STATE EQUATIONS
  (init-eqts
    (phases liquid gas)
    (components water air sf)
    (wetting-phase liquid)
    (primary-phase gas)
    (isothermal)
  )
;;
;;
;; PHASE PROPERTIES
  (phaseprop
    (liquid
      (rhoP rhoPLiqWat)
      (viscosity visLiqWat)
      (enthP enthPLinearMix)
      (pcTemFac watPcTemFac)
    )
    (gas
      (rhoP rhoPIdealGas)
      (viscosity visGasAirWat)
      (enthP enthPLinearMix)
    )
  )
  (compprop
    (sf
      (intrinsic (MoleWt 146.0))
      (liquid (freeDiffusivity 3.0e-9)(Keq 1.0)(enthC enthCLiqWat)(rhoC rhoCLiqWat))
      (gas (freeDiffusivity 1.00e-8)(Keq KeqStd (C 2.35E10)(D 0.0))(enthC enthCConstCp (Cp 1000)(Tref
0)(Hv 0)))
    )
    (water
      (intrinsic (MoleWt 18.))
```

```

    (liquid
      (freeDiffusivity 1.e-9)
      (Keq 1.0)
      (enthC enthCLiqWat)
      (rhoC rhoCLiqWat)
    )
    (gas
      (freeDiffusivity 1.e-6)
      (Keq KeqWatVapor)
      (enthC enthCWatVap)
    )
  )
  (air
    (intrinsic (MoleWt 29.))
    (liquid
      (freeDiffusivity 1.e-9)
      (Keq 1.0)
      (enthC enthCLiqWat)
      (rhoC rhoCLiqWat)
    )
    (gas
      (freeDiffusivity 1.e-6)
      (Keq KeqStd (C 6.65e9)(D 0.0))
      (enthC enthCConstCp (Cp 1009.0)(Tref 0.0)(Hv 0.0))
    )
  )
)
;;
;; OUTPUT
(output
  (extool (continuum f)
    (variables T P S.liquid C.water.gas C.air.gas C.sf.gas mass.sf.liquid mass.sf.gas mass.air.liquid
mass.air.gas Q.sf.gas Q.air.gas Q.gas)
    (file-ext ".f.ext")(range "*.f*")
    (outtimes (include
"/home/alibert/Documents/Projet_modelisation/NUFT/Code_ESCAPe/Double_porosity/500hours.dat"))
  )
  (srcflux
    (name sf6)
    (comp sf)
    (file-ext "-injsf.dat")
    (outtimes (include
"/home/alibert/Documents/Projet_modelisation/NUFT/Code_ESCAPe/Double_porosity/500hours.dat"))
  )
  (srcflux
    (name sf6)
    (comp air)
    (file-ext "-injair.dat")
    (outtimes (include
"/home/alibert/Documents/Projet_modelisation/NUFT/Code_ESCAPe/Double_porosity/500hours.dat"))
  )
  (extool (continuum m)
    (variables T P S.liquid C.water.gas C.air.gas C.sf.gas mass.sf.liquid mass.sf.gas mass.air.liquid
mass.air.gas Q.sf.gas Q.air.gas Q.gas)
    (file-ext ".m.ext")(range "*.m*")
    (outtimes (include
"/home/alibert/Documents/Projet_modelisation/NUFT/Code_ESCAPe/Double_porosity/500hours.dat"))
  )
)
;; ROCK TABLE

```

```

(rocktab
(ATM
(cont-len-fac 1.00e+00)(cont-area-fac 2.00e+00)
(exfac-adv (liquid 1.00e+00)(gas 1.00e+00))
(solid-density 1.00e+08)(porosity 9.900e-01)
(Kd (water 0.0)(air 0.0)(sf 0.0))
(K0 1.00e-08)(K1 1.00e-08)(K2 1.00e-08)
(tort (gas 1.00e+00)(liquid 0.00e+00))
(kr (liquid krLinear (Sr 0.00e+00)(Smax 1.0))
(gas krgLinear (Sr 0.00e+00)(Smax 1.0)))
(pc (liquid 0.0))
(krMC (liquid krMCintrinsic)(gas krMCintrinsic))
(displ 0.00e+00)(dispt 0.00e+00)
) ;; End of ATM
(clay
(cont-len-fac 4.4e-03)(cont-area-fac 9.68e+00)
(exfac-adv (liquid 1.00e+00)(gas 1.00e+00))
(solid-density 2700)(porosity 0.40)
(K0 1.8376562e-22)(K1 1.8376562e-22)(K2 1.8376562e-22)
(tort (gas 3.1141141e-01)(liquid 0.00e+00))
(Kd (water 0.0)(air 0.0)(sf 0.0))
(kr (liquid krVanGen (Sr 1.20e-01) (m 1.7741982e-01)(Smax 1.0))
(gas krgVanGenMinus (Sr 1.20e-01)(m 1.7741982e-01)(Smax 1.0)))
(pc (liquid pcVanGen (Sr 1.20e-01)(m 1.7741982e-01)(Sj 1.64e-01)(alpha 2.6e-04)(Smax 1.0)))
(krMC (liquid krMCintrinsic)(gas krMCintrinsic))
(displ 0.00e+00)(dispt 0.00e+00)
) ;; End of the material
(sand
(cont-len-fac 0.00e+00)(cont-area-fac 1.00e+00)
(exfac-adv (liquid 1.00e+00)(gas 1.00e+00))
(solid-density 1.1475e+02)(porosity 0.20)
(Kd (water 0.0)(air 0.0)(sf 0.0))
(K0 3.6e-12)(K1 3.6e-12)(K2 3.6e-12)
(tort (gas 6.8218218e-01)(liquid 0.00e+00))
(kr (liquid krVanGen (Sr 1.00e-02)(m 7.404e-01) (Smax 1.0)(gamma 0.0))
(gas krgVanGenMinus (Sr 1.00e-02)(m 7.404e-01) (Smax 1.0)))
(pc (liquid pcVanGen (Sr 1.00e-02)(m 7.404e-01)(alpha 2.6e-04)(Smax 1.0)(gamma 0.0)))
(krMC (liquid krMCactiveFrac (gamma 4.00e-01)(Sr 1.00e-02))
(gas krMCactiveFrac (gamma 4.00e-01)(Sr 0.0)))
(displ 0.00e+00)(dispt 0.00e+00)
) ;; End of the material
(cav
(cont-len-fac 1.00e+00)(cont-area-fac 2.00e+00)
(exfac-adv (liquid 1.00e+00)(gas 1.00e+00))
(solid-density 1.00e+08)(porosity 9.900e-01)
(Kd (water 0.0)(air 0.0)(sf 0.0))
(K0 1.00e-08)(K1 1.00e-08)(K2 1.00e-08)
(tort (gas 1.00e+00)(liquid 0.00e+00))
(kr (liquid krLinear (Sr 0.00e+00)(Smax 1.0))
(gas krgLinear (Sr 0.00e+00)(Smax 1.0)))
(pc (liquid 0.0))
(krMC (liquid krMCintrinsic)(gas krMCintrinsic))
(displ 0.00e+00)(dispt 0.00e+00)
) ;; End of the material
(HDPE
(cont-len-fac 1e-4)(cont-area-fac 1.0)
(exfac-adv (liquid 1.00e+00)(gas 1.00e+00))
(solid-density 2700)(porosity 0.01)
(Kd (water 0.0)(air 0.0)(sf 0.0))
(K0 1.0e-18)(K1 1.0e-18)(K2 1.0e-18)

```

```

(tort (gas 3.1141141e-01)(liquid 0.00e+00))
(kr (liquid krIVanGen (Sr 1.20e-01) (m 1.9741982e-01)(Smax 1.0))
  (gas krgVanGenMinus (Sr 1.20e-01)(m 1.9741982e-01)(Smax 1.0)))
(pc (liquid pcVanGen (Sr 1.20e-01)(m 1.9741982e-01)(Sj 2.0e-01)(alpha 1.0540924e-05)(Smax 1.0)))
(krMC (liquid krMCintrinsic)(gas krMCintrinsic))
(displ 0.00e+00)(dispt 0.00e+00)
) ;; End of the material
) ;; close rocktab
.. *****
..
..
;; set boundary conditions
(bctab
(atmos
(range "at*")
(basephase gas)
(tables
(S.liquid 0.0 0.0 1.0E30 0.0 )
(P 0.0 9.900E4 1.0E30 9.900E4)
;;(P (include "carriganP_updated.dat"))
(C.air 0.0 9.9E-1 1.0E30 9.9E-01)
(C.sf 0.0 1.0E-50 1.0E30 1.0E-50)
)
)
; (bt
; (range "bt*")
; (basephase liquid)
; (tables
; (S.liquid 0.0 0.99 1.0E30 0.99 )
; (P 0.0 9.920E4 1.0E30 9.920E4 )
; (C.air 0.0 1.0E-6 1.0E30 1.0E-6 )
; (C.sf 0.0 0.01 1.0E30 0.01)
; )
; )
) ;; end bctab

;;
;; initial starte
(read-restart (file "CL-10-i.res")(time 1e6y))
;;(overwrite-restart
;; (P by-key ("src*" 9.920E4))
;; (C.air by-key ("src*" 0.99))
;; (S.liquid by-key ("src*" 0.0))
;; (C.sf by-key ("src*" 0.01))
;;) ;; end overwrite
;;
;; source tab instead of initial parameters
(srctab
(phaseflux
(phase gas)(name sf6)(range "src*")
(allocate-by-volume)(allocate-by-element ("*" 1.0))
(table 0.0 2.14E-7 1.0e30 2.14E-7) ;; total phase flux, not corrected for sf
(setcomp
(sf (table 0.0 0.01 1.0e30 0.01)) ;; for ppmv ok
(air (table 0.0 0.99 1.0e30 0.99))
(water (table 0.0 1e-10 1.0e30 1e-10))
)
)
)
)

```

```

;; mesh generation
(genmsh
(anisotropic)(down 0 0 1)(coord cylind)
(multi-continua (type rocktab)
(continuum (name m)
(dx 0.0125 0.01 0.02 0.02 0.02 0.02 0.02 0.02 0.02 0.01 0.005 0.005)
(dy 360)
(dz 1E-4 0.05 0.05 0.05 0.05 0.05 0.05 0.05 0.05 0.05 0.05 ;; 1~11
0.03 0.02 0.01 0.01 0.01 ;; 12~16
0.01 0.01 0.02 0.03 0.02 0.01 0.01 0.005 0.005) ;; 17~25)
(mat
(atm ATM 1 nx 1 ny 1 1)
(grt clay 1 nx 1 ny 2 nz)
;;(POND clay 1 nx 1 ny 2 3)
;;(cav cav 1 11 1 ny 17 24)
(src cav 1 nx 1 ny 17 24)
(tk HDPE 1 nx 1 ny nz nz)
(bt HDPE nx nx 1 ny 1 nz)
) ;; end matrix mat
) ;; end matrix continuum
(continuum (name f)
(flow-area-density ("*f*" 1.0))
(LenFirst ("*f*" 1.0))(Len ("*f*" 1.0))
(dx 0.0125 0.01 0.02 0.02 0.02 0.02 0.02 0.02 0.02 0.01 0.005 0.005)
(dy 360)
(dz 1E-4 0.05 0.05 0.05 0.05 0.05 0.05 0.05 0.05 0.05 0.05 ;; 1~11
0.03 0.02 0.01 0.01 0.01 ;; 12~16
0.01 0.01 0.02 0.03 0.02 0.01 0.01 0.005 0.005) ;; 17~25)
(mat
(atm ATM 1 nx 1 ny 1 1)
(grt sand 1 nx 1 ny 2 nz)
;;(POND sand 1 nx 1 ny 2 2)
;;(cav cav 1 11 1 ny 17 24)
(src cav 1 nx 1 ny 17 24)
(tk HDPE 1 nx 1 ny nz nz)
(bt HDPE nx nx 1 ny 1 nz)
) ;; end matrix mat
) ;; end fracture continuum
) ;; end multi continua
) ;; end mesh
.. ***** Solver options *****
;;
(include
"/home/alibert/Documents/Projet_modelisation/NUFT/Code_ESCAPe/Double_porosity/run_control_param_L
DTH-v04")
) ;; end of model input
.. ***** Done ! *****
;;

```

RÉSUMÉ

La maîtrise des flux de gaz du sol vers l'atmosphère est d'importance pour plusieurs questions sociétales à forts enjeux. La mesure et l'extrapolation de ces flux est un exercice complexe du fait de leur variabilité spatiale et temporelle. Cette variabilité est liée aux nombreux processus, souvent intriqués, qui contrôlent le transport des gaz dans les sols et à l'interface sol-atmosphère.

Un dispositif novateur a été développé au sein d'une plateforme expérimentale pour permettre l'étude des flux de gaz en surface d'une colonne de sol placée en conditions contrôlées, avec un suivi à long terme et à haute résolution de nombreux paramètres. Les mécanismes physiques, chimiques et biologiques responsables des variations des flux de gaz à l'interface sol-atmosphère peuvent ainsi être appréhendés séparément.

Cette étude s'est particulièrement attachée aux effets du métabolisme des plantes (évapotranspiration, respiration et photosynthèse) ainsi qu'à la teneur en eau et à la pression barométrique. Ces mécanismes jouent sur le gradient de pression qui contrôle le transport advectif des gaz. Un flux de gaz constant à la base d'un sol peut ainsi montrer des variations transitoires significatives sur des échelles de temps allant de plusieurs heures à plusieurs jours.

Un travail de modélisation numérique a été initié bien qu'aucun code ne soit actuellement en mesure de rendre compte du transport diphasique en présence de fronts air/eau avec évaporation. Les nombreux résultats expérimentaux obtenus permettront de valider les développements nécessaires.

MOTS CLÉS

Flux de gaz, interface sol-atmosphère, expérience en colonne, modélisation du transport des gaz.

ABSTRACT

Mastering gas fluxes from the soil to the atmosphere is important for several high-stakes societal issues. Measuring and extrapolating these fluxes is a complex exercise due to their spatial and temporal variability. This variability is related to the many, often intertwined, processes that control the transport of gases in soils and at the soil-atmosphere interface.

An innovative device has been developed within an experimental platform to study gas fluxes at the surface of a soil column placed under controlled conditions, with long-term, high-resolution monitoring of many parameters. The physical, chemical and biological mechanisms responsible for the variations of gas flux at the soil-atmosphere interface can thus be studied separately.

This study focused in particular on the effects of plant metabolism (evapotranspiration, respiration and photosynthesis) as well as water content and barometric pressure. These mechanisms affect the pressure gradient that controls advective gas transport. A constant gas flow at the base of a soil can thus show significant transient variations on time scales ranging from several hours to several days.

Numerical modelling has been initiated although no code is currently able to account for two-phase transport in the presence of sharp air/water fronts and evaporation. The numerous experimental results will be used to validate the necessary developments.

KEYWORDS

Gas fluxes, soil-atmosphere interface, column experiment, subsurface gas transport modeling