



**Mémoire présenté par :**

**Zakaria SAADI**  
**Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire**

en vue de l'obtention du diplôme d'**Habilitation à Diriger des Recherches**  
de l'Institut National Polytechnique de Toulouse

Spécialité : Mécanique des Fluides

**Contribution à l'amélioration des modèles transitoires hydraulique-gaz en milieu poreux en environnement naturel et anthropique : transfert du radon géosphère-bâtiments-atmosphère, et de l'hydrogène dans un stockage géologique de déchets radioactifs**

Le 08 Juin 2022 à 14h à l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse

Devant le Jury composé de :

<b>Azita AHMADI-SÉNICHAULT</b>	<b>Professeure, Arts&amp;Métiers ParisTech, ENSAM</b>	<b>Rapporteure</b>
<b>Brahim AMAZIANE</b>	<b>Maître de conférences HDR, Université de Pau</b>	<b>Rapporteur</b>
<b>Marc PRAT</b>	<b>Directeur de Recherche CNRS, IMFT</b>	<b>Rapporteur</b>
<b>Stefan FINSTERLE</b>	<b>Chercheur à LBNL, Geo-Consulting, Berkeley</b>	<b>Examineur</b>
<b>Michel QUINTARD</b>	<b>Directeur de Recherche CNRS, IMFT</b>	<b>Examineur</b>
<b>Rachid ABABOU</b>	<b>Professeur INPT, IMFT</b>	<b>Correspondant HDR</b>





**Extended summary of the HDR (Habilitation à Diriger des Recherches),  
to be defended by Dr. Zakaria SAÂDI at the Institut National Polytechnique de  
Toulouse, Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse, France**

**Title<sup>1</sup> : Contribution to model improvement for transient water-gas flow in porous media in natural and anthropogenic environments: radon gas through geosphere-buildings-atmosphere, and hydrogen gas in a geologic repository for radioactive waste.**

At present, transient gas transfer phenomena in multiphase porous media are not completely understood, whether at microscopic (grain/pore) scale, or at macroscopic (Darcy) scale. On the one hand, this is due to lack of knowledge on the characterization of transfer properties in porous media that are usually heterogeneous, subjected to high measurements uncertainties, and sometimes not well analyzed by the usual models. On the other hand, due to non-linearity of these properties and to the transient nature of the conditions surrounding these media (boundary conditions), the equations describing multiphase flow and transport associated to these properties are difficult to solve numerically, and thus complicates their use for predictive purposes in a wide range of applications.

I was faced to this difficulty during my PhD Thesis (Saâdi, 2001), in particular for studying transport of nitrogen and its bio-physicochemical transformations in unsaturated porous media in presence of plants at natural field conditions (rainfall, evapotranspiration, runoff...), and at different spatial scales (laboratory column, lysimeter, agricultural parcel...). Following this study, I studied many problems dealing with these phenomena, through postdoctoral researches in different French institutes. These studies included:

- (i) Oil and gas reservoirs exploration and exploitation (Canadian and Venezuelan foothills) studied by the French Petroleum Institute (IFP: *Institut Français du Pétrole*) in Rueil-Malmaison near Paris, during which the unsaturated zone has been taken into account for the first time in models of hydrocarbon generation and migration in the geological strata of sedimentary basins (i.e., flow in three phase oil-gas-water porous media with geo-mechanics deformations due to basin lithology formation during many millions of years);
- (ii) Integrated hydrological modelling of nitrogen transport and transformations at different catchment scales during my stay at the French National Institute of Agronomy (INRA: *Institut National de la Recherche Agronomique*) in Rennes (France), in order to study the impact of agricultural practices on water quality in rivers and groundwater in French Brittany;
- (iii) Agroforestry systems, during my stay at INRA of Montpellier city, notably for the development of a three dimensional model for the simulation of plants and trees growths, and their competitions for water, nitrogen and light, its parametrization and its validation on experimental data; and
- (iv) Spatial hydrological modelling of water cycle in a 580 km<sup>2</sup> catchment at Donga (Benin), in order to study the impact of climate change on West African monsoon variability, notably development of a new hydrological software by coupling subsurface models (unsaturated and groundwater) to overland flow (run-off, river flow, ...) and erosion models. This work was developed during my stay at National Center of Scientific Research (CNRS: *Centre National de la Recherche Scientifique*) in Grenoble, France.

Results presented in this post-doctoral thesis (HDR: *Habilitation à Diriger les Recherches*) are those obtained from several research studies that I have carried out during my stay at IRSN (*Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire*) since April 2010 until now. These studies follow those research works that I have initiated during my research carrier and detailed above. They focus in particular on two important research topics: (1): radiation protection against ionizing radiation (coming essentially from radon), and (2): safety of a deep geological disposal facility of radioactive waste (High-Level Waste HLW & Intermediate Long-Lived Waste ILLW). The first topic is part of the French National Plan for the Management of Radioactive Materials and Waste (PNGMDR, 2011-2015) and National Action Plan 2016-2019 for radon risk management (National Safety Authority; ASN). It addresses the outstanding issues that I have studied during seven years on radon transport from soils, landfill sites

---

<sup>1</sup> **French title:** « *Contribution à l'amélioration des modèles transitoires hydraulique-gaz en milieu poreux en environnements naturel et anthropique : transfert du radon géosphère-bâtiments-atmosphère, et de l'hydrogène dans un stockage géologique de déchets radioactifs* ».



of Uranium Mill Tailings (UMT), and karstic systems, to the natural environment and buildings (soil-building interfaces). The second topic is also part of the French PNMGDR 2016-2021, notably the feasibility study of the CIGEO project (Centre Industriel de stockage GEOlogique), which is the French national project and site for the disposal facility of HLW and ILLW in a deep geological repository at Bure (Meuse / Haute Marne – North-East France). In this topic, I present essentially research works that I have developed since the year 2016 in order to study the safety case of the CIGEO project. My research on this topic deals essentially with coupled and transient phenomena of hydrogen production and transport at different spatial scales of the repository (waste cell, module of hundreds of cells, site of many modules) during its post-closure phase.

For 12 years now, I have been initiating, developing and managing research projects dealing with transient compositional two-phase flow phenomena in porous media. The main objectives are to identify the overriding mechanisms, and to reduce uncertainty due to sub-models and parameters describing these phenomena, while keeping their physical meanings. This, surely, requires the development of codes, their verification and experimental validation.

Based on these projects, the present manuscript describes research activities that I have implemented for those two topics discussed above. It is organized in three principal parts:

- **Part I:** Study of radon transport in natural and anthropogenic (man-made) environments.
- **Part II:** Enhancement of models of 2-phase flow & hydrogen transport in a deep geological radioactive waste repository.
- **Part III:** Research perspectives.

**Part I** is dedicated to my work on experimental and numerical modelling of radon transport in three different contexts: landfill site of UMT; soil-building interfaces; karstic environment. These works are looking at gaps in modelling that are necessary to deal with in order to reduce uncertainties on radon flux and concentration. These are not usually taken into account in the models currently developed internationally for radon transport problems from the geosphere to the atmosphere and to buildings. My studies focused first on radon transport, based on the newly developed code T2Rn (TOUGH2 for Radon - based on the platform TOUGH2 from Lawrence Berkeley National Laboratory, LBNL, California USA), and on physical systems simplifications, especially at interfaces between porous and “free” media (open media) in the case of radon transport through soil-basement and rock-cave interfaces.

The first study in Part I concerns the estimation of radon exhalation fluxes from the surface of a bare uranium mine waste rock material covering a uranium mill tailing (UMT) material. This study showed that the uncertainty on radon exhalation flux calculation during the dry periods of the year is much higher if evaporation is not included in two-phase (water-air) flow models. This result is important in that uncertainty on the radon exhalation flux, used as source term in atmospheric models, can highly impact the results of radon transport in the atmosphere (Manohar et al., 2013; Zahorowski et al., 2004; Gupta et al., 2004b).

The second study in Part I includes mainly works on radon transport at the soil-building interface for three designs of building foundations, as follows...

- (i) The first studied building is a dwelling built partially on a slab-on-grade floor and on a basement foundation that is embedded within a UMT contaminated sand. This dwelling, named Jusiak (according to the name of their householders), has been covered, for a while, by the French media during the year 2014, because of high indoor radon levels that reached more than one thousand of Bq/m<sup>3</sup>. Measurements of radon levels (flux and concentration) in the dwelling and in the soil surrounding it, as well as weather conditions, enabled me to develop a simplified modelling approach at the soil-basement interface (homogenization of fissures properties with the adjacent porous elements of the foundation). This approach allowed me to simulate remarkably the transient nature of radon flux measured on slab and walls of the basement foundation, as well as radon activity concentrations peaks measured in the basement (due to high under-pressurization of the dwelling). Moreover, this approach helped me to identify the principal transfer pathways of radon to the basement (i.e., fissures in walls and slab of the foundation) and to simulate different scenarios of radon mitigation in the basement through numerical modelling of different soil depressurization systems designs;
- (ii) The second building studied is a supported slab configuration, which has been studied in the framework of a theoretical benchmark between code T2Rn and analytical and semi-empirical models (MA) developed by CSTB (*Centre Scientifique et Technique du Bâtiment*). This study enabled me to

numerically verify the code T2Rn for homogeneous soil conditions and special boundary conditions, and to evaluate the hypotheses of the functioning of each model developed based on both codes (T2Rn and MA) as well as their limited applications;

- (iii) The last and third configuration is a slab-on-grade foundation of a house instrumented by IRSN during a field campaign in year 2016. This house was chosen as a test case to identify the different sources and pathways of radon in some living rooms. Comparison of results obtained for such configuration between models developed on the basis of both codes, revealed the T2Rn capability to study buildings with complex foundations geometries built on heterogeneous porous structures, cases that MA models of CSTB could not solve.

The last and third study in Part I includes, on the one hand, an experimental component for the *in situ* characterization of soil-rock-cave properties of a karst network in a study area located in the Franche-Comté region (France), as well as their analysis, and on the other hand a modelling component of radon transport from the karstic system to the soil surface (sinkholes) by using a simplified physically-based approach that has been implemented in the T2Rn code. The comparative analysis between observations and simulations allowed identifying the following mechanisms:

- Average radon activity concentration levels observed in soils are mainly the result of the emanation process in the soil with a given  $^{226}\text{Ra}$  mass activity;
- Even though the subsurface formations of the study area can be associated to calcareous rocks (limestones) with low uranium and radium contents, their high  $^{226}\text{Ra}$  contents are typical of granitic rocks rich in uranium and radium. This enrichment by  $^{226}\text{Ra}$  would be linked to the dissolution of carbonates, which is a typical phenomenon in karstic regions;
- The presence of a fault zone in the study area is a contributory factor in the increase of radon levels in soil air;
- Amplitudes of fluctuations of radon activity concentrations measured in the soil air are linked to the gas phase pressure gradients from the cave to the soil surface.

**Part II** is dedicated to the study of uncertainties that can result from numerical modelling of hydrogen migration at different spatial scales of the repository (CIGEO) and for one hundred thousand to one million years duration. These uncertainties are attributed to: (i) physical phenomena that are neglected in two-phase flow and transport processes (although observed experimentally), or not well represented by the adequate models; (ii) uncertain parameters in the models, which are obtained by fitting experimental data that are subjected to large errors, or do not represent well their spatial variability in the heterogeneous media within the repository (investigation of upscaling procedures are also important in that case); and (iii) the numerical methods applied for solving the coupled non-linear parabolic-elliptic partial differential equations with different types of meshes.

The studies presented in this part are innovative in several respects concerning compositional two-phase flow in porous media, as summarized just below...

- In the first study of Part II, the phenomenon of capillary entry pressure is studied through development of new functions of hydraulic properties (curves of water retention and of relative permeability to water and gas) that are implemented in the code TOUGH2. This required changing the numerical methods of the solution currently developed in that code so as to solve the problem of changes from single gas or liquid phase to two-phase liquid-gas conditions, and vice versa. Two numerical methods (PCM and SGM) are developed and verified numerically, then validated on an experiment of nitrogen gas pulses injection in a borehole embedded in the Callovo-Oxfordian (COx) clay rock at the underground laboratory of Bure (PGZ—GAZ experiment). On the one hand, this validation identified the high uncertainty on gas pressure simulated within the measurement chamber when the capillary entry pressure is neglected; on the other, the role of this parameter as a capillary barrier against gas penetration in the clay rock (COx) is well demonstrated.

Such a result can highly change the current vision of the repository layout conception, according to which hydrogen generated by anaerobic conditions within the drifts network will completely dissolve in the COx water.

- In the second study of Part II, a synthetic review of the well-known hysteresis models in the literature is presented, and a comparative study is suggested between the analytical equations of these models and experimental drainage and imbibition water retention curves of sand, clay rock COx and engineered barriers materials proposed for sealing drifts (e.g., cement, bentonite). Application of these models to an intermediate

laboratory experiment (carried out at Colorado School of Mines; PhD Thesis of Trevisan (2015)), which consists of the injection of a non-wetting fluid (Soltrol-220 : equivalent to supercritical CO<sub>2</sub>) into a small sand aquifer initially saturated by a wetting fluid (glycerol + water), confirmed the necessity to take into account hysteresis and air entrapment in a such system in order to enhance modelling of the post-injection phase of the non-wetting fluid. It is most likely that this situation be present during the post-closure phase of the repository: the hydrogen will be entrapped during a long period around the drift network even after interruption of its production by the process of anaerobic corrosion of metallic components in the repository. Its presence can disturb the mechanics of seals and the host rock for a large period.

Moreover, this study revealed the advantage of using the hysteretic model of Beriozkin and Mualem (2018) by comparison to the other ones studied, in that it can adjust well all experimental water retention curves of the different materials, is simple to implement, and is less demanding in terms of CPU times.

- In the third study of Part II, the problems of hydrogen migration at different spatial scales of a repository have been dealt with. The impact of a non-negligible capillary entry pressure on hydrogen migration in a HLW cell and in a module consisting of a hundred HLW cells (models of FORGE benchmark; Wendling et al., 2019) has been well demonstrated. It was in accordance with the numerical modelling of the in situ PGZ1-GAZ experiment. In fact, the new simulated gas pressures in the interfaces, EDZ and backfilled drifts are much higher than those classically simulated with negligible capillary entry pressure. This result is explained by the preferential transport of gas in those materials having the weakest capillary entry pressure. In addition, a preliminary study of gas migration at the scale of the CIGEO repository using a simple model of the backfilled drift network and assuming negligible capillary entry pressure, showed that the piston effect of hydrogen on water flow in the main drift is not negligible, particularly in the neighborhood of the well, while it is negligible in the COx host rock. The main backfilled drift remained unsaturated during all the period of hydrogen generation showing the advance of the unsaturated water front along the drift; whereas a net advance of soluble hydrogen in the COx is simulated without its desaturation. According to our results on capillary entry pressure impact on gas pressure increase inside the waste cell and the module, it is expected that the gas piston effect be much higher in the main drift of the repository than the one simulated with negligible capillary entry pressure.

Furthermore, numerical simulations at the module scale by the massively parallel code TOUGH2-MP, revealed difficulties in constructing optimal 3D unstructured meshes on heterogeneous structures, and that numerical uncertainties on fluxes and hydrogen pressures within the backfilled drifts are not negligible, and can be dependent on the mesh type chosen. This shows that there is a considerable work to be done in this area in order to enhance future studies on numerical modelling at the repository scale.

The above-described studies of Part II allowed to discriminate successfully the effects of capillary entry pressure and of hysteresis on gas migration in two-phase liquid-gas porous media. They also led to the development of complex codes, and to the collection and analysis of an extensive database of the hydraulic two-phase properties of different materials. These initiatives have enabled us today to implement enhanced modelling of the hydrodynamic behavior of the liquid and gas phases, and to highlight the limits of classical models of gas migration that do not deal with the above-mentioned phenomena.

**Part III**, finally, is dedicated to proposals for future research. Firstly, several research actions are suggested and planned in the near future in order to enhance gas transport phenomena in heterogeneous saturated and unsaturated porous and/or fractured media for both the studied topics (1: radon transport; 2: gas in deep disposal of radioactive waste); Secondly, research subjects that emanate from both topics are developed in order to improve our knowledge on transient phenomena of multiphase flow and transport in porous and/or fractured media, in different scientific fields like oil and gas industry, nuclear industry, civil- and environmental engineering. For the « radon » topic, I will focus in particular on novel research work to be developed in order to enhance knowledge of radon transfer in the cave-rock-soil-building continuum. The proposed research appears necessary for estimating radon potential in soils and buildings, and its mapping at the scale of France.

For the topic focusing on « GAS in CIGEO », I will suggest new areas of research taking account the last evolutions of the CIGEO repository layout, in order to answer major issues, notably the problematic of the mechanical impacts of rock deformation on hydrogen transport and conversely, the possible impacts of hydrogen transport on the hydro-mechanical properties of host rock and engineered barriers materials, as well as questions about the numerical approaches for solving the mathematical problems, and finally, uncertainties due to unknown or uncertain parameters in these numerical models.



# Résumé

Jusqu'à nos jours, la plupart des connaissances permettant d'expliquer les phénomènes transitoires de transferts des gaz en milieux poreux multiphasiques ne sont pas encore acquises ou sont incomplètes, que ce soit à l'échelle microscopique ou macroscopique des transferts. Cette difficulté provient essentiellement, d'une part du manque de connaissances sur les caractéristiques des propriétés des transferts souvent hétérogènes, sujettes à des incertitudes de mesures importantes et mal interprétées par des modèles inadéquats, et d'autre part du caractère fortement non linéaire de ces propriétés et la nature transitoire des conditions environnant ces milieux (conditions aux limites), ce qui rend très compliquée la résolution numérique des modèles d'écoulement et de transport des gaz associés à ces phénomènes pour des fins prédictives.

Je me suis heurté à cette difficulté durant ma thèse de doctorat (Saâdi, 2001), en particulier pour étudier le transport de l'azote et ses transformations bio-physico-chimiques en milieu poreux non saturé, en présence des plantes (sols agricoles) et en conditions d'écoulement d'eau transitoires (pluie, évapotranspiration, ruissellement...) à différentes échelles spatiales (colonne de laboratoire, lysimètre, parcelle agricole). Cette étude s'est poursuivie par d'autres études traitant des sujets associés à ces phénomènes à travers des post-docs de recherche dans différents instituts de recherche français. Ces post-docs concernaient : (i) l'exploration et l'exploitation des réservoirs de pétrole (*foothills* Canadiens et Vénézuéliens) étudiés par l'Institut Français du Pétrole (IFP) à Reuil-Malmaison, en particulier, la prise en compte de la zone non saturée pour la première fois dans les modèles de la genèse et de la migration des hydrocarbures dans les strates géologiques des bassins sédimentaires (i.e., écoulements en milieux poreux triphasiques eau-huile-gaz avec déformations géomécaniques durant des millions d'années); (ii) la modélisation intégrée de transfert d'azote à l'échelle du bassin versant pour l'étude de l'impact du changement des pratiques agricoles sur la qualité de l'eau dans les nappes et les rivières de la région bretonne étudiées par l'INRA (Institut National de la Recherche Agronomique) de Rennes; (iii) Etude des systèmes hydrologiques agroforestiers en particulier le développement, la paramétrisation et la validation d'un modèle 3D de simulation de la croissance simultanée de l'arbre et de la plante dans des parcelles agroforestières étudiées par l'INRA de Montpellier, en considérant leur compétition pour l'eau, l'azote et la lumière; (iv) Modélisation hydrologique spatialisée du cycle de l'eau sur le bassin versant de la Donga (580 km<sup>2</sup>) au Bénin pour étudier l'impact de la mousson ouest africaine sur le climat et la recharge de la nappe, et cela à travers une nouvelle plateforme hydrologique développée par le CNRS (Centre National de la Recherche Scientifique) de Grenoble, en considérant un modèle d'écoulement 3D de subsurface (zone non saturée et nappe), couplé à des modèles d'écoulement à surface libre (ruissellement, rivière) et d'érosion en surface.

Les résultats présentés dans cette HDR, sont le fruit des études que j'ai réalisées depuis mon intégration à l'IRSN en avril 2010. Ces études font suite aux travaux de recherche que j'ai entamés durant mon parcours scientifique détaillé plus haut. Elles s'articulent essentiellement autour de deux thématiques de recherche importantes : (1) : **la radioprotection contre les rayonnements ionisants** (essentiellement provenant du **gaz radioactif radon**) et (2) : **la sûreté des installations de stockage géologique profond de déchets radioactifs à haute activité (HA) et à moyenne activité à vie longue (MAVL)**. *La première* s'inscrit dans le cadre du plan national de gestion des matières et déchets radioactifs (*PNGMDR, 2011-2015*) et du *plan national d'action 2016-2019* pour la gestion du risque lié au radon (ASN), et concernent essentiellement les études que j'ai abordées durant 7 ans sur les phénomènes de transport du radon depuis le sol, le sous-sol, **les résidus miniers issus du traitement des minerais d'uranium** (RMU) dans les sites de stockage, et **les systèmes karstiques** vers l'environnement naturel et **l'habitat** (interfaces sol-bâtiment). *La seconde* s'inscrit dans le cadre du *PNGMDR 2016-2021*, en particulier l'étude de faisabilité du projet de l'installation Cigéo (Centre Industriel de stockage GÉologique) pour le stockage géologique profond de déchets radioactifs HA et MAVL. Dans cette thématique, je me suis intéressé essentiellement à la présentation des travaux de recherche que j'ai développés depuis l'année 2016 suite à l'expertise du Dossier de Sûreté (DOS) de Cigéo pour étudier les phénomènes transitoires et couplés de production et de transport de l'hydrogène à différentes échelles spatiales de l'installation (alvéole, module à plusieurs alvéoles, site à plusieurs modules) durant la phase de post-fermeture de cette dernière.

Depuis maintenant 12 ans, j'initie, développe et pilote des projets de recherche portant sur les phénomènes transitoires de transport des gaz dans différentes configurations. Les objectifs ont pour but d'identifier les mécanismes prépondérants et de réduire les incertitudes associées aux modèles et paramètres décrivant ces phénomènes tout en gardant leur sens physique. Cela passe essentiellement par un développement de codes, leur vérification et validation expérimentale.

Sur la base de ces projets, le présent manuscrit décrit les activités de recherche que j'ai pu mettre en œuvre sur les deux thématiques citées plus haut. Il s'organise en trois grandes parties principales : **I** : *Etude de transport du radon dans des milieux naturels et anthropiques*, **II** : *Amélioration des modèles diphasiques de transport de l'hydrogène dans un stockage géologique profond de déchets radioactifs*, et **III** : *Perspectives de recherche*.

**La partie I** traite des travaux expérimentaux et de modélisations de transport du radon dans différents contextes (site de stockage des RMU, interfaces sol-bâtiment, karsts), elle s'intéresse aux lacunes de modélisation permettant de réduire les incertitudes sur les flux et les concentrations en radon souvent non prises en compte dans les modèles actuellement développés au sein de la communauté internationale qui s'intéresse au problème de transport du radon depuis la géosphère vers l'atmosphère et les bâtiments. Ces études sont premières sur le radon, elles ont donné naissance au développement du code T2Rn (*TOUGH2 for Radon*) à base de la plateforme américaine TOUGH2 (*Lawrence Berkeley National Laboratory*, LBNL, Californie USA) et sont basées sur une simplification des systèmes physiques étudiés et, notamment, sur une simplification des interfaces milieu poreux-milieu libre dans le cas de transport du radon à l'interface sol-cave d'un bâtiment et à l'interface roche-cavité souterraine.

**La première étude** de la partie I concerne l'estimation des flux de radon à la surface d'une couverture de stériles miniers nus dans un site de stockage des RMU. Cette étude a montré que l'incertitude sur le calcul des flux de radon durant les périodes sèches de l'année sera très élevée si l'évaporation n'est pas prise en compte dans les modèles d'écoulement diphasique eau-air. Ce résultat est très important puisqu'il conditionne les résultats issus des modèles atmosphériques utilisant le radon comme traceur (Manohar et al., 2013 ; Zaborowski et al., 2004 ; Gupta et al., 2004b).

**La seconde étude** de la partie I comprend essentiellement le transport du radon à l'interface sol-bâtiment en considérant trois types de fondations de bâtiment : **(i) La première configuration** étudiée correspond à une maison construite partiellement sur terre-plein et sur une cave à l'aplomb d'un sable mélangé avec des RMU. Cette maison, nommée Jusiak (au nom de ses propriétaires), a connu une campagne médiatique importante en France durant l'année 2014 puisque les concentrations en radon mesurées dans la maison ont atteint plus d'une centaine de milliers de Bq/m<sup>3</sup>. Les mesures des niveaux du radon (flux et concentration) dans la maison et dans le sol environnant ainsi que la prise en compte des conditions météorologiques qui règnent aux alentours de la maison, m'ont permis de développer une approche de modélisation simplifiée à l'interface sol-cave (homogénéisation des propriétés des fissures avec les éléments poreux adjacents de la fondation). Cette approche a permis, d'une part, de simuler remarquablement la nature transitoire des flux de radon mesurés sur les dalles et les murs de la fondation de la cave et des pics de concentration en radon mesurés dans la cave (dus aux fortes dépressurisations de la maison), et d'autre part, d'identifier les voies principales de transfert du radon vers la cave (i.e., fissures dans la dalle et les murs de la fondation). De même, une telle approche a permis de réaliser différents scénarios de mitigation du radon dans la cave à travers une modélisation de différents systèmes de dépressurisation du sol avoisinant; **(ii) La seconde configuration** est celle d'un bâtiment construit sur une dalle portée sur terre-plein, elle a été étudiée dans le cadre d'un benchmark théorique entre le code T2Rn et les modèles analytiques et semi-empiriques (MA) développés par le centre scientifique et technique du bâtiment de France (CSTB). Cette étude a permis de vérifier numériquement le code T2Rn pour le cas d'un sol homogène et des conditions aux limites particulières ainsi que pour étudier les hypothèses de fonctionnement de chacun des modèles développés à base de ces deux codes (T2Rn et MA) et leurs limites d'application; **(iii) La troisième configuration** est celle d'une habitation instrumentée par l'IRSN durant l'année 2016, construite sur terre-plein, qui a été choisie pour identifier les différentes sources et voies d'entrée du radon dans certaines pièces de vie. La comparaison des résultats de calcul sur cette configuration de bâtiment modélisée par les codes T2Rn et MA, a permis de révéler la capacité du code T2Rn à étudier des géométries de bâtiments complexes construits sur des milieux poreux hétérogènes, contrairement aux modèles MA de CSTB.

**La troisième étude** de la partie I comprend, d'une part, un volet expérimental sur la caractérisation du réseau karstique d'une zone pilote en Franche Comté et sur l'acquisition de données au terrain (niveaux de radon dans les sols et les cavités; propriétés physiques, hydrodynamiques et du terme source du radon des sols...), ainsi que leur interprétation, et d'autre part, un volet modélisation des transferts du radon depuis le système karstique étudié vers



la surface du sol basée sur une approche simple mais qui préserve le sens physique des transferts (avec le code T2Rn). L'analyse comparative entre les observations et la simulation a permis d'identifier les mécanismes suivants :

- Les niveaux moyens de l'activité volumique du radon dans le sol résultent essentiellement de l'émanation du  $^{226}\text{Ra}$  contenu dans le sol ;
- Le sol du secteur d'étude, bien qu'associé à des roches calcaires pauvres en uranium et en radium, présente des teneurs en  $^{226}\text{Ra}$  similaires à celles des sols de roches granitiques riches en uranium et en radium. Cet enrichissement relatif en  $^{226}\text{Ra}$  du sol serait lié à la dissolution des carbonates, phénomène typique des régions karstiques ;
- La présence d'une zone de faille est un facteur favorisant la présence de radon dans l'air du sol à des concentrations plus importantes ;
- Les amplitudes des fluctuations de l'activité volumique de radon mesurées dans l'air du sol sont liées aux gradients de pression de la phase gazeuse entre la surface du sol et la cavité souterraine.

**La partie II** s'intéresse à l'identification des différentes sources d'incertitudes issues de la modélisation de la migration de l'hydrogène à différentes échelles spatiales sur une durée d'une centaine de milliers à 1 million d'années au sein de la candidate installation **Cigéo** à Bure (La Meuse/Haute Marne, France). Ces incertitudes sont de différentes natures et peuvent être dues: **(i)** à la non prise en compte de certains phénomènes physiques, pourtant observés expérimentalement, dans les processus de transfert en milieu poreux ou leur mauvaise représentation par des modèles inadéquats; **(ii)** aux paramètres incertains dans ces modèles, qui sont soit obtenus par ajustement sur des données expérimentales sujettes à des erreurs de mesure importantes, soit représentent mal leur variabilité spatiale dans des milieux très hétérogènes. La notion de changement d'échelle est très importante dans ce cas ; et **(iii)** à la méthode numérique de résolution des EDPs non linéaires et couplées, et au type de maillage choisis.

Les études présentées dans cette partie sont novatrices dans le domaine d'écoulement et de transport en milieu poreux diphasique :

- **La première étude** de la partie II consiste à introduire le phénomène d'une pression d'entrée capillaire non nulle à travers de nouvelles fonctions de propriétés hydrauliques (courbes de rétention et de perméabilités relatives à l'eau et au gaz) dans le code TOUGH2. Cela a nécessité un changement de la méthode de résolution numérique actuellement développée dans ce code pour prendre en compte le changement de la phase liquide-gaz à la phase liquide et vice-versa. Deux méthodes numériques (PCM et SGM) ont été développées et vérifiées numériquement, puis validées sur une expérience d'injection de l'azote gazeux dans un forage dans le COx à Bure (PGZ1-GAZ). Cette validation a permis d'identifier, d'une part, l'incertitude importante commise sur le calcul de la pression du gaz dans la chambre de mesure lorsque la pression d'entrée capillaire est négligée, et d'autre part d'identifier le rôle de ce paramètre à freiner le mouvement de gaz dans le COx.

Un tel résultat pourra modifier la vision actuelle de la conception du stockage Cigéo selon laquelle l'hydrogène généré dans le réseau de galeries sera complètement dissous dans l'eau du COx.

- **La seconde étude** de la partie II présente une revue synthétique des modèles d'hystérésis les plus connus dans la communauté internationale et propose une comparaison des équations analytiques correspondants, sur des courbes de rétention de drainage et d'imbibition mesurées sur du sable, la roche hôte du COx et les matériaux proposés pour le scellement du réseau de galerie dans Cigéo (e.g., ciment, bentonite). L'application de ces modèles sur une expérience de laboratoire (réalisée à l'école des mines de Colorado dans le cadre de la thèse de Trevisan (2015)), qui consiste en l'injection d'un fluide non mouillant (Soltrol-220 : équivalent du CO<sub>2</sub> supercritique) dans un réservoir initialement saturé par un fluide mouillant (glycérol + eau), confirma la nécessité de tenir compte de l'hystérésis et du piégeage d'air dans un tel système pour améliorer la modélisation de la phase post-injection du fluide non mouillant. Cette situation est également probable dans une installation de stockage où l'hydrogène peut être piégé durant une longue période au voisinage du réseau de galeries, même après l'arrêt de sa production par le processus de corrosion anaérobie de l'acier des colis et du chemisage, et ainsi perturber les scellements du stockage.

Cette étude a montré également l'avantage du modèle d'hystérésis de Beriozkin et Mualem (2018) par rapport aux autres modèles d'hystérésis étudiés. En plus de sa capacité à ajuster la plupart des courbes de rétention mesurées pour différents matériaux, il est simple à implémenter et présente de faibles temps calculs CPU.

- **La troisième étude** de la partie II consiste à traiter les problèmes de migration de  $H_2$  à différentes échelles spatiales d'une installation de stockage géologique profond de déchets radioactifs HA. L'impact d'une pression d'entrée capillaire non nulle sur la migration de  $H_2$  à l'échelle d'un **alvéole** HA et d'un **module d'une centaine d'alvéoles** (modèles du benchmark FORGE ; Wendling et al., 2019) a été bien démontré, et était en cohérence avec la modélisation de l'expérience PGZ1-GAZ. En effet, les pressions de gaz simulées au niveau des interfaces, de l'EDZ et de la galerie remblayée deviennent plus élevées que celles simulées avec une pression d'entrée capillaire nulle. Ce résultat s'explique par le transport préférentiel du gaz dans les matériaux à faibles pressions d'entrée capillaire. De même, une étude préliminaire de transport de l'hydrogène à l'échelle du **site de stockage Cigéo** (à travers une modélisation simplifiée du réseau de galeries remblayées), en considérant *a priori* une pression d'entrée capillaire nulle, montra que **l'effet piston** du gaz sur l'écoulement de l'eau dans la galerie principale remblayée n'est pas négligeable, en particulier au voisinage du puits, alors qu'il est négligeable dans le COx. En effet, cette galerie resta non-saturée durant toute la période de production de l'hydrogène avec une nette avancée du front d'eau vers le puits quelques soient les conditions initiales et aux limites saturés ou non saturés imposés. En revanche, une nette avancée de  $H_2$  dissous dans le COx a été également simulée sans désaturer ce dernier. Vu l'impact important d'une pression d'entrée capillaire non nulle sur l'écoulement diphasique liquide-gaz simulé dans le cas de l'alvéole et d'un module, on s'attend à un calcul d'effet piston du gaz plus important que celui simulé avec une pression d'entrée capillaire nulle.

Par ailleurs, les calculs numériques à l'échelle du module par le code TOUGH2-MP (MP : massivement parallélisé) ont mis en évidence les difficultés de construction d'un maillage 3D non-structuré optimal sur une structure très hétérogène, et que les incertitudes numériques sur les flux et les pressions de l'hydrogène au sein des galeries remblayées ne sont pas négligeables, et dépendent du type de maillage utilisé. Cela nécessite un effort considérable pour améliorer les modélisations futures à l'échelle de l'installation Cigéo.

Cette seconde grande partie a permis de mieux discriminer l'effet d'une pression d'entrée capillaire non nulle et de l'hystérésis sur la migration du gaz en milieu poreux diphasique, de déboucher sur un développement conséquent de codes et à l'amélioration de leur représentativité, et de collecter une base de données importante sur les propriétés hydrodynamiques des matériaux de scellements. Ces initiatives permettent aujourd'hui une amélioration conséquente de la robustesse des modélisations du comportement hydrodynamique des phases liquide-gaz, et mettent en évidence les limites des anciens modèles de migration de gaz ne traitant pas ces deux phénomènes.

Enfin, la **partie III** propose dans un premier temps une série d'actions, que nous comptons prendre en compte pour améliorer les phénomènes de transport des gaz en milieux poreux hétérogènes saturés-non saturés pour les deux thématiques étudiées (1 : transport de radon; 2 : gaz dans un stockage profond de déchets radioactifs), puis dans un second temps les sujets de recherche porteurs qui découlent de ces deux thématiques, que nous comptons développer pour améliorer la connaissance des phénomènes transitoires de l'écoulement et de transport en milieu multiphasique dans différents domaines tels que l'industrie nucléaire, l'industrie pétrolière, le génie civil et le génie de l'environnement.

Pour la thématique « radon », je me focaliserai notamment sur les travaux de recherche à développer pour améliorer les connaissances de transfert du radon dans le continuum cavité - roche – sol – bâtiment, nécessaires pour l'estimation du potentiel radon des sols et des bâtiments, et leur cartographie à l'échelle de toute la France métropolitaine.

Pour la thématique « GAZ dans Cigéo », je proposerai les nouveaux axes de recherche prenant en compte les dernières évolutions de l'architecture de Cigéo, pour répondre aux futurs objectifs majeurs de cette thématique, notamment la problématique des impacts mécaniques des déformations de la roche et des scellements sur le



transport de l'hydrogène et vice versa, ainsi que les incertitudes d'ordre numérique ou paramétrique associées au développement des modèles numériques traitant cette problématique.

# Sommaire

<b>INTRODUCTION GENERALE.....</b>	<b>20</b>
Thématique « radon ».....	22
Thématique « GAZ dans Cigéo ».....	24
<b>PARTIE I - ETUDE DE TRANSPORT DU RADON DANS DES MILIEUX NATURELS ET ANTHROPIQUES.....</b>	<b>30</b>
<b>INTRODUCTION.....</b>	<b>32</b>
<b>1. DEVELOPPEMENT DE NOUVEAUX CODES DE TRANSPORT DU RADON DANS LA GEOSPHERE (TOUGH2/EOS7RN ET T2RN).....</b>	<b>34</b>
Abstract .....	34
<b>1.1 Introduction.....</b>	<b>34</b>
<b>1.2 Processus de transport du radon en milieu poreux.....</b>	<b>35</b>
<b>1.3 Le code TOUGH2/EOS7Rn (architecture) .....</b>	<b>35</b>
1.3.1 Formulation mathématique .....	36
1.3.2 Propriétés de transfert du radon.....	39
<b>1.4 Le code T2Rn .....</b>	<b>45</b>
1.4.1 Description générale.....	45
1.4.2 Module plante .....	46
1.4.3 Module sol.....	49
<b>1.5 Vérification numérique.....</b>	<b>49</b>
1.5.1 Modèles 1D stationnaires de transport du radon dans des colonnes verticales homogènes et stratifiées .....	50
1.5.2 Modèle 1D transitoire de transport du radon dans une colonne verticale bicouche .....	55
1.5.3 Modèles 1D transitoires en milieu géothermique (benchmark avec le code EOSN).....	60
<b>1.6 Conclusion .....</b>	<b>63</b>
<b>2. ETUDE DE TRANSPORT DU RADON DANS UN SITE DE STOCKAGE DE RESIDUS MINIERS D'URANIUM VERS L'ATMOSPHERE.....</b>	<b>66</b>
Abstract .....	66
<b>2.1 Introduction et revue synthétique .....</b>	<b>66</b>
<b>2.2 Site de Lavaugrasse - domaine de la stalle – protocole expérimental .....</b>	<b>67</b>

<b>2.3</b>	<b>Simulation de transport du radon dans la stalle : TRACI vs T2Rn vs expérience .....</b>	<b>68</b>
2.3.1	Simulation de l'écoulement de l'eau (degré de saturation en eau) .....	70
2.3.2	Simulation de la concentration en radon dans les couches RMU et MC de la stalle.....	71
2.3.3	Simulation de flux d'exhalation du radon à la surface de la couverture MC.....	73
<b>2.4</b>	<b>Conclusion .....</b>	<b>75</b>
<b>3.</b>	<b>ETUDE DE TRANSPORT DU RADON A L'INTERFACE SOL-BATIMENT .....</b>	<b>79</b>
	<b>Abstract .....</b>	<b>79</b>
<b>3.1</b>	<b>Introduction.....</b>	<b>79</b>
<b>3.2</b>	<b>Modèle d'une habitation construite partiellement sur terre-plein et sur cave.....</b>	<b>81</b>
3.2.1	L'habitation et son instrumentation.....	81
3.2.2	Domaine d'étude .....	87
3.2.3	Modèle de transport du radon dans le sol et les matériaux de la fondation .....	88
3.2.4	Modèles de transport du radon dans la cave de l'habitation.....	91
3.2.5	Maillage du domaine modélisé .....	91
3.2.6	Etude en régime stationnaire .....	92
3.2.7	Etude du régime transitoire.....	98
3.2.8	Etude de mitigation du radon dans la cave de la maison.....	106
3.2.9	Conclusion .....	111
<b>3.3</b>	<b>Modèle d'un bâtiment construit sur une dalle portée sur terre-plein .....</b>	<b>112</b>
3.3.1	Modèles analytiques et semi-empiriques MA de CSTB .....	113
3.3.2	Géométrie – hypothèses - paramètres.....	113
3.3.3	Etude comparative entre T2Rn et MA pour différents scénarios de paramètres .....	116
3.3.4	Conclusion .....	120
<b>3.4</b>	<b>Modèle d'une habitation construite sur terre-plein.....</b>	<b>120</b>
3.4.1	L'habitation et son instrumentation.....	120
3.4.2	Modèle de transport du radon à l'interface sol/bâtiment .....	121
3.4.3	Conclusion .....	124
<b>4.</b>	<b>ETUDE DE L'INFLUENCE DES CAVITES SOUTERRAINES NATURELLES KARSTIQUES SUR LE POTENTIEL RADON GEOGENIQUE.....</b>	<b>126</b>
	<b>Abstract .....</b>	<b>126</b>
<b>4.1</b>	<b>Introduction.....</b>	<b>126</b>
<b>4.2</b>	<b>Systèmes karstiques en Franche-Comté et choix du domaine d'étude.....</b>	<b>128</b>
4.2.1	Contexte géologique local .....	128
4.2.2	Le radon en Franche-Comté .....	130
4.2.3	Site d'étude : système karstique de Fourbanne .....	131
<b>4.3</b>	<b>Instrumentation du site de Fourbanne et analyse des résultats de mesure .....</b>	<b>134</b>
4.3.1	Mesures des propriétés physiques et radiologiques des sols .....	134
4.3.2	Mesures du radon dans les sols.....	138
4.3.3	Mesures du radon dans les cavités souterraines.....	142
4.3.4	Données météorologiques .....	146

4.3.5	Mesures des propriétés physico-chimiques de l'eau de la rivière souterraine d'En Versenne.....	147
<b>4.4</b>	<b>Traitement statistique des séries de mesures temporelles - étude de corrélations entre paramètres</b>	<b>150</b>
4.4.1	Période longue du 28 octobre 2015 au 6 décembre 2016 .....	150
4.4.2	Période courte d'intérêt du 20 avril au 25 mai 2016.....	154
4.4.3	Conclusion .....	156
<b>4.5</b>	<b>Modèle de transport du radon en milieu karstique .....</b>	<b>156</b>
4.5.1	Approche développée dans la présente étude.....	158
4.5.2	Domaine modélisé.....	160
<b>4.6</b>	<b>Résultats préliminaires des simulations.....</b>	<b>164</b>
4.6.1	Influence de variations météorologiques et des activités massiques du Ra-226 .....	165
4.6.2	Influence de la pression de l'air dans la cavité .....	166
<b>4.7</b>	<b>Conclusion .....</b>	<b>170</b>
<b>5.</b>	<b>PRODUCTION SCIENTIFIQUE ASSOCIEE.....</b>	<b>171</b>
<b>PARTIE II - AMELIORATION DES MODELES DIPHASIQUES DE TRANSPORT DE L'HYDROGENE DANS UN STOCKAGE GEOLOGIQUE PROFOND DE DECHETS RADIOACTIFS.....</b>		
<b>174</b>		
<b>INTRODUCTION.....</b>		
<b>176</b>		
<b>6. PRESSION D'ENTREE DE GAZ DANS UN ECOULEMENT DIPHASIQUE LIQUIDE-GAZ EN MILIEU POREUX .....</b>		
<b>180</b>		
<b>Abstract .....</b>		
<b>180</b>		
<b>6.1</b>	<b>Modèle de propriétés hydrodynamiques VGMPE .....</b>	<b>180</b>
<b>6.2</b>	<b>Méthodes d'optimisation des paramètres du modèle VGMPE.....</b>	<b>182</b>
6.2.1	Optimisation mono-objectif .....	182
6.2.2	Optimisation multi-objectif .....	183
<b>6.3</b>	<b>Implémentation du modèle VGMPE dans TOUGH - Vérification numérique .....</b>	<b>184</b>
6.3.1	Méthode $P_c$ : nouvelles variables primaires (PCM) .....	184
6.3.2	Méthode $S_g$ : prise en compte de la pression d'entrée dans l'équilibre thermodynamique (SGM)..	185
<b>6.4</b>	<b>Expérience numérique d'ascension capillaire de l'eau dans une colonne d'argile verticale (Vogel et al., 2001) .....</b>	<b>186</b>
<b>6.5</b>	<b>Validation expérimentale sur l'expérience in-situ PGZ1-GAZ .....</b>	<b>188</b>
6.5.1	Protocole expérimental .....	189
6.5.2	Le modèle mathématique .....	190
6.5.3	Résultats des simulations PGZ1-GAZ .....	193
<b>6.6</b>	<b>Conclusion .....</b>	<b>196</b>

<b>7. L'HYSTERESIS EN MILIEU DIPHASIQUE .....</b>	<b>199</b>
<b>Abstract .....</b>	<b>199</b>
<b>7.1 Revue synthétique des modèles théoriques choisis .....</b>	<b>199</b>
7.1.1 Modèles empiriques sans piégeage de la phase non mouillante .....	199
7.1.2 Modèles avec piégeage de la phase non-mouillante .....	201
<b>7.2 Modèles théoriques versus données mesurées pour différents milieux poreux .....</b>	<b>204</b>
<b>7.3 Modélisation de l'expérience de laboratoire de Trevizan et al. (2014).....</b>	<b>207</b>
<b>7.4 Conclusion .....</b>	<b>214</b>
<b>8. TRANSPORT DE L'HYDROGENE A DIFFERENTES ECHELLES SPATIALES.....</b>	<b>216</b>
<b>Abstract .....</b>	<b>216</b>
<b>8.1 Introduction.....</b>	<b>216</b>
8.1.1 Installation Cigéo .....	216
8.1.2 Problématique et démarche scientifique .....	222
<b>8.2 Echelle de l'alvéole .....</b>	<b>223</b>
8.2.1 Benchmark sur le modèle 2D axisymétrique de FORGE-2013.....	223
8.2.2 Paramétrisation $P_{c,e} \neq 0$ dans le modèle d'alvéole 2D axisymétrique de FORGE-2013 .....	228
8.2.3 Conclusion .....	230
<b>8.3 Echelle d'un module à plusieurs alvéoles.....</b>	<b>231</b>
8.3.1 Introduction.....	231
8.3.2 Benchmark sur le modèle 3D du module de FORGE-2013 .....	232
8.3.3 Paramétrisation $P_{c,e} \neq 0$ dans le modèle 3D de FORGE-2013 .....	241
8.3.4 Conclusion .....	245
<b>8.4 Echelle de l'installation à plusieurs modules (Modèle simplifié de Cigéo).....</b>	<b>246</b>
8.4.1 Modèle 3D de Cigéo simplifié.....	246
8.4.2 Scénarios de calcul de l'effet piston du gaz dans la galerie principale .....	249
8.4.3 Conclusion .....	258
<b>9. PRODUCTION SCIENTIFIQUE ASSOCIEE.....</b>	<b>259</b>
<b>PARTIE III - PERSPECTIVES DE RECHERCHE.....</b>	<b>262</b>
<b>INTRODUCTION.....</b>	<b>264</b>
<b>10. PERSPECTIVES SUR LES PROJETS EN COURS SUR LA THEMATIQUE « GAZ DANS CIGEO » .....</b>	<b>264</b>
<b>10.1 Projet EURAD 2019-2024 – Evaluation de la pression et flux de gaz au sein d'un module générique 3D (benchmark WP GAS – Task 4).....</b>	<b>265</b>
10.1.1 Combinaison de la pression d'entrée capillaire et de l'hystérésis .....	266
10.1.2 Terme source de l'hydrogène .....	267

10.1.3	Diffusion de l'hydrogène dans le COx .....	267
10.1.4	Etude de maillage et des schémas numériques .....	268
<b>10.2</b>	<b>Projet de la thèse 2021-2024 – Evaluation des incertitudes dues aux hétérogénéités spatiales et aux paramètres inconnus dans les modèles couplés hydromécaniques de migration de H<sub>2</sub> au sein d'une installation de stockage géologique profond de déchets radioactifs .....</b>	<b>269</b>
10.2.1	Couplage hydromécanique (HM) élastique avec rétroactions.....	270
10.2.2	Etude des incertitudes dans les modèles .....	270
<b>10.3</b>	<b>Divers .....</b>	<b>272</b>
10.3.1	Dissolution/volatilisation de l'hydrogène .....	272
10.3.2	Présence initiale de l'air et étude de transport des radionucléides.....	272
10.3.3	Poro-élasto-plasticité, microfissuration et fracturation hydraulique.....	273
<b>11.</b>	<b>PERSPECTIVES SUR LES PROJETS EN COURS SUR LA THEMATIQUE « RADON »</b>	<b>274</b>
11.1	Evaluation de l'influence potentielle de sources anthropiques (IRSN-CSTB-DGPR) .....	274
11.2	Etude de l'influence des karsts sur le potentiel radon des terrains (projet RadoNorm) .....	276
11.3	Divers (hystérésis et déformations du RMU ; potentiel radon du sol-bâtiment) .....	277
<b>12.</b>	<b>AUTRES PROBLEMES SCIENTIFIQUES NON ENCORE RESOLUS .....</b>	<b>277</b>
	<b>CONCLUSION GENERALE.....</b>	<b>281</b>
	<b>RÉFÉRENCES.....</b>	<b>289</b>
	<b>ANNEXES .....</b>	<b>305</b>
	<b>ANNEXE A : APPAREILS DE MESURE DES PROPRIETES PHYSIQUES ET RADIOLOGIQUES DES SOLS .....</b>	<b>306</b>
A.1	Principe de la méthode de mesure de la perméabilité à l'air des sols par l'appareil RADON-JOK .....	306
A.2	Principe de la méthode de mesure de flux surfacique d'exhalation du radon par la méthode « d'accumulation » (norme NF EN ISO 11665-7) .....	306
A.3	Principe de la méthode de mesure ponctuelle de l'activité volumique du radon-222 dans l'air du sol ...	307
A.4	Principe de mesure en continu de l'activité volumique du radon-222 dans l'air du sol par la sonde BMC2 .....	308



## Introduction générale





## Thématique « radon »

Le radon ( $^{222}\text{Rn}$ ) est un gaz radioactif naturel possédant un temps de demi-vie de 3.8 jours. Il est produit par désintégration du radium  $^{226}\text{Ra}$  qui est également un élément de la série de désintégration de l'uranium  $^{238}\text{U}$ . Il se produit naturellement en faibles concentrations dans tous les sols ( $^{226}\text{Ra} \sim 0.1$  à  $10$  Bq/kg), et en fortes concentrations dans les granites, les shales et les phosphates ( $^{226}\text{Ra} \sim 10$  à  $100$  Bq/kg) qui possèdent des grandes concentrations en uranium. Dans les minerais d'uranium et les résidus issus de leur traitement, où l'activité massique en  $^{226}\text{Ra}$  est très élevée ( $^{226}\text{Ra} \sim 10000$  to  $100000$  Bq/kg), les concentrations en radon sont très élevées et peuvent atteindre des dizaines à des centaines de millions Bq/m<sup>3</sup>.

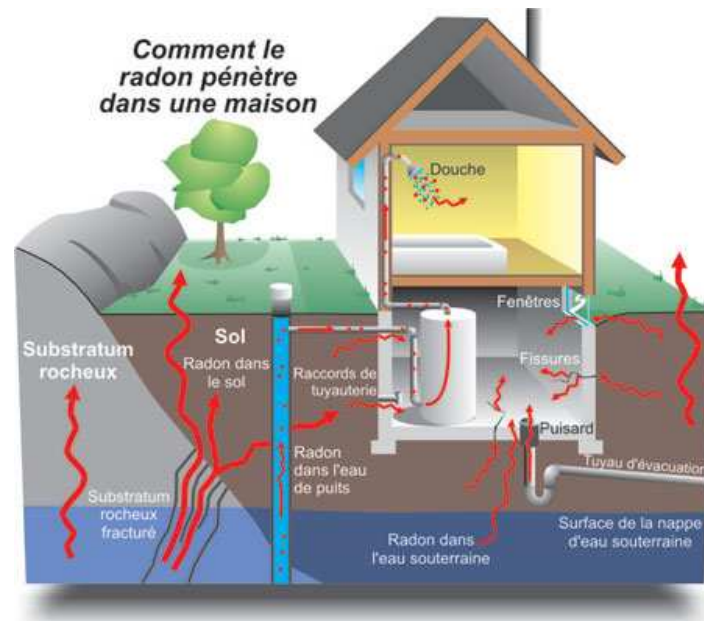
Le radon représente la part la plus importante de notre moyenne annuelle de dose de radiation. L'inhalation du radon et de ses descendants constituent un risque sanitaire pour l'Homme. Le risque n'est pas lié au radon lui-même qui, une fois inhalé, est presque entièrement réexhalé mais à ses descendants particuliers à vie courte ( $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ), qui se déposent le long des voies respiratoires. En effet, la particule  $\alpha$  ou  $\beta$  émise lors de leur désintégration peut endommager les cellules avoisinant le dépôt. Son impact le plus important se produit lorsqu'il est confiné (emprisonné) dans les bâtiments et les cavités souterraines. Dans les cavités souterraines et les mines aérées, ou dans des maisons mal aérées, la concentration en radon peut atteindre plusieurs kBq/m<sup>3</sup>, mais peut être beaucoup plus élevée dans des contextes miniers (e.g.,  $1$  MBq/m<sup>3</sup> dans Gillmore et al., 2001). Les études réalisées sur des cohortes de mineurs d'uranium ainsi que l'observation directe à partir des individus exposés au radon dans leurs maisons ont conclu à un excès de cancer pulmonaire. Les résultats de ces études épidémiologiques ont conduit depuis 1987 le Centre International de Recherche sur le Cancer de l'Organisation Mondiale de la Santé à classer le radon comme cancérigène pulmonaire. L'exposition au radon augmente le risque du cancer des poumons et est à l'origine de 5 to 12 % (approximativement) de morts par le cancer des poumons en France chaque année (Catelinois et al., 2007), selon les études réalisées par l'institut de veille sanitaire (InVS).

Etant un gaz rare, le radon migre souvent librement à travers les failles (précurseur sismique) et les sols/roches fracturés, et peut être emmagasiné (confiné) dans les eaux souterraines et les cavités, ou remonter vers l'atmosphère. Dans les bâtiments, comme montré dans l'exemple de la Figure 0-1 pour une maison construite sur une cave, le radon peut pénétrer par différentes voies de transfert sous forme dissoute dans l'eau et/ou sous forme gazeuse.

Ainsi aujourd'hui, est-il nécessaire d'étudier les zones dans lesquelles des concentrations de radon assez élevées peuvent être observées. C'est le cas, par exemple, des atmosphères confinées que l'on trouve dans certaines habitations construites sur des roches granitiques et/ou des sols contaminés par des résidus miniers. C'est aussi le cas des sites de stockage de résidus issus du traitement des minerais d'uranium.

La compréhension des phénomènes transitoires de transport du radon depuis la géosphère vers la surface du sol est très complexe; elle nécessite une description détaillée de la nature tridimensionnelle des écoulements et des transferts, l'acquisition de données expérimentales nécessaires pour une bonne connaissance des propriétés de transfert du milieu géologique étudié (propriétés hydrodynamiques des sols et/ou des roches fracturées non saturées, et les propriétés du terme source du radon, sa diffusion en milieu non-saturé et sa solubilité dans la phase liquide; souvent hétérogènes) et des conditions météorologiques qui règnent au voisinage d'un tel milieu. La présence de discontinuités hydrologiques, telles que les cavités souterraines et les failles, complique d'avantage le problème vu la difficulté de la caractérisation de leurs propriétés de circulation des fluides. En présence d'un bâtiment en surface, le problème se complique encore plus, puisqu'il faudra également acquérir les connaissances des propriétés de transfert à l'interface sol-fondation d'un bâtiment ainsi que celles de la structure du bâtiment lui-même et le mode de vie des habitants au sein de ce bâtiment, qui sont à l'origine de sa dépressurisation qui favorise l'entrée du radon à travers ses ouvertures.

Afin d'exercer ses missions d'expertise et d'accompagnement des pouvoirs publics (ASN, DHUP, DGS, DGT...) dans la gestion du risque relatif au radon, il est nécessaire pour l'IRSN de s'appuyer sur des expérimentations et des outils de modélisation pour comprendre les phénomènes de transfert du radon, depuis sa source (le sol/sous-sol, milieux karstique et minier) vers les lieux d'exposition (habitations, lieux de travail...) ou vers l'environnement extérieur.



**Figure 0-1 – Schématisation de la migration du radon dans le sol/sous-sol sous forme liquide et gazeuse au voisinage d'une maison avec cave ainsi que les différentes sources de pénétration du radon dans la maison (Ressources santé Canada).**

Malgré les avancées métrologiques réalisées au sein de l'IRSN depuis le début des années 80 pour le mesurage de concentration et de flux de radon (dans l'air du sol, dans l'air atmosphérique des bâtiments et des cavités souterraines), le développement d'un code de calcul robuste permettant de résoudre l'ensemble des modèles mathématiques décrivant les phénomènes transitoires de transport du radon dans les différents contextes cités plus haut s'avéra nécessaire (Saâdi, 2017a).

Les travaux de recherche que j'ai dirigés sur la thématique « radon », en lien avec la problématique de transport du radon depuis des milieux poreux saturés-non saturés à radioactivité naturelle (e.g., sols, roches) ou renforcée (sols contaminés par des résidus miniers) vers les cavités souterraines et les bâtiments à leur aplomb, ou depuis les résidus miniers dans les sites de stockage vers l'atmosphère prétendent apporter des éléments de réponse à trois enjeux importants pour la gestion du risque relatif au radon et la protection contre les rayonnements ionisants, à savoir :

- Dans un site de stockage de surface des déchets radioactifs (résidus) issus de traitement des minerais d'uranium, les propriétés de transfert de la couverture (stérile minier) et du résidu minier sont-elles suffisamment connues pour expliquer les flux transitoires observés en surface ? Quelles sont les améliorations à apporter aux modèles diphasiques de transport du radon pour estimer ces flux ?
- Peut-on, à travers l'expérimentation et la modélisation, quantifier les voies préférentielles de transfert du radon vers un bâtiment connaissant les conditions climatiques qui règnent en surface ? Quel est le modèle adéquat permettant d'estimer le flux et la concentration du radon observés dans un bâtiment en régime d'écoulement transitoire ? Comment la modélisation peut-elle servir à étudier les méthodes de mitigation du radon dans un bâtiment tout en minimisant l'énergie d'extraction du radon à partir du sol avoisinant ?
- Quelle est l'origine du flux de radon observé à la surface du sol dans un réseau karstique ? Est-il dû à l'émanation du radon du sol en surface ou à la remontée du radon depuis les cavités karstiques à travers les fractures de la roche vers la surface ? Comment peut-on améliorer les modèles de migration du radon dans le système cavité-roche-sols ?

En avril 2010, j'ai intégré l'IRSN et j'ai pu durant 7 ans conduire des programmes de recherche qui avaient pour but principalement de répondre à ces difficultés qui faisaient écho aux enjeux de la radioprotection préalablement décrits.

Dans le présent manuscrit j'ai retracé les activités de recherche majeures que j'ai pu réaliser sur cette thématique. Ces activités s'organisent autour de quatre chapitres principaux :

- **Le premier chapitre** décrit le développement mathématique des nouveaux codes TOUGH2/EOS7Rn et T2Rn, qui ont servi pour réaliser l'ensemble des études décrites dans les chapitres qui suivent ;
- **Le second chapitre** traite le problème de transport du radon dans un site de stockage de résidus miniers (RMU) couverts par des stériles miniers vers l'atmosphère, à travers l'exemple d'une stalle qui a été installée et instrumentée entre 1997 et 2001 auprès du site de stockage Lavaugrasse (87) situé en Haute Vienne (France). Il synthétise les travaux de recherche expérimentaux et de modélisation numérique portant sur l'étude des phénomènes transitoires de transport du radon depuis les RMU jusqu'en surface de la couverture (stériles miniers), en considérant les conditions météorologiques qui règnent en surface. Ces travaux de recherche avaient pour but d'acquérir des connaissances sur les propriétés de transfert du radon de ces matériaux, d'identifier les mécanismes prépondérants qui sont à l'origine des flux de radon importants mesurés en surface à travers la modélisation numérique (codes TOUGH2/EOS7Rn et T2Rn), et comment peut-on améliorer cette modélisation ;
- **Le troisième chapitre** synthétise les travaux de recherche qui m'ont conduit à la compréhension des phénomènes transitoires de transfert du radon à l'interface sol/bâtiment à travers la comparaison entre les modèles numériques et les mesures de flux et de concentration en radon dans des habitations instrumentées et expertisées par l'IRSN. La comparaison modèle-expérience repose sur une optimisation d'un nombre limité de paramètres du modèle, considérés comme inconnus et pertinents, tout en conservant leur sens physique par rapport à ce qui est souvent observé dans les habitations étudiées par la communauté internationale. Ces travaux visent également à identifier les bonnes pratiques de mitigation du radon du sol permettant d'améliorer la qualité de l'air au sein des habitations ;
- **Le quatrième chapitre** décrit un cas d'étude de transport de radon dans un système karstique (site de Fourbanne (25) en région de Franche-Comté) englobant sol - sous-sol - roche- vide karstique. L'étude consiste en un volet expérimental et un volet modélisation. Le premier volet décrira la méthodologie suivie pour la mesure des flux et des concentrations en radon dans les sols et les cavités souterraines, et la mesure des propriétés (physiques, hydrodynamiques et du terme source du radon) des sols le long du réseau karstique étudié, ainsi que l'interprétation de leur variabilité spatio-temporelle; et le second volet décrira l'approche physique et théorique simplifiée choisie pour décrire le transport du radon à l'interface roche-cavité souterraine et qui a permis d'apporter quelques éléments de réponse quant à l'origine des concentrations en radon observées dans le premier mètre de sol au-dessous de la surface d'une doline située à l'aplomb de la cavité.

Les études décrites dans les chapitres 3 et 4 consistent en la simplification des systèmes modélisés et notamment, au recours à l'utilisation de propriétés homogénéisées des interfaces entre des matériaux poreux à perméabilités très contrastées, en particulier celles souvent rencontrées entre milieux poreux et milieux libres (e.g., sol-fissure, sol-cave, roche-cavité). Ces interfaces ou discontinuités sont souvent à l'origine de problèmes de non-convergence de la solution numérique des EDPs non linéaires et couplées lorsque sujettes à des conditions aux limites de Dirichlet (pression) ou de Newman (flux) dépendantes du temps.

Les perspectives concernant cette thématique seront décrites dans la partie III « Perspectives de recherche » afin de cibler les nouveaux axes de recherche permettant d'améliorer les connaissances des transferts du radon depuis la géosphère vers l'environnement naturel et l'habitat.

### Thématique « GAZ dans Cigéo »

Plusieurs programmes internationaux prévoient d'intégrer le stockage des déchets radioactifs en couches géologiques profondes. Il est considéré par plusieurs acteurs comme la solution de référence pour la gestion des déchets à haute activité (HA) et à moyenne activité et à vie longue (MAVL). Ces déchets résultent essentiellement du traitement des combustibles usés (gaines des combustibles usés, boues issues du traitement...) ; ils sont aussi issus de la maintenance des installations nucléaires.

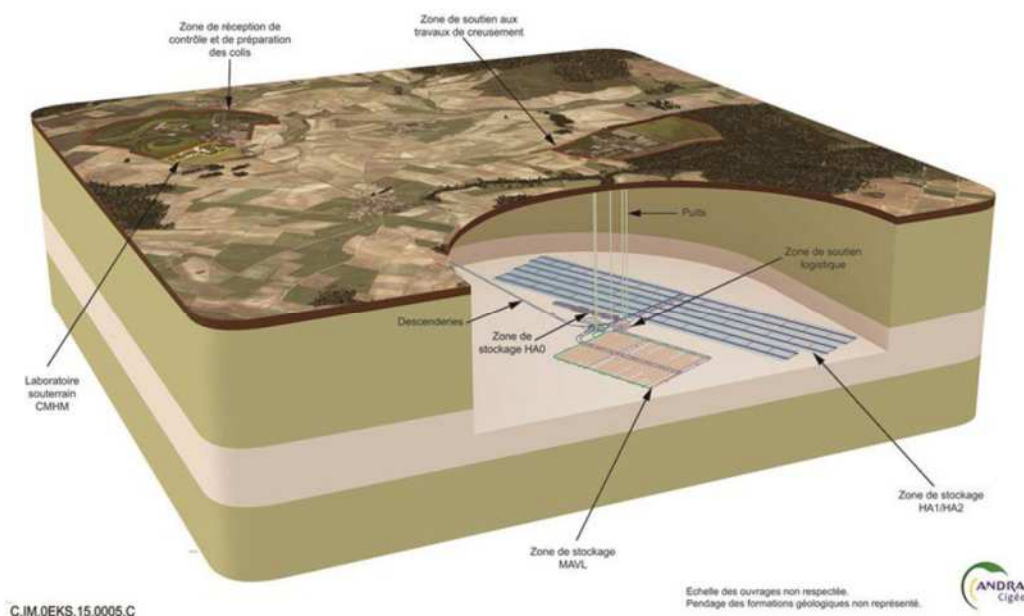
L'agence pour l'énergie nucléaire (AEN), l'organisation de coopération et de développement économiques (OCDE), l'agence internationale de l'énergie atomique (AIEA) et la Commission européenne (CE) sont les

principaux acteurs qui managent les efforts de recherche et le partage d'expériences au niveau international. Les pays les plus présents sont les pays ayant les parcs électronucléaires les plus importants, dont la **France**.

Les stratégies adoptées ainsi que le degré d'avancement des programmes en vue de l'ouverture d'un stockage en couche géologique profonde varient d'un pays à l'autre. Les études et recherche sont principalement centrées autour de trois types de formation géologiques : le granite ; les formations sédimentaires, en particulier les couches d'argile ; et les dômes de sel.

La France est le pays qui possède des programmes de recherche de site et de conception d'un stockage à des stades plus avancés que d'autres pays. A ce jour, ces programmes sont essentiellement orientés vers l'enfouissement en couche géologique argileuse profonde pour le stockage des déchets radioactifs HA et MAVL. Le futur projet, nommé **Cigéo**, prévoit le creusement, à environ 500 m de profondeur, de galeries d'accès et d'alvéoles de stockage pour accueillir les colis de déchets radioactifs (Figure 0-2). L'objectif à long terme est d'isoler ces matières dangereuses de l'homme et de la biosphère grâce aux propriétés de confinement et de rétention de la roche argileuse du Callovo-Oxfordien (COx) qui est très peu perméable (perméabilité de l'ordre de  $10^{-20}$  –  $10^{-21}$  m<sup>2</sup>). A priori l'architecture proposée par l'exploitant (ANDRA) prévoit l'incorporation de volumes importants de matériaux d'origine anthropique au contact avec la roche hôte pour le scellement des galeries, principalement le ciment, les noyaux en argile gonflante (la bentonite) et les métaux à base d'acier. Les matériaux cimentaires seraient utilisés pour construire les revêtements des galeries et des alvéoles MAVL, ainsi que les massifs d'appui des scellements, permettant le confinement mécanique des noyaux en argile gonflante. Les aciers seraient quant à eux utilisés dans les alvéoles de déchets HA, les aciers au carbone serviraient pour le chemisage de l'alvéole ainsi que pour le conteneur, alors que les aciers inoxydables composent aujourd'hui l'enveloppe du colis primaire.

Après fermeture des alvéoles et des galeries, une série de transitoires de nature hydrique, chimique, thermique ou encore biologique viendra mettre à l'épreuve la durabilité de ces composants durant la vie du stockage. En effet, la resaturation en eau induira des perturbations physico-chimiques entre les différents composants pouvant compromettre la fonction de sûreté de certaines barrières. La variation de température liée à l'exothermicité de certains colis de déchets, les gaz de radiolyse, les produits chimiques contenus dans les colis tels les sels concentrés, l'irradiation, ou encore l'activité bactérienne, sont autant de paramètres plus ou moins transitoires, qui influenceront potentiellement sur la tenue physique, chimique et mécanique des matériaux anthropiques et naturels.



**Figure 0-2- Vue aérienne du futur projet d'installation Cigéo à Bure (IRSN, 2017 d'après ANDRA – projet Cigéo).**

Les composants métalliques à base d'acier, quant à eux, seront exposés à une corrosion en milieu anaérobie et pourront générer des quantités importantes d'hydrogène. L'accumulation d'une partie de cette phase gazeuse et sa montée en pression dans un réseau de galeries remblayées et scellées, durant la phase post-fermeture de

l'installation, pourrait conduire à un dépassement du seuil de pression d'entrée de gaz dans certains matériaux composant le stockage (y compris la roche hôte), et à un écoulement diphasique (liquide - gaz) au sein de ces matériaux. Cet écoulement pourrait diminuer l'efficacité de confinement du stockage en créant des perturbations hydromécaniques et en modifiant le transport de radionucléides, l'eau étant l'agent principal de transport convectif de contaminants (radionucléides) en milieu poreux.

Pour progresser dans ce projet, des laboratoires de recherche souterrains ont été créés (e.g., laboratoire souterrain situé à 500 m de profondeur, à Bure dans La Meuse/Haute Marne, géré par l'ANDRA), avec pour objectif de développer des connaissances et valider des méthodes et des technologies à portée relativement générale sur un type de roche donné, soit de caractériser un site spécifique dans le but d'évaluer la faisabilité d'une installation de stockage.

Dans le cadre de son expertise de la sûreté d'une telle installation, l'IRSN évalue les données présentées par les exploitants dans leurs dossiers de sûreté. Ces données variées comportent diverses hypothèses de comportement des composants de l'installation et conditionnent l'amplitude des pressions d'hydrogène produit au niveau des alvéoles, ainsi que ses voies de transfert et leur influence sur (i) les temps de désaturation et de re-saturation de la roche hôte et des matériaux ouvragés de scellement, (ii) la modification de leurs propriétés mécaniques (fissuration), et (iii) le transport des radionucléides, notamment par l'effet piston vers l'exutoire du site.

Pour réaliser cette évaluation de manière indépendante, l'IRSN s'appuie sur la modélisation des différentes étapes de transfert de l'hydrogène dans et au voisinage d'un ouvrage de l'installation du stockage (alvéole HA, module ou stockage dans sa totalité) réalisées avec les logiciels scientifiques qu'il développe ou qu'il contribue à développer dans le cadre de consortiums scientifiques.

L'étude de ces mécanismes complexes réunis ensemble reste encore un challenge pour l'ensemble de la communauté scientifique qui travaille sur la faisabilité de ce genre d'installation. Jusqu'à présent, les travaux de recherche que j'ai dirigés et que je dirige actuellement sont essentiellement orientés vers la thématique Hydraulique-Mécanique-Gaz (HM-Gaz). Les travaux de recherche en lien avec l'altération chimique des composants anthropiques, tels que le ciment et le noyau de l'argile gonflante (bentonite), suite à la resaturation du stockage, ainsi que les processus de transferts réactifs vers la roche hôte argileuse qu'induit cette altération et qui pourront remettre en cause les capacités de confinement et de rétention des radionucléides, ne font pas partie de cette HDR (voir thèse d'HDR de A. Dauzère, 2018). Ces travaux, prétendent apporter des éléments de réponse à certains enjeux de sûreté majeurs, à savoir :

- Les incertitudes dues au non prise en compte des phénomènes de pression d'entrée capillaire et de l'hystérésis dans les modèles de migration de l'hydrogène en milieu poreux non saturé (souvent négligés par les modèles développés par la communauté internationale) sont-elles négligeables ? Quels sont les modèles hydrodynamiques adéquats qui permettent de les modéliser correctement à partir des données expérimentales existantes ?
- Quel est le devenir des radionucléides relâchés par les alvéoles HA sur une durée de 0.1 à 1 Ma ? Est-ce que « l'effet piston » du gaz sur l'écoulement de l'eau et sur le transport de radionucléides durant ces périodes sera important et comment le quantifier à l'échelle d'une installation ?
- Les interfaces modifiées mécaniquement entre les scellements et l'EDZ de la roche hôte dans un réseau de galerie de l'installation de stockage auraient-elles un impact sur le transfert du gaz vers la sortie de la galerie principale (puits et descenderies) ? Remettent-elles en cause les matériaux actuellement destinés pour le scellement des galeries ?
- Comment étudier l'impact des incertitudes dues aux paramètres inconnus des modèles de migration du gaz sur les flux et les pressions de gaz calculés par ces modèles ? quelles sont les méthodes de propagation d'incertitudes adéquates à adopter ?
- Quelles sont les incertitudes dues au maillage d'un domaine hétérogène tel que celui rencontré dans un module d'une installation de stockage ? quelles précisions obtient-on avec différents types de maillage (structuré, non structuré, tétraédrique, parallélépipédique...)?

Ces travaux ont débuté depuis la fin de l'année 2015 où je m'apprêtais à étudier le dossier de sûreté de Cigéo en 2016 (DOS 2016), en particulier les transferts des gaz au sein des différentes composantes de l'installation. Cette étude, qui consistait à modéliser la migration du gaz à l'échelle d'un alvéole HA et du site de stockage (quartier HA) de Cigéo, a permis de dévoiler l'importance de deux phénomènes physiques, souvent négligés, pourtant



observés expérimentalement, à savoir la pression d'entrée capillaire et l'hystérésis dans les courbes de propriétés hydrauliques (courbes de rétention et de perméabilités relatives à l'eau et au gaz), et que leur négligence pourrait amener à des calculs d'incertitudes importantes sur l'analyse de la sûreté de l'installation. J'insistais sur le fait de les implémenter dans une unique plateforme de modélisation en milieux poreux multiphasiques à base physique (e.g., TOUGH2 et TOUGH2-MP), tout en ayant un regard sur les expérimentations qui pourraient valider ces modèles. J'ai, donc, pu depuis la fin de l'année 2016 conduire des programmes de recherche (2 thèses de doctorat) qui avaient pour but principal de répondre aux difficultés rencontrées vis-à-vis les enjeux de sûreté préalablement décrits.

La thématique « GAZ dans Cigéo » décrite dans le présent manuscrit retrace les activités de recherche majeures que j'ai pu réaliser durant les sept dernières années. Elle s'organise en trois chapitres principaux :

- **Le cinquième chapitre** synthétise le travail de recherche expérimental et de modélisation numérique portant sur l'étude de transport du gaz en milieu argileux (COx) en considérant de nouveaux modèles de propriétés hydrauliques avec une pression d'entrée capillaire non nulle, et de nouvelles approches d'optimisation des paramètres de ces modèles. Ce travail de recherche avait pour but de savoir à quelle mesure ce phénomène devient très important et quelles sont les incertitudes qui lui sont associées, en faisant varier les approches expérimentales (colonne de laboratoire, expérience in situ PGZ1-GAZ) pour la validation. Cette étude a débouché sur (i) l'amélioration du code fortran RETC (van Genuchten et al., 1991) pour prendre en compte la courbe de perméabilité relative au gaz dans une optimisation mono-objective, et le développement d'un code d'optimisation multi-objectif de paramètres ; (ii) le développement des deux méthodes numériques, leur implémentation dans les plateformes TOUGH2 et TOUGH2-MP, et leur vérification numérique ;
- **Le sixième chapitre** présente dans un premier temps, un état de l'art sur les modèles d'hystérésis existant et connus dans la littérature, et leur ajustement sur les courbes de rétention mesurées (en drainage et en imbibition) sur différents matériaux de barrières ouvragées (CEM I, CEM V, bentonite), sur la roche hôte COx de Cigéo, et sur un sable. Cela afin de choisir le modèle le plus simple et qui donne les meilleurs résultats. Dans un second temps, après implémentation de ces modèles dans TOUGH2, l'importance du phénomène d'hystérésis et du piégeage de gaz a été démontrée à travers la simulation numérique d'une expérience de laboratoire d'injection d'un fluide non mouillant, émulant le dioxyde de carbone supercritique (Soltrol-220), dans un réservoir initialement saturé par un fluide mouillant (eau + glycérol). Cette étude a permis de construire une base de données importante sur les propriétés hydrauliques des barrières ouvragées de scellement et le développement de scripts python pour l'analyse théorique de ces données par différents modèles d'hystérésis.
- **Le septième chapitre** consiste à étudier les phénomènes du transport de gaz dans les différentes composantes du stockage Cigéo (alvéole, module, site) durant la période de post-fermeture. Dans un premier temps, la prise en compte d'une pression d'entrée capillaire non nulle dans les propriétés des matériaux constituant un alvéole HA et un module d'une centaine d'alvéoles HA est démontrée à travers deux exemples de modèles de benchmarks proposés dans le cadre du projet FORGE (Wendling et al., 2014, 2019). Le calcul à l'échelle du module a été simplifié moyennant une homogénéisation des interfaces centimétriques scellement/roche (mécaniquement modifiées) avec les matériaux adjacents (EDZ, COx). Dans un second temps, des simulations numériques à l'échelle du site de stockage Cigéo, en considérant *a priori* une pression d'entrée capillaire nulle et une simplification du système modèle (réduction de la géométrie du quartier HA de Cigéo à sa galerie principale), ont été présentées pour étudier l'effet piston du gaz sur l'écoulement de l'eau dans le réseau de galeries remblayées au voisinage du puits.

D'autres phénomènes importants peuvent avoir un impact sur les transferts du gaz au sein de l'installation et doivent être également étudiés. Il s'agit de la dépendance du terme source d'hydrogène en la saturation en eau et de la mécanique des interfaces scellements/roche (saine et fracturée). Ces phénomènes ne seront pas traités ici mais seront discutés ultérieurement dans la dernière et troisième grande partie « Perspectives de recherche » de cette HDR.

Des réflexions autour des voies à emprunter dans les projets de recherche d'étude des transferts des gaz dans Cigéo, visant à apporter des éléments de réponses aux interrogations qui restent suspendues jusqu'à nos jours, seront également discutées dans la troisième grande partie. Ces réflexions doivent nous renseigner sur les chemins où doivent être placés les efforts et les nouvelles actions à mener et qui sont jusqu'à présent jamais ou mal investigués. Les problématiques liées à l'évolution de l'architecture du projet Cigéo et aux paramètres inconnus des nouveaux modèles proposés seront également discutées.







# Partie I

- **Etude de transport du radon dans des milieux naturels et anthropiques**



## Introduction

L'étude des phénomènes de transferts du radon dans la géosphère implique différents domaines comme le génie civil, la géothermie, la sismologie, la météorologie, les sciences de l'environnement... Cela implique nécessairement la prise en compte des discontinuités hydrologiques d'origine naturelles, observées dans les roches (fractures, failles) et les bassins karstiques, ou d'origine anthropiques produits par le creusement de l'homme dans la croûte terrestre (e.g., les vides miniers) ou par le rejet de résidus miniers en surface.

Les moyens métrologiques (AlphaGuard, Robot-flux, sondes barasols...) actuels permettent de suivre parfaitement l'évolution temporelle des concentrations en radon et les flux du radon dans les sols, les roches, les bâtiments et les cavités souterraines. Cependant, pour mieux comprendre les mécanismes de transport du radon depuis le sol jusqu'au bâtiment, en présence d'une ou plusieurs cavités souterraines, la modélisation mathématique est apparue comme un complément nécessaire à l'expérimentation dans la compréhension des phénomènes physiques mis en jeu qui peuvent être observés (e.g., Améon et Marie, 2010). Mes premières réflexions autour du développement d'un tel modèle remontent à l'année 2010 où j'ai proposé une liste exhaustive de modèles de subsurface existants dans la littérature pour simuler l'écoulement diphasique eau-air et le transport du radon en milieu poreux et/ou fracturé non-saturé, et leur couplage avec les modèles à base de codes CFD d'écoulement diphasique eau-air et de transport dans les cavités souterraines (Saâdi, 2017a). En effet, je me suis rendu compte de la complexité d'un tel couplage qui nécessite le développement d'un code de calcul prenant en compte à la fois le transport du radon dans les sols, les roches fracturées, les failles et les cavités souterraines. Ce développement devient très compliqué puisqu'il faut prendre en compte la nature tridimensionnelle des transferts, les discontinuités liées à la présence d'un bâtiment en surface, ainsi que les conditions météorologiques qui règnent à la surface du sol, aux alentours du bâtiment et aux différentes entrées et sorties d'un réseau de galeries souterraines. C'est ainsi que j'ai proposé de développer le code T2Rn (version améliorée de TOUGH2/EOS7Rn) à base de la plateforme américaine TOUGH2 de LBNL (*Lawrence Berkeley National Laboratory*; Université de Berkeley en Californie), connue pour sa robustesse à modéliser les phénomènes de transport multiphasique multi-composants et non isothermes dans des milieux poreux et/ou fracturés tridimensionnels (Pruess et al., 1999), où j'ai intégré les principaux mécanismes de transport du radon dans la géosphère (**émanation, adsorption, dissolution/volatilisation, diffusion**). La particularité de ce code est que les propriétés physiques du radon sont rendues dépendantes des propriétés hydriques et thermodynamiques avec la possibilité également de modéliser les phénomènes hydrologiques de surface (infiltration, ruissellement, évapotranspiration...).

Le **chapitre 1** présente le détail des développements de codes EOS7Rn et T2Rn qui ont servi à l'ensemble des études réalisées dans les chapitres suivants. Des tests de vérification numérique de ces codes en régime d'écoulement stationnaire et transitoire, à travers la comparaison avec des solutions analytiques exactes et benchmarks avec codes (code en différences finies 1D TRACI, Ferry, 2000 ; code TOUGH2/EOSN, Shan et Pruess, 2003, 2004), étaient nécessaires pour s'assurer de l'implémentation des nouvelles propriétés physiques de transfert du radon développées (Saâdi et al., 2012 ; 2014).

Dans le **chapitre 2**, je reprends la modélisation des données issues d'une expérimentation réalisée par Ferry (2000) et Ferry et al. (2001, 2002), qui n'ont pas pu être exploitées durant cette période pour étudier le transport du radon dans une stalle (couche de stérile minier couvrant un résidu minier issu du traitement des minerais d'uranium), représentative du site de stockage Lavaugrasse (87) des résidus miniers. Cette expérimentation consiste en la mesure des variations temporelles, sur une durée de 6 mois, des flux de radon à la surface de la couverture et des concentrations en radon dans les deux couches. Elle nous a permis de valider le modèle développé à base de T2Rn et de confronter ses résultats avec un modèle à base d'un code aux différences finies 1D (Ferry, 2000) modifié. J'ai cherché à travers cette étude, de comprendre à quoi peut être due la différence entre deux modèles basés sur deux méthodes numériques différentes à travers ces données mesurées, en considérant une étude de sensibilité sur les coefficients de diffusion de radon en milieu non saturé calculés par différents modèles. Cela, afin d'identifier les avantages et les limites d'application des deux codes et d'améliorer les modèles de transport du radon dans un site de stockage de résidus miniers.

Des exemples d'étude de transport du radon depuis les sols vers des bâtiments à différentes configurations seront traités dans le **chapitre 3**. Je me suis intéressé en particulier aux problèmes des interfaces entre la fondation d'un bâtiment (murs et dalles) et le sol avec une simplification de la condition à la limite aérialique qu'exerce la dépressurisation ou la surpression du bâtiment sur le sol. L'objectif n'étant pas de modéliser le transport du radon dans le bâtiment lui-même mais de montrer qu'avec le code T2Rn uniquement, il est possible de modéliser des

problèmes de configurations de bâtiments complexes et d'estimer les flux de radon transitoires à travers les principales voies de transfert du radon à l'interface sol-fondation du bâtiment (cas de l'interface sol-cave), en considérant, bien sûr, les conditions météorologiques qui règnent aux alentours du bâtiment. Les hypothèses simplificatrices des modèles développés pour certaines configurations de bâtiments avaient pour but de contourner les problèmes numériques de convergence souvent rencontrés aux interfaces entre des matériaux à perméabilités très contrastées (i.e., interfaces sol-bâtiment) tout en préservant le sens physique des paramètres optimisés.

Dans le cadre des études menées par l'IRSN sur les transferts du radon depuis une cavité karstique jusqu'en surface (projet Franco-Suisse **JURAD-BAT** 2014-2020), je présente, dans le dernier chapitre de cette partie (**chapitre 4**), les études de recherche que j'ai entamées sur le site karstique de Fourbanne en Franche-Comté. Dans un premier temps, un volet métrologique, auquel j'ai participé et défini le protocole expérimental durant deux campagnes de mesures en 2015 et 2016 (Ielsch, Saâdi et Bertrand, 2017), est présenté. L'objectif de ce volet est de caractériser, d'une part, l'hétérogénéité des propriétés physiques et du terme source du radon des sols et des roches situés à l'aplomb du réseau karstique étudié, et d'autre part, l'activité volumique du radon dans ces sols et dans les cavités souterraines sous-jacentes. Dans un second temps, après analyse des données expérimentales, un volet modélisation, développé dans le cadre d'un post-doctorat que j'ai supervisé (Nahla Mansouri, année 2017-2018), est présenté. Il consiste en le développement et la validation expérimentale d'un modèle simplifié de transport du radon depuis la cavité vers la surface d'une zone d'étude située sur le site karstique de Fourbanne. L'objectif étant de savoir si une telle modélisation pourrait expliquer l'origine des phénomènes transitoires observés en surface, et si elle est compatible avec l'analyse ACP des corrélations temporelles entre les concentrations en radon dans le sol et dans la cavité, et les paramètres météorologiques et hydrologiques mesurés dans cette zone d'étude.

# 1. Développement de nouveaux codes de transport du radon dans la géosphère (TOUGH2/EOS7Rn et T2Rn)

## Abstract

*This Chapter presents details of theoretical and physical developments of codes EOS7Rn and T2Rn which served for all subsequent studies described in the following chapters. Numerical verification tests of these codes at steady-state and transient-state flow are also presented, in order to ensure the good implementation of the new developed physical transfer properties of radon (Saâdi et al., 2012; 2014). These tests include comparisons to exact 1D-analytical solutions and benchmarks with other codes (1D finite difference code TRACI: Ferry, 2000; module TOUGH2/EOSN for noble gases transport: Shan and Pruess, 2003, 2004)*

Ce chapitre présente le détail des développements physiques et théoriques des codes EOS7Rn et T2Rn qui ont servi pour l'ensemble des études réalisées dans les chapitres qui suivent. Des tests de vérification numérique de ces codes en régime d'écoulement stationnaire et transitoire sont également présentés, afin de s'assurer de l'implémentation des nouvelles propriétés physiques de transfert du radon développées (Saâdi et al., 2012 ; 2014). Ces tests incluent des comparaisons avec des solutions analytiques exactes et benchmarks avec codes (code en différences finies 1D TRACI, Ferry, 2000 ; code TOUGH2/EOSN, Shan et Pruess, 2003, 2004).

## 1.1 Introduction

La modélisation de transport des gaz en subsurface, mettant en jeu les phénomènes complexes se produisant au voisinage de la surface terrestre ou dans des zones non-saturées profondes, nécessite une description détaillée des caractéristiques hydrogéologiques, des processus physiques, et des propriétés thermodynamiques. Si peu de codes numériques peuvent étudier le transport des gaz dans un contexte d'écoulements non isothermes de fluides multi-phases et multi-composants dans des milieux perméables (poreux et/ou fracturés) en trois dimensions (3D), en introduisant de tels mécanismes, la plateforme numérique **TOUGH** (Acronyme de *Transport Of Unsaturated Groundwater and Heat*; Pruess, 1987, 1991; Pruess et al., 1999), basée sur ses conceptualisations et méthodologies, est convenable pour la solution des problèmes d'écoulement et de transport dans la zone non-saturée (Finsterle et al., 2008). A l'origine, cette plateforme, développée par le Lawrence Berkeley National Laboratory (LBNL, Université de Californie, Etats-Unis), a été conçue principalement pour des études de transfert dans des milieux géothermiques et dans un stockage profond des déchets radioactifs.

Le développement du modèle mathématique de transport du radon dans le continuum Bâtiment-Bassin-Géologique-Cavité souterraine (Saâdi, 2017a), a permis d'identifier la nécessité de développer un code de transport afin de résoudre ses équations à dérivées partielles. De façon plus générale, un tel code pourrait permettre de décrire le transport tridimensionnel du radon dans des milieux poreux ou fracturés non isothermes en régime transitoire de l'écoulement diphasique liquide-gaz.

A cette fin, la plateforme numérique de calcul TOUGH2<sup>2</sup>, avec l'ensemble de ces modules séparés décrivant les différentes équations d'états (EOS en anglais *Equation Of State* ; EOS# avec # = 1-5, 7-9 ; EOS7R, EWASG ; Pruess et al., 1999), paraissait la plus adaptée. En effet, certains modules permettent de modéliser l'écoulement diphasique liquide-gaz et le transport de radionucléides dans des systèmes complexes tout en préservant les applications des principes physiques de la thermodynamique dans des milieux poreux multiphasiques (changement de phase, effet thermique...).

Le module **EOS7R** (*EOS7 for Radionucléides* ; Oldenburg et Pruess, 1995) considère un système à 5 composants (eau, sel (*brine*), Rn1, Rn2, air), distribué selon l'équilibre thermodynamique local parmi deux phases (liquide, gazeuse), six paramètres thermodynamiques indépendants, ou « variables primaires », qui sont nécessaires afin de déterminer l'état thermodynamique. Dans ce système où les deux phases coexistent,

<sup>2</sup> Version 2 de TOUGH : fournie gratuitement par la NEA (*Nuclear Energy Agency*), dont la France est un pays membre, et cela, suite à une simple demande de l'IRSN. Cette version du logiciel, fournie sous forme de codes sources et d'un manuel d'utilisation, peut être utilisée pour étudier une certaine expertise ou être modifiée pour pouvoir effectuer des travaux de recherche. Ces modifications sont limitées par certains droits fixés par la communauté des développeurs du code du laboratoire LBNL de l'université de Californie à Berkeley.

uniquement trois combinaisons différentes sont possibles : phase liquide seule, phase gazeuse seule, et phases liquide et gazeuse.

Le module **EOS7Rn** (*EOS7 for Radon*), que j'ai développé, est une version de TOUGH2 inspirée de la version contenant le module EOS7R, mais à laquelle l'ensemble des propriétés physiques de transfert du radon en milieux poreux non saturés, ainsi que leur dépendance des propriétés hydrologiques et thermodynamiques, est pris en compte. Cependant, il s'est avéré que cette version 2 de TOUGH2, utilisée pour ce développement, est limitée au cas de l'écoulement et de transport dans un sol nu et n'est que partiellement adaptée à des conditions météorologiques variables en surface. Seules certaines variables atmosphériques en surface sont prises en compte (pluviométrie, pression atmosphérique, température). Les cas de l'évaporation, de l'extraction racinaire des plantes et leur transpiration, du refus d'eau et du ruissellement en surface ne sont pas pris en considération. C'est ainsi que le nouveau code **T2Rn** (*TOUGH2 for Radon*) a été développé en couplant plutôt le module EOS4<sup>3</sup> de TOUGH2 avec un modèle météorologique de surface (Braud et al., 1995 ; Braud, 1996, 2000) et en incluant les propriétés physiques de transport du radon implémentées dans le code EOS7Rn.

Dans ce qui suit, je présente le développement des codes EOS7Rn et T2Rn et leur vérification numérique par une solution analytique exacte, un benchmark avec un code existant (**TRACI** ; Ferry, 2000) et une comparaison avec des résultats de calcul par le code TOUGH2/EOSN publiés par Shan et Pruess (2003, 2004).

## 1.2 Processus de transport du radon en milieu poreux

Les principaux mécanismes gouvernant le transport multiphasique du radon en milieu poreux englobent essentiellement la **décroissance radioactive**, l'**advection** (loi de Darcy), la **diffusion** (loi de Fick), la **dissolution/volatilisation**, l'**adsorption** sur les grains solides et l'**émanation** (Rogers et Nielson 1991a, b). Ce dernier mécanisme définit la quantité de radon libérée à partir des grains solides minéraux (ayant une certaine activité massique en <sup>226</sup>Ra) et qui atteint l'espace poral. Il est décrit par un facteur ou coefficient d'émanation adimensionnel, défini comme étant le rapport du nombre d'atomes de radon parvenant dans l'espace des pores par unité de volume et de temps, sur le nombre total d'atomes de radon formés, par unité de volume et de temps. Par définition, il est compris entre 0 et 1 et est noté tout simplement **E**.

La particularité de ces phénomènes est que les paramètres des modèles qui les régissent ne sont pas souvent constants et peuvent fortement dépendre des propriétés hydrodynamiques et thermodynamiques des milieux poreux. En effet, plusieurs études ont montré que le **facteur d'émanation** d'un sol ou roche dépend de sa porosité, de sa texture (nature de la matrice solide, tailles des particules solides et des pores et de la distribution, surfacique ou homogène, du radium dans le grain) et de sa teneur en eau (Satomi et Kruger, 1982 ; Nielson et al., 1982 ; Pellegrini, 1997 ; Sasaki et al., 2004). Il est aussi dépendant de la température selon Iskandar et al. (2004). Les mécanismes de l'émanation et de transport dépendent fortement de la teneur en eau du sol. Donc, le flux d'exhalation du radon à la surface du sol est grandement affecté par les conditions météorologiques (Ferry et al., 2002). L'**adsorption** du radon à la surface des grains solides est un mécanisme dépendant de la teneur en eau et de la température (Schery et Whittlestone, 1989) ; elle peut fortement réduire le flux de migration du radon avec la diminution de la teneur en eau et de la température. La **dissolution/volatilisation** du radon dépend de la température et de la salinité également (Clever, 1979 ; Schubert et al., 2012). La **diffusion** et la **dissolution/volatilisation** du radon peuvent également fortement dépendre de la température et de la pression dans le contexte des réservoirs géothermiques (Shan et Pruess, 2003 ; 2004).

## 1.3 Le code TOUGH2/EOS7Rn (architecture)

Dans le cadre des sols contenant du radium <sup>226</sup>Ra, le module EOS7R ne prend pas précisément en compte le terme source qui génère le radon par émanation de ces sols, suite à la désintégration alpha de <sup>226</sup>Ra. Dans les sites de stockage de résidus issus de traitement des minerais d'uranium (Ferry, 2000), les activités massiques du <sup>226</sup>Ra peuvent atteindre des milliers à des dizaines de milliers de Bq/kg (e.g., stériles et résidus miniers), ce qui ne permet pas de négliger le terme d'émanation dans l'équation de transport du radon.

La seule application du module EOS7R, pour le cas du transport du radon, a été réalisée par Unger et al. (2004). Ces auteurs ont étudié le transport du radon dans un tunnel à *Yucca Mountain* aux Etats-Unis. Leur étude ne

<sup>3</sup> C'est une version modifiée du module EOS3 où seuls les composants eau et air sont considérés mais qui prend en compte l'effet « vapor pressure lowering », où la pression de la vapeur est exprimée par l'équation de Kelvin ; fonction de la température et de la pression capillaire.

considérerait pas l'apport du radon par émanation du tuf fracturé, et la concentration (ou activité volumique) du radon, mesurée à une section donnée du tunnel, était considérée comme condition limite amont pour prédire celle mesurée à une section aval du tunnel. Unger et al. (2004) ont utilisé les méthodes numériques inverses pour estimer les propriétés hydrauliques du tuf fracturé à grande échelle spatiale et ont pu ainsi établir les scénarios ou les opérations à mener pour améliorer le système de ventilation du tunnel.

A notre état de connaissance actuel aucun développement n'a été effectué dans TOUGH pour prendre en compte l'émanation du radon dans un milieu poreux. Il est donc nécessaire de procéder à une modification du code source de Pruess et al. (1999) tel qu'il est fourni par la NEA (*Nuclear Energy Agency*) en s'inspirant du module EOS7R précédemment décrit.

Dans cette section, je présente le développement d'une nouvelle version du module TOUGH2/EOS7R, nommée TOUGH2/EOS7Rn (ou EOS7Rn tout court), permettant de prendre en compte le terme de génération du radon par émanation d'un matériau poreux (sol/roche, RMU...). En effet, l'ajout de ce terme dû à la présence du radium  $^{226}\text{Ra}$  dans le sol/roche implique une modification de l'équation de transport du radon ainsi que l'implémentation de l'ensemble des propriétés physiques de transfert du radon (cf. § 1.2) dans la plateforme informatique de TOUGH2. Ainsi, les modèles mathématiques régissant ces propriétés ont été implémentées à travers quatre nouvelles routines à savoir : (i) TORTFS pour tester de nouveaux modèles de facteur de tortuosité d'un milieu poreux non saturé comme alternative à la seule formulation à base physique de Millington et Quirk (1961) (MQ) déjà implémentée dans TOUGH2. Il s'agit par exemple de la corrélation de Rogers and Nielson (1991a) (RN) développée spécifiquement pour le cas de la diffusion du radon dans la phase gazeuse d'un milieu poreux et de la loi en puissance de Buckingham (1904) (BUCK) (ii) RnHEN pour le calcul du coefficient de Henry pour la solubilité du radon dans la phase liquide en fonction de la température et de la salinité (iii) RnDIF0 pour le calcul du coefficient de diffusion du radon dans les phases liquide et gazeuse dans un milieu libre en fonction de la température et de la pression de la phase (iv) RnEMAN pour le calcul du coefficient d'émanation en fonction de la saturation en eau et de la température, et finalement (v) RnADS pour le calcul des coefficient d'adsorption entre les phases solide et gazeuse en fonction de la saturation en eau et de la température. Au sein de chacune de ces routines, il y a la possibilité de choisir entre les différentes fonctions ou ajouter de nouvelles fonctions selon le besoin de l'utilisateur.

En plus de la contrainte numérique que peut engendrer le terme de désintégration du radon (ou tout autre radionucléide d'une manière générale) dans l'équation de transport convectif et diffusif dans des milieux poreux non saturés (Oldenburg et Pruess, 1995), vient s'ajouter, celle due à la non-linéarité que présente le coefficient d'émanation en fonction du degré de saturation en eau et de la température (Nielsen et al., 1982). Pour cela un traitement numérique adapté doit être mis en place (choix d'une discrétisation temporelle explicite et/ou implicite) et vérifié afin d'éviter les problèmes d'oscillations non physiques et de violation du principe du bilan de masse qui peuvent apparaître.

Dans ce qui suit, je présente, dans un premier temps, le formalisme mathématique des équations d'écoulement et de transport de radon dans le code EOS7Rn et la discrétisation spatio-temporelle du terme source non linéaire dû à l'émanation du radon. Dans un second temps, je présente les modèles des propriétés du radon implémentées dans EOS7Rn.

### 1.3.1 Formulation mathématique

La spécificité du radon  $^{222}\text{Rn}$ , contrairement aux autres gaz nobles stables dans la nature (Shan et Pruess, 2004), est qu'il est radioactif et se désintègre avec une période de 3,82 jours. Il est issu de la famille radioactive naturelle de l'uranium  $^{238}\text{U}$  et provient essentiellement de la désintégration alpha du radium  $^{226}\text{Ra}$  (Figure 1-1). Le radium  $^{226}\text{Ra}$  est considéré uniquement présent dans la phase solide, c'est à dire que son transport dans la phase liquide n'est pas simulé. La source du radon, qui est l'activité massique du  $^{226}\text{Ra}$ , est supposée constante dans le temps du fait de la grande période de désintégration du  $^{226}\text{Ra}$  (de l'ordre de 1600 ans). Donc, les deux radionucléides Rn1 et Rn2 considérés dans le module EOS7R (cf. § 1.1) sont le radon  $^{222}\text{Rn}$  et le polonium  $^{218}\text{Po}$  (Figure 1-1). La période de désintégration du Polonium  $^{218}\text{Po}$  est prise infinie. Cela afin de désactiver l'équation de transport du  $^{218}\text{Po}$ , et de pouvoir effectuer des comparaisons avec les modèles de transport du radon existants qui supposent le radon comme étant le seul composant massique dans les deux phases liquide et gazeuse du sol (e.g., TRACI).



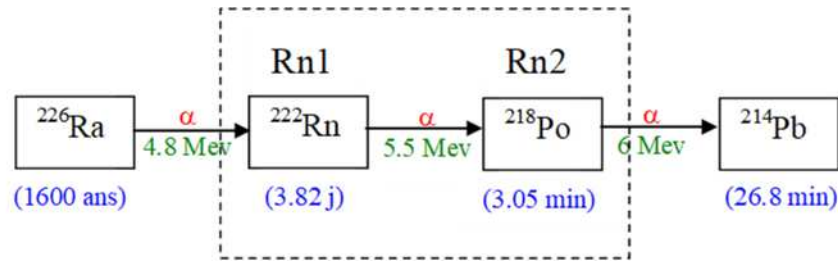


Figure 1-1- Schématisation de la chaîne de désintégration tronquée du  $^{226}\text{Ra}$  prise en compte dans le modèle de transport du radon dans TOUGH2 (chaîne issue de la désintégration de l'uranium  $^{238}\text{U}$ ).

### ➤ Equations de conservation de la masse

Les équations de conservation de la masse et de l'énergie résolues par TOUGH2 peuvent s'écrire sous la forme générale suivante :

$$(1-1) \quad \frac{d}{dt} \int_{V_i} M^{(\kappa)} dV_i = \int_{\Gamma_i} \mathbf{F}^{(\kappa)} \cdot \mathbf{n} d\Gamma_i + \int_{V_i} q^{(\kappa)} dV_i \quad \kappa = 1, \dots, NK + 1$$

Dans l'équation (1-1), l'intégration est sur un volume de contrôle (*grid block*)  $V_i$  ( $\text{m}^3$ ) limité par la surface fermée  $\Gamma_i$  ( $\text{m}^2$ ) avec le vecteur  $\vec{n}$  est la normale sortante à la surface  $\Gamma_i$ . L'indice  $\kappa = 1, \dots, NK+1$  correspond aux NK composants ou constituants du fluide en plus de la chaleur ;  $q^{(\kappa)}$  est le terme source et/ou puits (taux de production et/ou de disparition) du composant  $\kappa$  ( $\text{kg}\cdot\text{s}^{-1}$ ) ;  $M^{(\kappa)}$  est la masse de l'espèce ( $\kappa$ ) par unité de volume ( $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ ) ; et  $\mathbf{F}^{(\kappa)}$  est le terme de flux total ( $\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ). Ce dernier représente la contribution des flux d'advection et de diffusion, selon la loi de Darcy et la loi de Fick :

$$(1-2) \quad \mathbf{F}^{(\kappa)} = \sum_{\beta=g,l} \left( X_{\beta}^{(\kappa)} \rho_{\beta} \mathbf{v}_{\beta} - \phi S_{\beta} \rho_{\beta} \tau_{\beta} d_{\beta}^{(\kappa)} \nabla X_{\beta}^{(\kappa)} \right)$$

Où  $\phi$  est la porosité ;  $\tau_{\beta}$  est le facteur de tortuosité non-saturée incluant un facteur  $\tau_0$  intrinsèque au milieu poreux et un facteur  $\tau_{\beta}$  qui dépend du degré de saturation en phase  $\beta$  ( $g \equiv \text{gaz}$  et  $l \equiv \text{liquide}$ ) ;  $S_{\beta}$  ;  $\rho_{\beta}$  est la masse volumique de la phase  $\beta$  ( $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ ) ;  $d_{\beta}^{(\kappa)}$  est le coefficient de diffusion du composant  $\kappa$  dans la phase fluide  $\beta$  en milieu libre ( $\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$ ) ;  $X_{\beta}^{(\kappa)}$  est la fraction massique du composant  $\kappa$  dans la phase  $\beta$  (-) ; et  $\mathbf{v}_{\beta}$  est la vitesse de Darcy de la phase fluide  $\beta$  ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ) donnée par :

$$(1-3) \quad \mathbf{v}_{\beta} = -k \frac{k_{r\beta}}{\mu_{\beta}} (\nabla P_{\beta} - \rho_{\beta} \mathbf{g})$$

Où  $\mathbf{g}$  est le vecteur accélération de la gravité ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-2}$ ) ;  $\nabla$  est l'opérateur gradient ou vecteur nabla dans l'espace 3D ( $\text{m}^{-1}$ ) ;  $k$  est la perméabilité absolue ( $\text{m}^2$ ) ;  $k_{r\beta}$  est la perméabilité relative à la phase fluide  $\beta$  ;  $\mu_{\beta}$  est la viscosité dynamique de la phase fluide  $\beta$  ; et  $P_{\beta}$  est la pression de la phase fluide  $\beta$  (Pa) définie également comme étant la somme de la pression  $P$  (Pa) d'une phase de référence (souvent prise à la phase gazeuse) et de la pression capillaire  $P_{c\beta}$  ( $\leq 0$ ) en Pa :

$$(1-4) \quad P_{\beta} = P + P_{c\beta}$$

Pour le module EOS7Rn,  $NK = 5$  et  $\kappa \equiv$  (eau, sel (*brine*),  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{218}\text{Po}$ , air). Pour le composant radon ( $\kappa = 3 = ^{222}\text{Rn}$ ), les termes  $M^{(\kappa)}$  et  $q^{(\kappa)}$  sont données par :

$$(1-5) \quad M^{(\kappa)} = \phi \sum_{\beta=g,l} S_{\beta} \rho_{\beta} X_{\beta}^{(\kappa)} + \rho_d \rho_g Kd_g^{(\kappa)} X_g^{(\kappa)}$$

$$(1-6) \quad q^{(\kappa)} = -\lambda_{\kappa} M^{(\kappa)} + u_{\kappa} E(S_l)$$

$$(1-7) \quad u_{\kappa} = C_s^{^{226}\text{Ra}} \rho_d \left( \frac{M_{\text{Rn}}}{N_{\text{Av}}} \right) \times 10^{-3}$$

où  $\rho_d$  est la masse volumique du milieu poreux à l'état sec ( $\text{kg.m}^{-3}$ ), égale à  $(1 - \phi)\rho_s$ , avec  $\rho_s$  est la masse volumique des particules solides ou de la matrice solide ( $\text{kg.m}^{-3}$ );  $Kd_g^{(\kappa)}$  est le coefficient d'adsorption ou coefficient de distribution entre les phases gazeuse et solide ( $\text{m}^3.\text{kg}^{-1}$ );  $\lambda_{\kappa}$  est la constante de désintégration du radon ( $2.1 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ );  $C_s^{^{226}\text{Ra}}$  est l'activité massique du radium-226 dans la phase solide du milieu poreux ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ );  $M_{\text{Rn}}$  est la masse molaire du radon ( $222 \text{ g.mol}^{-1}$ );  $N_{\text{Av}}$  est le nombre d'Avogadro ( $6.0221367 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$ );  $E$  est le coefficient d'émanation (-); et  $u_{\kappa}$  est une constante ( $\text{kg.m}^{-3}.\text{s}^{-1}$ ), définie comme étant la masse totale du radon produite par unité de temps et par unité de volume du milieu à partir de la désintégration du radium-226; Elle est réduite par la valeur de  $E$  pour prendre en compte la production nette du radon libéré vers l'espace poral selon le processus d'émanation.

Comme on peut le constater à travers l'équation (1-5), j'ai utilisé la phase gazeuse ( $g$ ) comme référence pour les isothermes d'adsorption du radon, contrairement à ce qui a été proposé par Oldenburg et Pruess (1995) dans EOS7R. Autrement dit, j'ai supposé que le radon s'adsorbe essentiellement entre les phases gazeuse et solide.

Comme dans EOS7R, on suppose, sous conditions de l'équilibre thermodynamique local, que la volatilisation du radon est représentée par la loi de Henry :

$$(1-8) \quad P^{(\text{Rn})} = K_H^{(\text{Rn})} x_l^{(\text{Rn})}$$

Où  $P^{(\text{Rn})}$  est la pression partielle de Rn dans la phase gazeuse (Pa);  $x_l^{(\text{Rn})}$  est la fraction molaire du radon dissous dans la phase liquide (-); et  $K_H^{(\text{Rn})}$  est la constante ou coefficient de Henry (Pa).

### ➤ *Discrétisation spatio-temporelle*

La discrétisation spatiale des équations (1-1) par la méthode IFDM (*Integral Finite Difference Method*) en chaque élément ou volume de contrôle (*grid block*)  $V_i$  ( $\text{m}^3$ ) dans TOUGH2 s'écrit comme suit (Oldenburg et Pruess, 1995) :

$$(1-9) \quad \frac{dM_i^{(\kappa)}}{dt} = \frac{1}{V_i} \sum_j A_{ij} F_{ij}^{(\kappa)} + q_i^{(\kappa)} \quad \kappa = 1, \dots, NK + 1$$

Où, l'indice  $i=1, \dots, N$  correspond aux  $N$  éléments ayant chacun un volume  $V_i$  connecté à ses voisins de volumes  $V_j$  à travers la surface d'aire  $A_{ij}$  ( $\text{m}^2$ ).

La discrétisation du temps dans l'Eq. (1-9) s'écrit sous la forme :

$$(1-10) \quad M_i^{(\kappa)k+1,p} - M_i^{(\kappa)k} = \frac{\Delta t}{V_i} \sum_j A_{ij} F_{ij}^{(\kappa)k+1,p} - \lambda_{\kappa} \Delta t M_i^{(\kappa)k+\delta} + u_{\kappa} \Delta t E_i^{k+\vartheta}$$

Avec :

$$(1-11) \quad M_i^{(\kappa)k+\delta,p} = M_i^{(\kappa)k} + \delta (M_i^{(\kappa)k+1,p} - M_i^{(\kappa)k})$$

$$(1-12) \quad E_i^{k+\vartheta,p} = E_i^k + \vartheta (E_i^{k+1,p} - E_i^k)$$

Avec  $\Delta t$  est le pas de temps (s) ; les indices  $k$  et  $p$  désignent le pas de temps et l'itération, respectivement;  $\delta$  et  $\vartheta$  sont des paramètres poids du temps (sans dimension) pour les termes de désintégration et de l'émanation, respectivement, qui peuvent prendre les valeurs 0.5 ou 1.0 pour un schéma semi-implicite de Crank-Nicolson ou un schéma totalement implicite.

### 1.3.2 Propriétés de transfert du radon

#### ➤ Coefficient d'émanation

La routine RnEMAN calcule le coefficient d'émanation du radon dans l'équation (1-6) en fonction de la saturation en eau  $S_l$ , en utilisant le modèle linéaire largement connu de Nielson et al. (1982) :

$$(1-13) \quad E = \begin{cases} E_w S_l / S^* + E_a (1 - S_l / S^*) & \text{if } S_l \leq S^* \\ E_w & \text{elsewhere} \end{cases}$$

ou, le modèle exponentiel de Zhuo et al. (2006) :

$$(1-14) \quad E = E_a [1 + k_1 (1 - \exp(-k_2 S_l))]$$

où,  $E_w$  and  $E_a$  sont les coefficients d'émanation aux états saturé et sec du milieu poreux (-);  $S^*$  est le degré de saturation en eau minimal sur le plateau de la courbe  $E(S_l)$ ; et  $k_1$  et  $k_2$  sont des constantes qui dépendent de la texture (-).

Ces auteurs ont montré que les équations (1-13) and (1-14) décrivent remarquablement les données mesurées de l'émanation du radon pour des sols à différentes textures.

#### ➤ Coefficient d'adsorption

La routine RnADS calcule le coefficient de distribution  $Kd_g$  dans l'équation (1-5) selon le modèle empirique de Rogers et Nielson (1991b) :

$$(1-15) \quad Kd_g^{(Rn)} = Kd_g^0 \times \exp(-b S_l)$$

Où,  $Kd_g^0$  est le coefficient de distribution à l'état sec ( $m^3.kg^{-1}$ ); et  $b$  est une constante (-), qui varie généralement entre 10 and 15, mais qui peut aussi être très significative pour certains milieux poreux.

L'équation (1-15) suppose que  $Kd_g^{(Rn)}$  diminue rapidement avec la croissance de la saturation en eau et que l'adsorption sur des surfaces humides est négligeable. Rogers et Nielson (1991b) ont montré que l'équation (1-15) ajuste parfaitement les données expérimentales de Schery et Whittlestone (1989) mesurées à la température ambiante (26°C) pour différentes textures de sols.

La seconde alternative à l'équation (1-15) est le modèle linéaire simplifié de Schery et Whittlestone (1989), qui peut prendre en compte la dépendance de  $Kd_g$  en la saturation en eau du sol et en la température également :

$$(1-16) \quad Kd_g^{(Rn)} = Kd_g^0 + Kd_{gT}^0 \times T + Kd_{gw}^0 \times W_l$$

où,  $T$  est la température (°C);  $W_l$  est la teneur en eau massique (%);  $Kd_g^0$  ( $m^3.kg^{-1}$ ),  $Kd_{gT}^0$  ( $m^3.kg^{-1}.°C^{-1}$ ) et  $Kd_{gw}^0$  ( $m^3.kg^{-1}.(\% \text{ humidité})^{-1}$ ) sont des constantes qui varient selon la texture du sol, et qui sont valides pour un certain intervalle de variation de la température et de la teneur en eau.

#### ➤ Coefficient de la loi de Henry

J'ai repris les données de  $K_H^{(Rn)}$  du radon publiées par Clever (1979), mesurées pour la gamme de températures inférieures à 100°C, puis je les ai ajustées par deux modèles de  $K_H^{(Rn)}$  en fonction de la température (Figure 1-2(a)) et implémentées dans la routine RnHEN. Le premier modèle correspond à celui de Crovetto et al. (1982) (CRO82):

$$(1-17) \quad K_H^{(Rn)} = 10^9 \times \exp(a_0 + a_1/x + a_2/x^2 + a_3/x^3)$$

, et le second modèle correspond à celui de Yaws et al. (1999) (YAWS99):

$$(1-18) \quad K_H^{(Rn)} = 1.01325 \times 10^5 \times 10^{A_0 + \frac{A_1}{T} + A_2 \log_{10}(T) + A_3 T}$$

Où  $x = 0.001 \times T$ , avec  $T$  est la température (K). Les quatre coefficients de régression dans les équations (1-17) et (1-18) pour le radon, ainsi que pour les gaz nobles Argon et Xénon, sont donnés dans les Tableau 1-1 et Tableau 1-2, respectivement.

**Tableau 1-1 – Meilleurs coefficients de régression du modèle de Crovetto et al. (1982) (CRO82) sur les données de  $K_H^{(Rn)}$  mesurées sur le radon (Clever, 1979) ainsi que ceux de l'Argon et du Xénon obtenus par Shan et Pruess (2004). Gammes de températures étudiées : 0 à 100°C pour le radon, et 20 à 300°C pour l'Argon et le Xénon.**

		Ar	Xe	Rn
CRO82	$a_0(-)$	-9.52	-3.902	-23.5229
	$a_1(K)$	8.83	2.439	20.5167
	$a_2(K^2)$	-1.8959	0.3863	-5.32751
	$a_3(K^3)$	0.0698	-0.2211	0.374797

Tableau 1-2 – Meilleurs coefficients de régression du modèle de Yaws et al. (1999) (YAWS99) sur les données de  $K_H^{(Rn)}$  mesurées sur le radon (Clever, 1979) ainsi que ceux de l'Argon et du Xénon obtenus sur les données mesurées de  $K_H^{(Ar)}$  et  $K_H^{(Xe)}$ . Gammes de températures étudiées : 0 à 100°C pour le radon, et 0 à 75°C pour l'Argon et le Xénon.

		Ar	Xe	Rn
YAWS99	$A_0(-)$	65.3235	87.3918	109.225
	$A_1(K)$	-3246.9	-4569.21	-5645.58
	$A_2((\log_{10}(K))^{-1})$	-20.1398	-27.4664	-34.9531
	$A_3(K^{-1})$	0	0	-0.000057

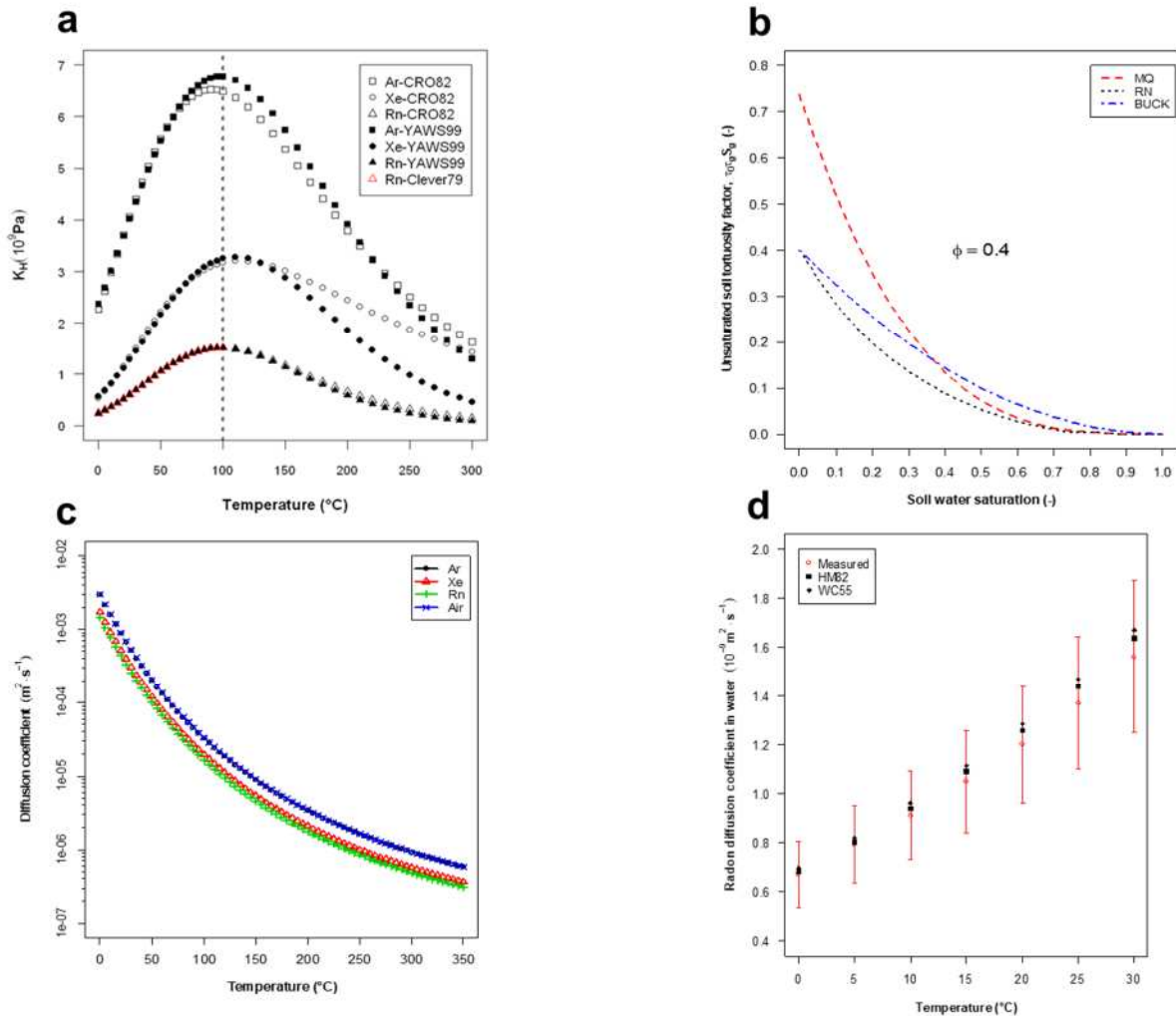


Figure 1-2 – a/Meilleurs ajustements des modèles de Crovetto et al. (1982) (CRO82) et de Yaws et al. (1999) (YAWS99) sur les données mesurées de  $K_H^{(Rn)}$  de Clever (1979) - comparaisons avec les gaz nobles Argon et Xénon; b/Facteur de tortuosité non-saturée d'un sol à porosité  $\phi = 0.4$ , en utilisant les modèles de Millington et Quirk (1961) (MQ), Rogers et Nielson (1991a) (RN), et Buckingham (1904) (BUCK); c/Coefficient de diffusion de l'air, Ar, Xe et Rn dans la vapeur d'eau saturante en utilisant les paramètres du potentiel de LJ de Gopal (1962) pour le radon dans le mélange binaire des gaz; d/Modèles de Wilke et Chang (1955) (WC55) et de Hayduk et Minhas (1982) (HM82), et données mesurées de Broecker et Peng (1974) du coefficient de diffusion du radon dans l'eau liquide.

La comparaison entre les modèles CRO82 et YAWS99 pour le radon et les deux autres gaz nobles et stables (Ar et Xe), Figure 1-2(a), montre que les deux modèles donnent des résultats presque identiques pour les 3 gaz nobles

pour une gamme de température inférieure à 100°C. Cependant, leur extrapolation aux températures très élevées montre des divergences pour le cas du Xe. Ces divergences sont attribuées au fait que les données mesurées de  $K_H^{(Xe)}$  de Crovetto et al. (1982) se situent dans la gamme de températures 61.35 – 203.15 °C, qui dépasse celle investiguée par Yaws et al. (1999), soit 0 – 75 °C. Comme prévu, le coefficient de Henry diminue avec l'augmentation du poids moléculaire du gaz noble, indépendamment du modèle utilisé.

➤ **Facteur de tortuosité non-saturée  $\tau_0\tau_\beta$**

En plus du modèle  $\tau_0\tau_\beta$  (Eq. (1-2)) à base physique de Millington et Quirk (1961), initialement implémenté dans le code TOUGH2 :

$$(1-19) \quad \tau_0\tau_\beta = \phi^{1/3} \times (S_\beta)^{7/3} \quad \beta \equiv l, g$$

, dans la routine TORTFS, ce facteur peut être également modélisé par la corrélation de Rogers et Nielson (1991a) (RN) :

$$(1-20) \quad \tau_0\tau_g = \phi \times \exp(-6\phi S_l - 6(S_l)^{14\phi})$$

, ou par la loi en puissance de Buckingham (1904) BUCK :

$$(1-21) \quad \tau_0\tau_\beta = \phi \times S_\beta \quad \beta \equiv l, g$$

Où,  $\tau_0$  est supposée égale à la porosité dans les modèles RN et BUCK.

L'expression (1-20) est issue d'une analyse statistique réalisée à partir de 1073 coefficients de diffusion mesurés sur des échantillons de sols non remaniés excluant ceux issus des résidus miniers. Ces mesures ont été ajustées par la formule  $\tau_0\tau_g d_g^{(Rn)}$ . L'équation (1-20) est spécifique aux types de sols étudiés par Rogers et Nielson (1991b), et son application pour des matériaux poreux comme les résidus miniers (issus de traitement des minerais d'uranium) risque de fausser les résultats de calcul de flux et de concentration du radon dans ces matériaux en conditions non saturées.

Rogers and Nielson (1991a) reportaient dans leur article que la formulation MQ (Eq. (1-19)), ainsi que d'autres types de formulations mathématiques qui y sont identiques de type  $A(\phi) \times (\phi S_g)^{b_0}$  (e.g., modèle BUCK, Eq. (1-21), ne pouvaient pas représenter parfaitement la diffusion du radon dans les sols et qu'ils étaient développés spécifiquement pour d'autres types de gaz autres que le radon. Leur thèse est que ces expressions mathématiques considèrent la diffusion à travers la phase air uniquement et qu'ils négligent les phénomènes d'interaction eau-air telles que la volatilisation et la dissolution du radon. Pour s'affranchir de l'utilisation d'un modèle purement physique, comme celui proposé par Nielson et al. (1984), nécessitant la granulométrie comme paramètre d'entrée (souvent inaccessible à la mesure), ils proposèrent la relation empirique (1-20). La diffusion du radon dans l'eau est prise en compte implicitement dans le modèle RN, contrairement aux modèles MQ et BUCK qui la prennent en compte explicitement.

Le modèle BUCK (équation (1-21)), malgré sa simplicité, a été démontré plus exacte que les modèles MQ et RN selon l'étude réalisée par Meslin et al. (2010).

Van der Spoel (1998) montra que le modèle RN (Eq. (1-20)), combiné à l'approximation du coefficient de diffusion du radon non saturé global dans l'équation de transport par la relation (1-22), n'était adapté que pour du sable fin et qu'elle sous-estime le coefficient de diffusion du radon dans le sable grossier pour des faibles teneurs en eau. Ce résultat est dû à l'approximation de la tortuosité du sol  $\tau_0$  à sa porosité, ce qui ne justifie pas son application à tout type de sol.

$$(1-22) \quad D^{(Rn)} = \phi \times (S_g D_g^{(Rn)} + K_{ost}^{(Rn)} S_l D_l^{(Rn)}) \cong \phi \times (S_g + K_{ost} S_l) D_g^{(Rn)} \quad \text{avec} \quad D_g^{(Rn)} = \tau_0 \tau_g d_g^{(Rn)}$$

Avec  $K_{ost}^{(Rn)}$  est la constante d'Ostwald (-), l'équivalent de la constante de Henry  $K_H^{(Rn)}$  (Saâdi, 2017b).

De même, Saâdi (2014) montra que l'approximation formulée par l'équation (1-22) combinée à l'équation (1-20) peut amener à des erreurs non négligeables dans l'estimation de flux et de concentration du radon du sol.

La Figure 1-2(b) montre un exemple de calcul du facteur de tortuosité non-saturée  $\tau_0 \tau_g S_g$  (comme définie dans TOUGH2 ; Pruess et al., 1999) en fonction de la saturation en eau pour un sol à porosité  $\phi = 0.4$ , en utilisant les trois formulations MQ, RN, and BUCK. La formulation de MQ est plus diffusive que celles de RN et BUCK avec la diminution de la saturation en eau du sol. Notons, cependant, la faible différence entre ces deux derniers modèles pour l'estimation du coefficient diffusion du radon dans le sol non-saturé aux faibles degrés de saturation en eau.

#### ➤ Diffusion du radon dans la phase gazeuse en milieu libre

L'approche théorique utilisée pour calculer le coefficient de diffusion du radon dans l'air pure et la vapeur d'eau saturante ( $d_\beta^{(k)}$  dans Eq. (2)) est similaire à celle proposée par Shan et Pruess (2003, 2004) pour les gaz nobles. Cette approche est basée sur la théorie de Chapman-Enskog pour la diffusion en considérant le modèle de de Lennard-Jones (LJ) 12-6 pour le calcul du potentiel intermoléculaire dans un mélange de gaz binaire :

$$(1-23) \quad D_{AB} = 0.01881 \times T^{3/2} \times M_{AB} / (P \times \sigma_{AB}^2 \times \Omega_D)$$

Avec :

$$(1-24) \quad M_{AB} = \sqrt{(M_A + M_B) / (M_A \times M_B)}$$

$$(1-25) \quad \sigma_{AB} = (\sigma_{AA} + \sigma_{BB}) / 2$$

Où,  $D_{AB}$  est le coefficient de diffusion du gaz A dans le gaz B ( $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ), qui représente toute diffusivité spécifique du gaz  $d_\beta^{(k)}$  dans l'Eq. (1-2);  $T$  est la température (K);  $P$  est la pression du gaz (Pa);  $M_A$  et  $M_B$  sont les masses molaires des gaz A et B, respectivement;  $\sigma_{AA}$  et  $\sigma_{BB}$  sont des longueurs caractéristiques en Å ( $1 \text{ \AA} = 1 \times 10^{-10} \text{ m}$ ) définissant les potentiels intermoléculaires des gaz monophasiques A et B, respectivement. Le paramètre  $\Omega_D$  est l'intégrale de la collision de diffusion (sans dimension), définie comme étant une fonction de la température adimensionnelle,  $T^* = T / (\varepsilon_{AB} / k_{Bz})$  (Neufeld et al., 1972 ; Reid et al., 1987), avec  $\varepsilon_{AB}$  étant la moyenne géométrique caractéristique de l'énergie du potentiel LJ de chacun des gaz A et B, et  $k_{Bz}$  est la constante de Boltzmann ( $1.380658 \times 10^{-23} \text{ J} \cdot \text{K}^{-1}$ ).

Le Tableau 1-3 montre les valeurs de  $M_{AB}$  et des paramètres du potentiel LJ,  $\varepsilon_{AB}$  and  $\sigma_{AB}$ , utilisés pour les mélanges de gaz binaires Rn-Air (i.e., A = Rn, B = Air) et Rn-H<sub>2</sub>O, avec H<sub>2</sub>O la vapeur d'eau saturante. Ces deux paramètres sont calculés en utilisant les valeurs  $\varepsilon_{Rn}/k_{Bz} = 283$  K et  $\sigma_{Rn} = 4.36$  Å prises de Gopal (1962).

**Tableau 1-3 – Paramètres du potentiel LJ pour des mélanges de gaz binaires : Ar, Xe, Rn et l'air dans la vapeur saturante (H<sub>2</sub>O); le radon Rn dans l'air.**

A-B	$M_{AB}$ (g <sup>-1/2</sup> .mol <sup>1/2</sup> )	$\sigma_{AB}$ (Å)	$\varepsilon_{AB}/k_{Bz}$ (K)
Ar-H <sub>2</sub> O	0.28859	3.0915	274.7527
Xe-H <sub>2</sub> O	0.251242	3.344	432.3218
Rn <sup>a</sup> -H <sub>2</sub> O	0.244971	3.5005	478.5136
Rn <sup>a</sup> -Air	0.197556	4.0355	149.1436
Air-H <sub>2</sub> O	0.30005	3.176	252.181

<sup>a</sup>Gopal (1962) LJ-parameters values for radon

Les valeurs des paramètres du potentiel LJ pour la diffusion de l'air et les deux gaz nobles Ar et Xe dans H<sub>2</sub>O (Shan et Pruess, 2003, 2004) sont également montrées dans le Tableau 1-3. Les valeurs des paramètres du potentiel LJ dans le mélange Rn-H<sub>2</sub>O sont en bon accord avec ceux obtenus par ces auteurs. En effet, les valeurs de  $\varepsilon_{AB}$  et de  $\sigma_{AB}$  augmentent avec l'augmentation du poids moléculaire du gaz noble (Tableau 1-3), et inversement pour la diffusion (Figure 1-2(c)).

Dans la routine RnDIF0 de EOS7Rn, il est possible de choisir deux autres alternatives (équations empiriques ou théoriques) à l'Eq. (1-23), ou, des valeurs de paramètres  $\varepsilon_{AB}$ ,  $\sigma_{AB}$  et  $\Omega_D$  dans l'Eq. (1-23) calculées par toute autre théorie basée sur des modèles du potentiel intermoléculaire ou interatomique différents utilisant d'autres règles de combinaison entre  $\varepsilon_{AA}$ ,  $\varepsilon_{BB}$ ,  $\sigma_{AA}$  et  $\sigma_{BB}$ , et des corrélations  $\Omega_D$  différentes.

La première alternative correspond à la corrélation empirique de **Wilke et Lee (1955)** avec une légère modification de l'Eq. (1-23). La seconde alternative est basée également sur l'Eq. (1-23) mais utilisant de nouveaux paramètres du potentiel LJ pour le radon (**Runeberg et Pyykkö, 1998**) en considérant des modèles théoriques relativistes (Tang et Toennies, 1984), différentes règles de combinaisons pour le calcul de  $\varepsilon_{AB}$  et de  $\sigma_{AB}$  (Tang et Toennies 1986, 2003 ; Bzowski et al., 1988), et d'autres types de corrélations  $\Omega_D$  (Najafi et al., 1983).

Pour les problèmes d'écoulement et de transport en milieu souterrain, la température fluctue généralement autour de la température ambiante, avec l'air comme composant dominant dans la phase gazeuse. Ainsi, il est conseillé plutôt d'utiliser les paramètres du potentiel LJ pour le mélange Rn-Air (Tableau 1-3).

### ➤ Diffusion du radon dans la phase liquide en milieu libre

Deux formulations mathématiques ont été proposées pour estimer le coefficient de diffusion du radon dans l'eau libre en fonction de la température. La première correspond au modèle empirique de Hayduk et Minhas (1982) (HM82), décrit par l'équation suivante :

$$(1-26) \quad D_{AB}^0 = 1.25 \times 10^{-12} \times (V_{bA}^{-0.19} - 0.292) \times T^{1.52} \times \mu_B^\varepsilon$$

Avec :

$$(1-27) \quad \varepsilon = \frac{9.58}{V_{bA}} - 1.12$$



La seconde correspond au modèle théorique de Wilke et Chang (1955) (WC55) :

$$(1-28) \quad D_{AB}^0 = \frac{7.4 \times 10^{-12} \times T \times \sqrt{\varphi_B M_B}}{\mu_B \times V_{bA}^{0.6}}$$

Où,  $D_{AB}^0$  est le coefficient de diffusion de A dans un solvant B ( $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ );  $M_B$  est le poids moléculaire du solvant B ( $\text{g} \cdot \text{mol}^{-1}$ );  $T$  est la température (K);  $\mu_B$  est la viscosité dynamique du solvant B en cP ( $1 \text{ cP} = 10^{-2} \text{ Poise} = 10^{-3} \text{ Pa} \cdot \text{s}$ );  $V_{bA}$  est le volume molaire du soluté A à son point d'ébullition normal ( $\text{cm}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$ ); et  $\varphi_B$  est un facteur d'association pour le solvant B, adimensionnel, introduit pour prendre en compte le poids moléculaire effectif du solvant par rapport au processus de diffusion du soluté; il est égal à 1 pour des solvants non-associés comme le Benzène, l'Ether et l'Heptane... et est supérieur à 1 pour des solvants associés comme l'eau et les solvants formant des liaisons hydrogène (e.g., les alcools Méthanol, Ethanol...).

Pour l'eau comme solvant, les valeurs de  $M_B$  et  $\varphi_B$  sont égales à  $18.016 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1}$  et 2.26, respectivement, et la valeur de  $\mu_B$  est calculée en fonction de la température, en utilisant le modèle empirique de Yaws (1999). Pour le radon comme soluté,  $V_{bA}$  est égale à  $50.45 \text{ cm}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$ . La Figure 1-2(d) montre la comparaison des équations (1-26) et (1-28) des deux modèles proposés (HM82 et WC55, respectivement) avec les données de Broecker et Peng (1974), mesurées pour la diffusivité du radon dans l'eau libre à pression atmosphérique dans la gamme de températures entre 0 et 30°C. Les deux modèles surestiment les données mesurées avec la croissance de la température. Le modèle HM82 est plus exacte que le modèle WC55, mais la différence entre les deux est très faible, comparée aux incertitudes de mesures (maximum de 20%). Comme montré par King et al. (1995), l'Eq. (1-28) est très précise pour les gaz nobles à poids moléculaire très élevé (e.g., radon).

## 1.4 Le code T2Rn

### 1.4.1 Description générale

Le code **iT2Rn** (ou simplement **T2Rn** : *TOUGH2 for Radon*) a été développé en collaboration avec la société Canyon Ridge Consulting **CRC-LLC** (créée par Dr. Stephane Webb, ancien chercheur du Laboratoire Sandia de New Mexico aux EU) et le **LBL** de l'université de Berkeley en Californie (sous la responsabilité du Dr. Stephan Finsterle). Ce code utilise les mêmes modifications de l'effet des plantes incluses dans le code **T2Plants** développé par CRC-LLC pour le compte d'**AMEC** (*Association of Mining & Exploration Companies* - UK) et qui était sponsorisé par la **NDA/RWM** (*Nuclear Decommissioning Authority / Radioactive Waste Management*) en Grande Bretagne. Une partie de ces modifications a été utilisée directement dans T2Rn avec une permission de NDA/RWM qui conserve tous les droits sur le code original.

Le code iT2Rn est programmé dans la plateforme logicielle iTOUGH2 (Finsterle, 2007), inverse de la plateforme TOUGH2, dans une perspective d'optimisation des paramètres des modèles à partir des données expérimentales. Il consiste en un **module sol** et en un **module de croissance et de transpiration de la plante**, avec la prise en compte des conditions climatiques qui règnent en surface (Figure 1-3; Webb et Phelan, 2003) et qui peuvent affecter le mouvement du gaz au voisinage de la surface du sol. En effet, le vent a un effet direct sur la couche limite de surface à travers laquelle les gaz diffusent vers l'atmosphère. Le rayonnement thermique composé de rayonnements solaire et infrarouge influence la température de la surface, et indirectement l'épaisseur de la couche limite. Les conditions atmosphériques (pression, température, humidité relative, fractions molaires des gaz), affectent le transport de la phase gazeuse en sub-surface, la température de surface et l'évaporation de l'eau du sol. Les précipitations et le ruissellement influencent directement l'advection de l'eau en sub-surface. Enfin, la croissance et la transpiration de la plante influencent le transport du rayonnement net atteignant la surface de la terre, et agissent comme terme puits pour l'eau de sub-surface.

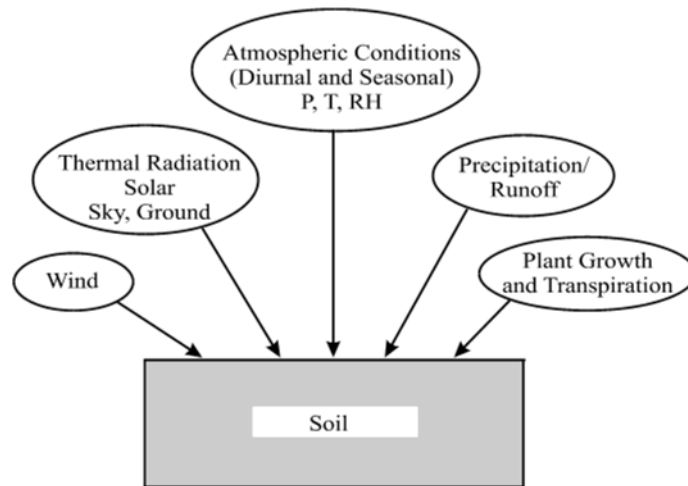


Figure 1-3 – Conditions à la limite à la surface du sol.

Le module sol est géré par le module EOS4 (Pruess et al., 1999) de iTOUGH2 (renommé EOS16 pour T2Rn) qui considère les composants eau et air, et l'effet de la pression capillaire à l'interface liquide-gaz sur la réduction de la pression de la vapeur d'eau (appelé en anglais *vapor pressure lowering*, et abrégé VPL). Ce module est choisi pour tenir compte de l'impact des conditions aux limites qui règnent en surface sur la pression de la vapeur locale qui pourrait être significative suite au séchage prolongé de la surface. L'équation d'état EOS4 a été étendue en ajoutant le radon  $^{222}\text{Rn}$  dans les phases liquide et gazeuse.

Dans T2Rn le calcul du rayonnement thermique et le comportement de la couche limite dans le couvert végétal est basé sur les modèles utilisés dans le code SiSPAT (Braud et al., 1995 ; Braud, 1996, 2000). Ce code a été développé durant plusieurs années pour prendre en compte l'interaction sol-plante-atmosphère, et a été largement validé sur des données expérimentales. Le code SiSPAT inclut le transfert de la vapeur, l'eau et la chaleur dans une approche monodimensionnelle (1D) incluant les effets de plantes. Puisque SiSPAT est limité à un transport 1D-vertical et n'inclut pas le transport du gaz, il n'a pas été choisi pour l'étude de transport du radon en sub-surface. Cependant, le comportement de la couche limite à la surface incluant le couvert végétal et l'analyse des effets de plantes au-dessous de la surface rend l'utilisation de ses sous-modèles intéressants pour la présente approche.

En plus des paramètres nécessaires au fonctionnement des modules sol et plante, T2Rn nécessite l'entrée de données du climat telles que les précipitations, le ruissellement, le rayonnement thermique (solaire et infrarouge), et les conditions atmosphériques (pression, température, humidité relative, fractions molaires des gaz, intensité et direction du vent).

#### 1.4.2 Module plante

Le code T2Rn utilise la méthode du profil de couche limite aérodynamique pour représenter l'interface sol-atmosphère. Le modèle considère l'évaporation de l'eau à travers une couche limite représentée par une mince couche d'air à la surface du sol incluant le couvert végétal, là où la valeur de la concentration de la vapeur d'eau change de celle en surface à celle dans l'atmosphère. La méthode de calcul du profil de la couche limite est simplifiée et idéalisée et peut ne pas être représentative de tous les cas d'études rencontrés in situ, par contre elle permet de fournir une bonne compréhension des effets du climat sur les conditions de sub-surface au voisinage de la surface du sol.

Le traitement des conditions de surface inclut le rayonnement thermique net en surface et la résistance de la couche limite en surface au transfert de quantité de mouvement, de la chaleur et de la masse entre la surface et l'atmosphère, en introduisant les effets du couvert végétal, Figure 1-4. Cette approche est basée sur le code SiSPAT (Braud et al., 1995 ; Braud, 1996, 2000). En revanche, certaines simplifications ont été réalisées dans la présente

implémentation telle que les valeurs des constantes de l'émissivité et de l'albédo, et l'inclusion de l'approche de couche limite.

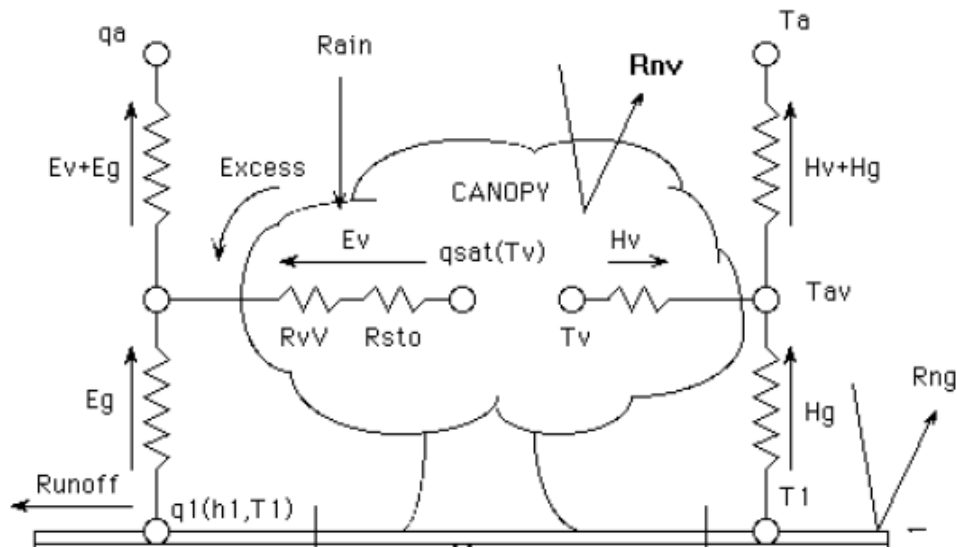


Figure 1-4 – Schématisation du couvert végétal par des résistances aérodynamiques (Braud, 2000).

Le partage de chacun des rayonnements thermiques (solaire et infrarouge) en rayonnements nets à partir de la surface du sol et du couvert végétal se fait par l'intermédiaire d'un paramètre compris entre 0 et 1, fonction de l'indice foliaire de la plante, ainsi que les paramètres d'albédo (coefficient de réflexion du rayonnement solaire global par la sol, fonction de la nature, de la couleur, de l'inclinaison et de la rugosité de sa surface) et de l'émissivité du sol et de la couverture végétale. Le rayonnement thermique net du sol ou de la végétation est simplement la somme de leur rayonnement net dû aux rayonnements solaire et infrarouge nets à la surface du sol ou ceux de la couverture végétale. Le rayonnement net à la surface d'un sol nu est déduit de ce dernier en prenant un indice foliaire égal à 0.

Dans T2Rn, la couche limite dans l'atmosphère à l'interface avec le sol est considérée pour décrire le transfert de quantité de mouvement (vitesse), de la masse (vapeur d'eau) et de la chaleur. Le transfert entre l'atmosphère et le couvert végétal est modélisé par des flux turbulents formulés en termes de résistances (Braud, 2000). Quatre conditions thermodynamiques sont considérées. La première correspond aux conditions atmosphériques considérées comme conditions aux limites, définies comme données d'entrée du problème. Les deux autres conditions thermodynamiques sont le potentiel matriciel à la surface du sol, déterminé par la solution des équations de transport dans le sol et les conditions du couvert végétal telles que déterminées à partir de la solution à l'interface sol-plante. La dernière condition thermodynamique est la température du feuillage de la plante, qui est aussi considérée comme une partie de la solution à l'interface sol-plante. La différence de température entre celle du feuillage de la plante et celle du couvert végétal permet de déterminer l'évaporation et la condensation (la rosée) sur les plantes ainsi que sa transpiration comme décrit ci-dessus.

L'interface sol-plante est régie par un ensemble de trois équations non linéaires décrivant le bilan d'énergie de la canopée de la plante et la continuité des flux de la vapeur et de la chaleur à travers cette canopée, dont les inconnues sont la température de la canopée, l'humidité spécifique et la température du feuillage de la plante. Le potentiel matriciel et la température à la surface du sol sont supposés connus à chaque itération car obtenus résolution des équations du bilan d'énergie du sol et de transport de l'eau à travers la surface du sol, qui sont implicitement incluses dans T2Rn.

Les résistances de la couche limite au transfert de masse (vapeur d'eau) et de la chaleur sont basées sur des approches empiriques (Thom, 1972 ; Taconet et al., 1986), où les profils de température et de la vitesse du vent au-dessus de la surface du sol sont supposés être des fonctions logarithmiques des hauteurs verticales (élevations) de mesure de la vitesse du vent et de la température de l'air. La résistance stomatique des pores dans les feuilles

et les tiges des plantes est supposée dépendre du rayonnement solaire incident, du déficit de pression de vapeur local et de l'eau du sol. Enfin, la modélisation de la plante inclut le profil de densité des racines dans les sols (Figure 1-5) et l'extraction de l'eau par les racines à travers des résistances du sol et de la plante à l'écoulement de l'eau (Figure 1-6), qui sont fonctions de la densité racinaire et de la perméabilité du sol.

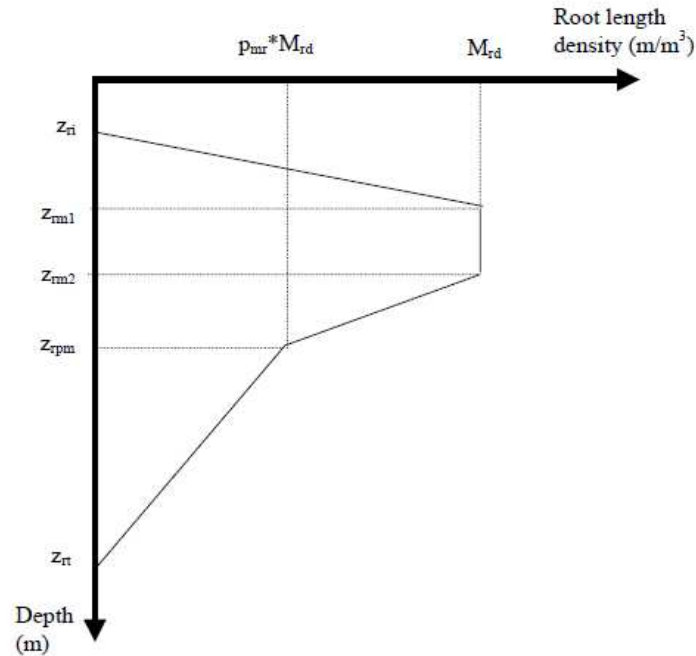


Figure 1-5 – Modèle de profil de densités racinaires dans T2Rn (Braud, 2000).

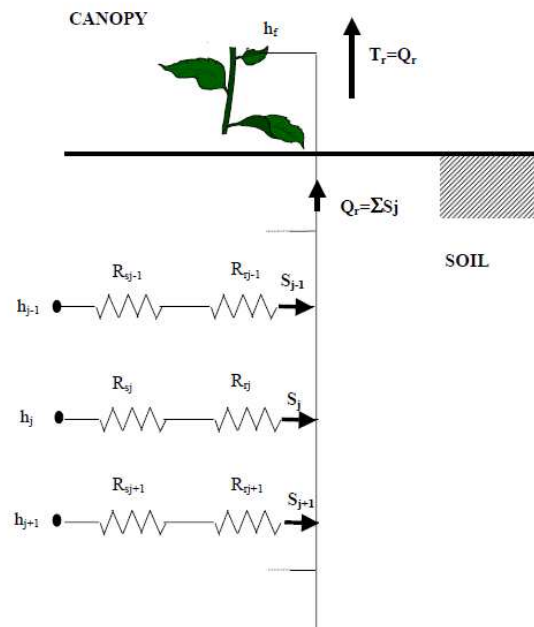


Figure 1-6 – Modèle des résistances pour l'extraction de l'eau du sol par les racines et le couvert végétal (Braud, 2000).

Les équations décrivant les différents modèles de calcul du rayonnement en surface, l'interaction sol-plante-atmosphère ainsi que les différents types de résistances et paramètres de ces modèles sont décrits en détail dans Webb et Saâdi (2016).

### 1.4.3 Module sol

Le code T2Rn est basé sur le module EOS4 de TOUGH2, auquel on a adjoint le composant radon, en plus de ceux de l'eau et de l'air, et la température. Ce choix est dû au fait que le module EOS4 a la possibilité de prendre en compte VPL, potentiellement significatif au voisinage de la surface, pour la réduction de la pression de la vapeur d'eau due à la pression capillaire et à la courbure de l'interface air-eau. La relation entre la pression capillaire et la pression de vapeur est souvent représentée par l'équation de Kelvin (Edlefsen et Anderson, 1943). Notons que le phénomène VPL est pris en compte dans le code SiSPAT (Braud, 2000), qui traite également ces conditions au voisinage de la surface.

Toutes les propriétés physiques du radon implémentées dans le code EOS7Rn (cf. § 1.3.2) telles que la désintégration, l'émanation, l'adsorption, la diffusion moléculaire, la volatilisation/dissolution (coefficient de Henry), ainsi que leur dépendance des propriétés hydrodynamiques et thermodynamiques, ont été également implémentées dans T2Rn.

Les équations de conservation générales sont résolues de la même manière que dans EOS7Rn par la méthode IFDM dans TOUGH2 en chaque élément ou volume de contrôle (*grid block*) du domaine maillé pour les 3 composants de fluide (eau, air, radon) en plus de la chaleur. Le terme source du radon correspond au taux de production du radon par émanation et le terme puits correspond à la disparition du radon par désintégration. Le phénomène VPL peut être désactivé dans T2Rn si nécessaire.

Dans un système à 3 composants (eau, air, radon), distribué selon l'équilibre thermodynamique local parmi deux phases (liquide, gazeuse), 4 paramètres thermodynamiques indépendants, ou « variables primaires », sont nécessaires afin de déterminer l'état thermodynamique en chaque élément du domaine maillé : La pression  $P$  de la phase liquide ou gazeuse et la fraction massique de l'air dans la phase liquide  $X_l^{(a)}$  (-) en conditions monophasiques (liquide ou gazeuse), **ou**, la pression de la phase gazeuse  $P_g$  (Pa) et le degré de saturation en gaz  $S_g$  en conditions diphasiques liquide-gaz; La pression partielle du radon  $P^{(Rn)}$  (Pa); et la température  $T$  (°C).

## 1.5 Vérification numérique

La vérification numérique des deux codes EOS7Rn et T2Rn est réalisée en trois étapes. La première à travers une étude numérique en régime stationnaire de transport monodimensionnel (1D) du radon dans une colonne de sol verticale de 10 m de hauteur. Cette dernière peut être constituée par un milieu poreux homogène ou à plusieurs couches homogènes superposées verticalement (milieu multicouches) avec présence de la seule phase gazeuse (milieu monophasique en gaz) ou des deux phases liquide et gazeuse simultanément (milieu diphasique liquide-gaz ou non saturé). Notre choix a porté sur des sols à forte teneur en  $^{226}\text{Ra}$ , le stérile minier considéré comme un matériau de couverture (noté **MC** ou **CM** pour *cover material* en anglais) et le résidu minier d'uranium (noté **RMU** ou **UMT** pour *uranium mill tailings* en anglais), étudiés par Ferry (2000) sur le site de Lavaugrasse (87), destiné au stockage de résidus miniers issus du traitement des minerais d'uranium. Cette première vérification est effectuée par la comparaison de la solution numérique du module EOS7Rn avec la solution analytique exacte de Guérin (1991) qui a été développée pour le cas de transport 1D du radon dans des milieux poreux multicouches soumis à des conditions initiales et aux limites particulières.

En l'absence de solution analytique pour résoudre un problème d'écoulement diphasique liquide-gaz en régime transitoire, la seconde étape de vérification consiste à confronter le module EOS7Rn avec le code monodimensionnel aux différences finies **TRACI** pour simuler le transport du radon à travers une stalle (Ferry, 2000; Ferry et al., 2002) - système de sol bicouche MC/RMU, avec une couche MC de 1 m d'épaisseur surmontant une couche RMU de 0,8 m d'épaisseur - en conditions d'écoulement contrôlées ou variables dans le temps aux frontières de la stalle.

Enfin, une troisième étape de vérification qui consiste à une étude numérique de transport du radon en régime instationnaire et non-isotherme dans un réservoir géothermique non saturé à travers la simulation de deux problèmes qui ont été déjà étudiés par Shan et Pruess (2003, 2004) via leur code EOSN. L'objectif de cette étude est de montrer le comportement différent du radon par rapport aux autres gaz nobles stables en conditions non-isothermes. Le premier correspond à un problème 1D radial de transport du radon dans un réservoir géothermique vers un puits d'extraction. Le second est un simple problème d'advection-diffusion dans une colonne de roche horizontale 1D soumise à un fort gradient thermique. Dans les deux problèmes, la concentration en radon initiale a été supposée en équilibre avec l'émanation d'une roche ayant une certaine teneur massique en radium-226 comme terme source.

### 1.5.1 Modèles 1D stationnaires de transport du radon dans des colonnes verticales homogènes et stratifiées

Les résultats de calcul de EOS7Rn sont comparés avec la **solution analytique de Guérin (1991) (GU91)** développée pour le cas de transport monodimensionnel vertical (1D) isotherme et stationnaire du radon dans colonnes de sols homogènes et multicouches non saturées, avec des conditions aux limites de type Dirichlet à ses frontières (inférieure et supérieure). Des conditions isothermes sont supposées à la température de 25°C. La valeur de  $K_H^{(Rn)}$  est prise à  $6.06844 \times 10^8$  Pa (Eq. (1-17)), et les valeurs des coefficients de diffusion de Rn dans l'air et l'eau en milieu libre sont prises égales à  $1.1 \times 10^{-5}$  et  $1.4 \times 10^{-9}$  m<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>, respectivement.

La colonne est de 10 m de hauteur. On considère les trois configurations généralement observées dans un site de stockage du RMU (Figure 1-7) : (i) colonne homogène en RMU (UMT), (ii) colonne à deux couches superposées dans l'ordre MC/RMU (*CM/UMT*), et (iii) colonne à cinq couches superposées dans l'ordre MC/RMU/MC/RMU/MC (*MC/RMU\_5L* ou *CM/UMT\_5L*). Les matériaux étudiés MC et RMU sont ceux provenant du site Lavaugrasse (France), caractérisés comme sable limoneux et limon sableux, respectivement (Tableau 1-4; Ferry et al., 2002). Leurs propriétés hydrauliques sont modélisées par les fameuses relations de van Genuchten-Mualem VGM (Mualem, 1976 ; van Genuchten, 1980) pour la courbe de rétention en eau ( $P_c(S_l)$ , Eq. (1-29)) et la perméabilité relative à l'eau ( $k_{r,l}(S_l)$ , Eq. (1-30)) ; et la relation de Parker et al. (1987) pour la perméabilité relative au gaz ( $k_{r,g}(S_l)$ , Eq. (1-31)) :

$$(1-29) \quad S_{le} = \frac{S_l - S_{lr}}{S_{ls} - S_{lr}} = \left[ 1 + \left( \frac{P_c}{P_{co}} \right)^{1/(1-m_{VG})} \right]^{m_{VG}} \quad \text{avec} \quad P_{co} = \rho_w g / \alpha_{VG}$$

$$(1-30) \quad k_{r,l}(S_l) = \frac{k_l(S_l)}{k_0} = S_{le}^{1/2} \left[ 1 - \left( 1 - S_{le}^{1/m_{VG}} \right)^{m_{VG}} \right]^2$$

$$(1-31) \quad k_{r,g}(S_l) = \frac{k_g(S_l)}{k_0} = (1 - S_{le})^{1/2} \left( 1 - S_{le}^{1/m_{VG}} \right)^{2m_{VG}}$$

Où,  $S_{le}$  est le degré de saturation effective de la phase liquide (eau) (-); les indices r et s réfèrent à résiduel et saturation complète à l'eau;  $m_{VG}$  est un paramètre de forme, adimensionnel, qui dépend de la texture du milieu poreux;  $P_{co}$  est un paramètre d'échelle de la pression (Pa), inversement proportionnel au fameux paramètre de VG,  $\alpha_{VG}$  (m<sup>-1</sup>);  $k_l(S_l)$  et  $k_g(S_l)$  sont les perméabilités effectives ou absolues non-saturées à l'eau et au gaz (air) (m<sup>2</sup>), respectivement;  $k_0$  est la perméabilité intrinsèque du milieu poreux (m<sup>2</sup>), supposée identique pour les deux phases liquide et gazeuse à saturation totale. Les deux paramètres  $\alpha_{VG}$  et  $k_0$  dépendent de la structure du milieu poreux.

Pour ces expériences numériques, le coefficient d'adsorption du CM est supposé négligeable, alors que celui du RMU a été supposé artificiellement important et modélisé par l'Eq. (1-15), avec  $kd_g^0 = 3.4218 \times 10^{-3}$  m<sup>3</sup>.kg<sup>-1</sup>, et  $b = 12$ . Le coefficient d'émanation du radon a été calculé par l'Eq. (1-13).

Le Tableau 1-5 résume les valeurs des paramètres des expériences numériques appliquées sur ces trois configurations de la colonne pour étudier le transport du radon en conditions d'écoulements monophasique en gaz

et non-saturé. La différence de pression de gaz entre les frontières de la colonne ( $\Delta P_g$ ) est choisie de telle sorte à créer un transport advectif ascendant vers la surface  $z = 0$  (axe OZ orienté positivement vers le haut). La vitesse de gaz stationnaire ( $v_g$ ), utilisée comme paramètre d'entrée dans la solution analytique GU91 pour un système multicouche, est calculée numériquement par résolution du problème transitoire diphasique. Pour toutes ces expériences, les calculs ont été réalisés par les modèles de tortuosité de MQ et RN. La concentration ou la pression partielle du radon dans la phase gazeuse est considérée initialement nulle tout au long du profil vertical de la colonne, et est supposée en permanence constante à ses frontières  $z = 0, 10$  m (Figure 1-7).

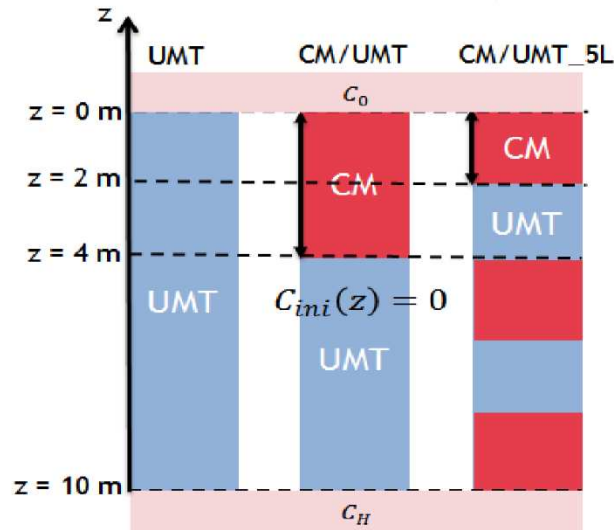


Figure 1-7 – Les trois configurations de la colonne étudiées, typiques d'un site de stockage alternant des couches du RMU (UMT : Uranium Mill Tailings) et du stérile minier ou MC (CM : Cover Material).  $C_0$  et  $C_H$  : concentrations en radon imposées aux frontières de la colonne ;  $C_{ini}(z)$  : profil initial de concentration en radon.

Tableau 1-4 – Les valeurs des paramètres des propriétés physiques, hydrodynamiques et du terme source radon des matériaux MC (CM) et RMU (UMT). D'après Ferry (2000) et Ferry et al. (2002).

Material	CM	UMT
Porosity, $\phi$ (-)	0.39 (0.07)	0.4 (0.10)
Dry bulk density, $\rho_d$ (kg.m <sup>-3</sup> )	1520 (120)	1370 (250)
Residual liquid saturation, $S_{lr}$ (-)	0.1282 (0.08)	0.15 (0.1375)
Full liquid saturation, $S_{ls}$ (-)	1	1
Intrinsic permeability, $k_0$ (10 <sup>-12</sup> m <sup>2</sup> )	1.2257 (1.8242)	0.4086 <sup>a</sup>
VG-M pressure scale parameter, $\alpha_{VG}$ (m <sup>-1</sup> )	3.4674 (3.7524)	1.122 (1.886)
VG-M shape parameter, $m_{VG}$ (-)	0.4246 (0.212)	0.1667 <sup>a</sup>
Radium-226 mass activity, $C_s^{226Ra}$ (kBq.kg <sup>-1</sup> )	4.7 (0.3)	60 (15)
Emanation coefficient at dryness, $E_d$ (-)	0.23 (0.05)	0.05 (0.01)
Emanation coefficient at saturation, $E_w$ (-)	0.23 (0.05)	0.32 (0.06)
Minimum water saturation on the plateau of the emanation-water saturation relationship (Eq. (11)), $S_l^*$ (-)	-	0.15

<sup>a</sup> Calibrated against experimental data to account for the clayey nature and cracking of the UMT



**Tableau 1-5 – Valeurs des paramètres des expériences numériques appliquées aux trois configurations de la colonne.**

Column configuration	Experiment #	$S_g$ (-)		$\Delta z$ (m)	$\Delta P_g$ (Pa)
		CM	UMT		
UMT (H-UMT=10 m) <sup>c</sup> and CM/UMT (H-CM=4 m, H-UMT=6 m) and CM/UMT_5L (H-CM=2 m, H-UMT=2 m)	#1	1.00	1.00	0.1	0
	#2	1.00	1.00	0.1	1000
	#3	0.50	0.50	0.02, 0.1, 0.1 <sup>a</sup>	0
	#4	0.50	0.50	0.02	1000
	#5	0.75	0.25	0.02, 0.1, 0.1	0
	#6	0.75	0.25	0.02	300 <sup>b</sup>
	#7	0.75	0.25	0.005, 0.02, 0.01	1000
	#8	0.25	0.75	0.02, 0.1, 0.1	0
	#9	0.25	0.75	0.02, 0.01, 0.01	300 <sup>b</sup>
	#10	0.25	0.75	0.02, 0.01, 0.01	1000

<sup>a</sup>Different values  $\Delta z$  for the three soil column configurations UMT, CM/UMT, and CM/UMT\_5L, respectively

<sup>b</sup>Not used for the UMT-soil column

<sup>c</sup>H: is the thickness of the soil layer (m)

Le schéma de Crank-Nicolson de discrétisation du temps a été utilisée pour les termes d'émanation et de désintégration du radon (i.e.,  $\delta=9=1/2$  dans les Eqs. (1-11) et (1-12)). La solution numérique TOUGH2 correspond à la solution atteinte en régime stationnaire après résolution du problème transitoire diphasique eau-air. Les calculs numériques sont réalisés avec un pas d'espace constant  $\Delta z$  suivant la verticale, et prends les valeurs  $\Delta z = 0.005, 0.01, 0.02, 0.1$  m, de telle sorte à ce que le nombre de Péclet soit inférieur à 2, afin de réduire la dispersion numérique (Tsang et Narasimhan, 1992). Deux valeurs du facteur de pondération amont des mobilités *WUP* (*Upstream Weighting Factor*) aux connexions entre deux éléments voisins ont été choisies : 0.5 et 1.0. Le pas de temps maximum ( $\Delta t_{max}$ ) est a été choisi égal à 1/100 du temps de demi-vie du radon (Oldenburg et Pruess, 1995), soit  $3.3 \times 10^3$  s, pour éviter la dispersion numérique. Pour certaines expériences numériques (e.g., expérience CM/UMT\_5L#6 ; Tableau 1-5), le pas de temps initial,  $\Delta t_{ini}$ , a été initialement pris très faible, puis a été accru d'une manière variable et contrôlée dans le temps jusqu'à atteindre  $\Delta t_{max}$ .

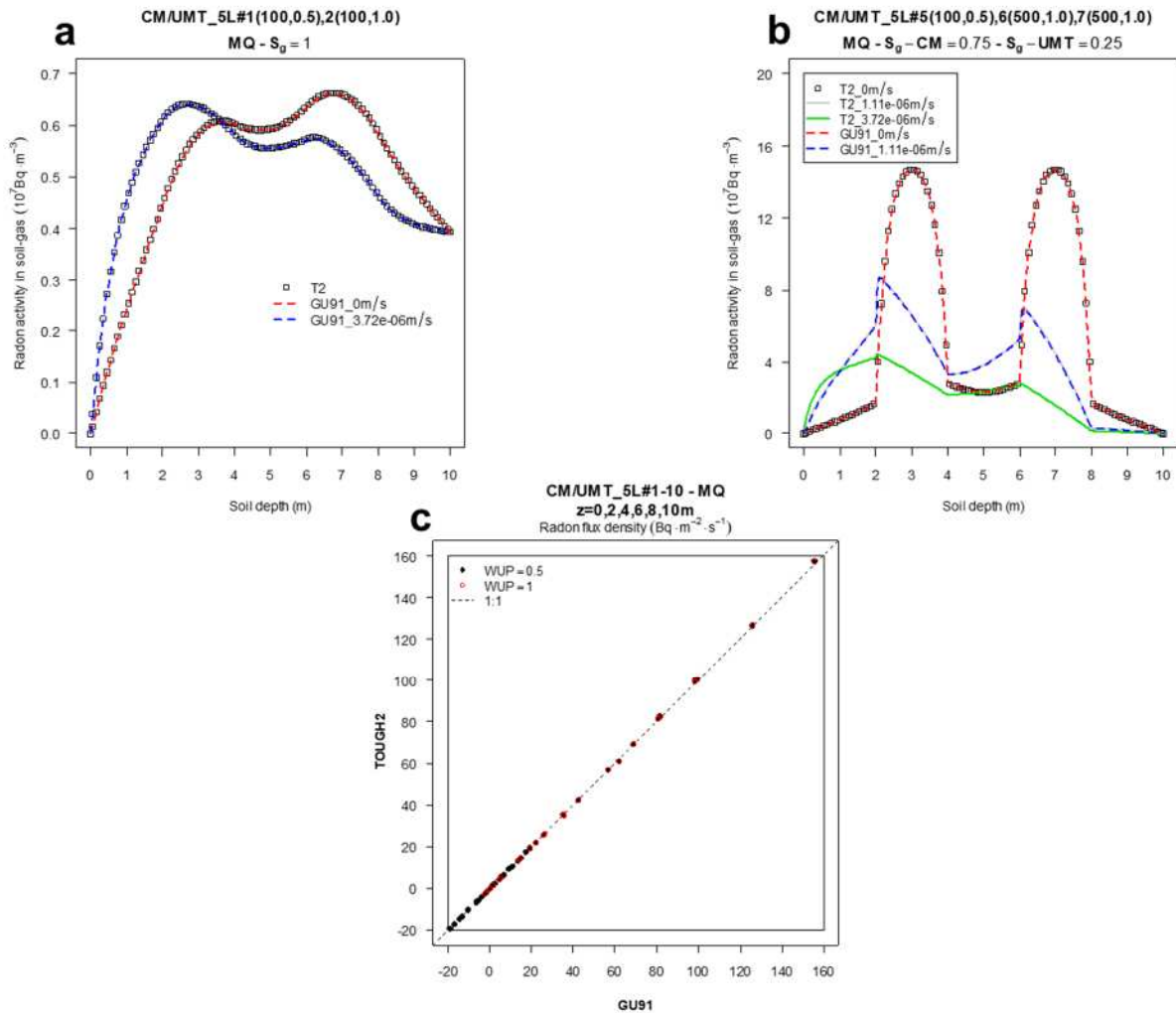
Dans ce qui suit, je présente uniquement les résultats de calcul pour la configuration de la colonne à 5 couches (i.e., Expériences CM/UMT\_5L#1-10). Pour plus de détail sur les résultats de calcul pour les configurations d'une colonne homogène ou bicouche, voir Saâdi et al. (2014).

La Figure 1-8a et la Figure 1-8b montrent des exemples de simulation de profils de concentration en radon dans la phase gazeuse calculés by EOS7Rn et GU91 pour les expériences numériques en conditions d'écoulements monophasiques en gaz (CM/UMT\_5L#1-2) et en non-saturées (CM/UMT\_5L#5-7), respectivement. L'accord entre les deux solutions est remarquable. De même, pour toutes les expériences confondues, les flux du radon calculés par EOS7Rn aux différentes interfaces sont parfaitement prédits par la solution GU91 (Figure 1-8c), et cela indépendamment de la valeur de *WUP* considérée.

En revanche, étant donné que le profil de vitesse de gaz dans la colonne calculé par EOS7Rn n'est pas parfaitement uniforme, l'erreur relative sur le flux était grande en particulier à la frontière  $z = 10$  m. Elle dépasse 10% pour *WUP* = 1.0, mais était inférieure à 5% pour *WUP* = 0.5. Les erreurs de bilan de masse étaient inférieures à 1.5%



pour toutes les expériences CM/UMT\_5L#1-10 quelle que soit la valeur de  $WUP$ . Ce résultat prouve que la stratification (superposition des couches) n'affecte pas énormément les erreurs de bilan de masse numérique calculées par le schéma IFDM de TOUGH2.



**Figure 1-8 - Profils de concentration en radon calculés numériquement par TOUGH2/EOS7Rn (T2) et la solution analytique de Guérin (1991) (GU91) pour les expériences numériques à cinq couches : a/ Expériences monophasiques en gaz; b/ Expériences diphasiques liquide-gaz; c/ Flux de radon calculés par T2 et GU91 pour toutes ces expériences et profondeurs confondues.**

Les résultats de calcul par T2Rn (non présentés ici) sont identiques à ceux obtenus par EOS7Rn. La Figure 1-9 montre un exemple de profils d'activité volumique du radon dans la phase gazeuse (Figure 1-9A) et dans la phase liquide (Figure 1-9B) calculés par T2Rn et leurs comparaisons avec ceux issus du code EOS7Rn, pour l'expérience numérique CM/UMT\_5L#6 ( $NZ=100$ ,  $WUP = 1.0$ ). De même, le Tableau 1-6 illustre une comparaison entre les flux aux interfaces CM/UMT calculés par T2Rn et EOS7Rn. Ces résultats confirment que l'accord entre les deux solutions numériques est remarquable.

En revanche, on calcule une nette différence entre la solution numérique et la solution analytique GU91, que ce soit pour la concentration en radon (en particulier au niveau des pics dans la Figure 1-9) ou le flux de radon (Tableau 1-6). Cette différence est tout simplement attribuée au maillage assez grossier ( $NZ=100$ ) qui cause une dispersion numérique non négligeable. Cette différence est fortement réduite pour un maillage très fin ( $NZ = 500$ ) et une valeur  $WUP = 0.5$ , comme l'illustre le Tableau 1-7.

Tableau 1-6 - Valeurs des flux du radon calculés par EOS7Rn, T2Rn et la solution analytique GU91 aux interfaces CM/UMT de la colonne ( $z = 0, 2, 4, 6, 8, 10$  m) pour l'expérience CM/UMT\_5L#6 (NZ = 100 ; WUP = 1).

Interface, z (m)	Radon flux density ( $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ )			RE (%)
	GU91	EOS7Rn	iT2Rn	
0	61.76	62.23	62.23	0.77
2	99.56	99.87	99.87	0.31
4	35.32	34.91	34.91	1.17
6	81.38	81.62	81.62	0.30
8	1.80	1.42	1.42	21.14
10	-2.52	-2.74	-2.74	8.52

Tableau 1-7 - Valeurs des flux du radon calculés par EOS7Rn et la solution analytique GU91 aux interfaces entre couches de la colonne pour les expériences numériques CM/UMT\_5L#1,4,6,9.

CM/UMT_5L (WUP=0.5)	Z (m)	GU91			TOUGH2/EOS7Rn					
		4	8	10	4	8	10	4	8	10
Expérience#	NZ	Radon flux density ( $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ )			RE (%)					
1	100	-1.12	-4.07	-2.62	-1.17	-4.12	-2.63	4.76	1.21	0.46
6	500	35.32	1.80	-2.52	35.34	1.84	-2.55	0.05	2.52	1.10
<b>CM/UMT_5L (WUP=1.0)</b>										
4	500	80.47	5.35	-0.28	81.31	5.40	-0.31	1.04	0.90	11.83
6	500	35.32	1.80	-2.52	35.16	1.67	-2.61	0.44	7.22	3.56
9	1000	35.15	4.52	-0.09	35.21	4.53	-0.11	0.16	0.35	16.48

CM/UMT\_5L#6 - MQ -  $S_g\text{-CM}=0.75$  -  $S_g\text{-UMT}=0.25$  -  $v_g=1.12\text{E-}6$   $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$   
(WUP=1.0, NZ=100)

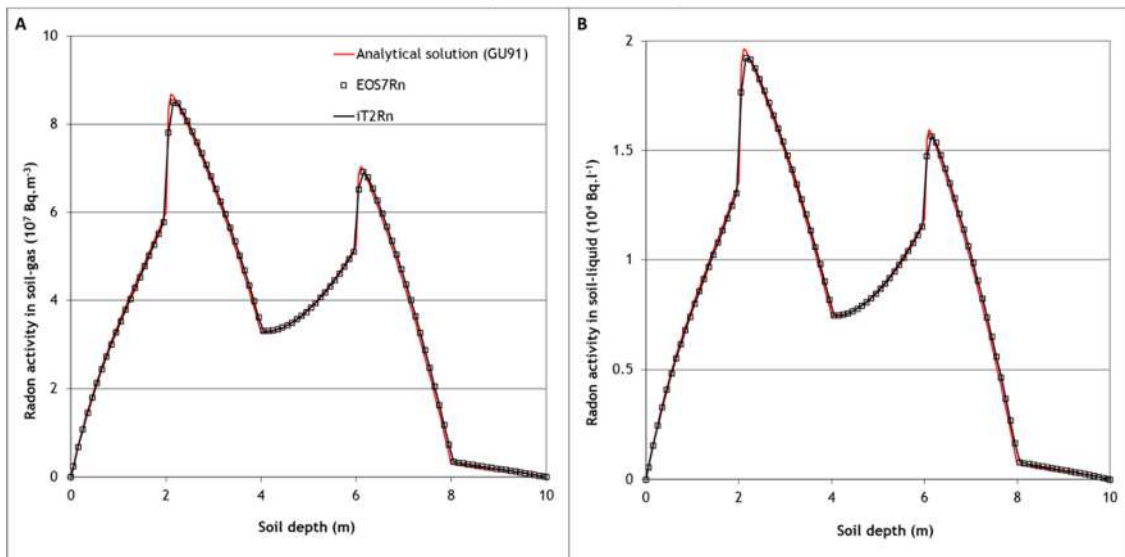


Figure 1-9 – Profils d'activité volumique du radon calculés par la solution numérique (EOS7Rn et T2Rn) et la solution analytique GU91 - Expérience CM/UMT\_5L#6 : A/ Phase gazeuse; B/ Phase liquide.

### 1.5.2 Modèle 1D transitoire de transport du radon dans une colonne verticale bicouche

#### ➤ *Le code TRACI*

Ce code est basé sur la modélisation de l'écoulement isotherme vertical 1D des phases liquide et gazeuse ainsi que le transport vertical du radon dans des milieux poreux non saturés en considérant les conditions météorologiques qui règnent en surface (Ferry, 2000 ; Ferry et al., 2002). Les phases liquide et gazeuse dans le milieu poreux sont assimilées à de l'eau et à de l'air purs, respectivement. Le code TRACI calcule l'évolution temporelle des profils de la pression capillaire et de la teneur en eau ainsi que ceux de la concentration en radon dans les phases liquide et gazeuse et le flux de radon en surface. Les propriétés hydrauliques du milieu poreux non saturé sont modélisées par les équations (1-29), (1-30) et (1-31) et les propriétés de transport du radon telles que l'émanation, l'adsorption et la tortuosité non-saturée sont décrites par les trois équations (1-13), (1-15) et (1-20), respectivement.

Le code TRACI utilise la méthode des différences finies pour la discrétisation spatiale de ces trois équations de conservation de la masse avec possibilité d'un choix entre un schéma totalement implicite ou de Crank-Nicolson pour la discrétisation temporelle. La méthode des différences finies implicite dans le temps choisie pour la résolution numérique des équations de l'écoulement diphasique liquide-gaz est inspirée du schéma numérique développé par Touma et Vauclin (1986).

Le schéma numérique dans TRACI consiste à découpler les équations des écoulements de celle de transport alors que TOUGH2 résout simultanément l'ensemble des équations couplées y compris celle de conservation de l'énergie au cas où le transfert thermique est pris en considération. Contrairement à TOUGH2, qui propose plusieurs options de choix des poids de calcul de la perméabilité et de la mobilité aux interfaces entre les éléments adjacents (inter-nodales ou inter-éléments), TRACI propose une seule option pour les calculer, qu'est la moyenne harmonique. Dans TRACI, le problème de non-linéarité est traité numériquement par la méthode de Picard (méthode de point fixe), qui est moins rapide que la méthode de Newton-Raphson, proposée par TOUGH2, mais plus facile à mettre en œuvre (implémenter). Les conditions de convergence dans TRACI sont assurées par un critère de convergence absolue sur les pressions de chacune des phases. Dans TOUGH2, par contre, on considère deux critères de convergence, absolue et résiduelle, et cela sur l'ensemble des variables primaires. En fin, TRACI propose tout simplement des solveurs directs de systèmes matriciels d'équations linéaires issus de la discrétisation spatio-temporelle des équations de conservation de la masse et de leur linéarisation (LU de Cholesky, GAUSS). En plus des différents solveurs directs proposés par TOUGH2, ce dernier propose également le choix de solveurs itératifs, mieux adaptés à de très grands systèmes matriciels.

Toute la difficulté d'utilisation de la méthode des différences finies utilisée dans TRACI réside dans la difficulté de traiter les problèmes d'interface entre deux couches de milieux poreux ayant des propriétés (physiques, hydrodynamiques, et de transport) très contrastées (e.g., CM/UMT). A titre d'exemple, la teneur en radium à l'interface entre deux couches de sols, suivant la verticale, est attribuée à celle de la couche sous-jacente.

J'ai modifié la version originale du code TRACI de 2002 qui ne considère que le modèle de tortuosité RN (Eq. (1-20)), pour le calcul du coefficient de diffusion du radon en milieu poreux non-saturé, et qui suppose que la vitesse d'écoulement de l'eau est négligeable. En effet, j'ai implémenté les modèles de diffusion de MQ (Eq. (1-19)) et de BUCK (Eq. (1-21)), et introduit une vitesse de Darcy d'écoulement d'eau non nulle dans l'équation de convection-diffusion du radon.

#### ➤ *Benchmark avec le code TRACI*

On considère le modèle de la stalle qui a été étudiée par Ferry (2000) et Ferry et al. (2001, 2002) (Voir ci-après chapitre 2, § 2.2). La stalle est supposée comme une colonne verticale 1D avec superposition d'une couche MC d'épaisseur 1 m sur une couche de RMU de 0.8 m d'épaisseur. Deux expériences numériques ont été appliquées à la colonne en considérant différentes conditions initiales et aux limites (Tableau 1-8). L'expérience #1 correspond à un drainage de l'eau à partir de la colonne avec une pression d'air constante (900 mbar) durant 1 an, et l'expérience #2 correspond à une alternance entre l'infiltration et le drainage de l'eau en considérant des

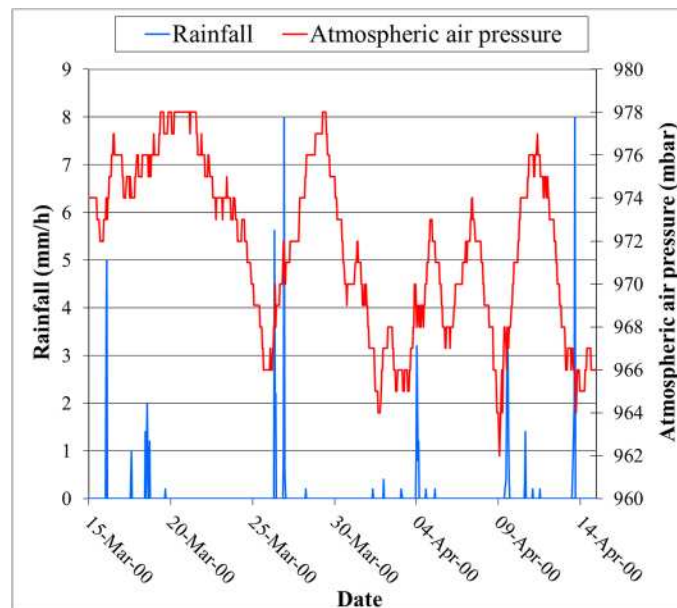
précipitations et une pression atmosphérique variables durant une période de 1 mois (du 15 mars au 15 avril 2000) à la surface du sol (Figure 1-10). Les conditions de précipitations sont telles que le refus d'eau ne se produit pas à la surface de la couche MC. Pour les deux expériences numériques, on suppose une condition de Dirichlet à la limite inférieure de la colonne ( $z = 1.8$  m), soit une pression capillaire constante de 400 mbar (40000 Pa).

**Tableau 1-8 – Conditions initiales et aux limites appliquées à la colonne 1D (CM/UMT) pour les deux expériences numériques #1 and #2.**

Numerical experiment #	Top boundary condition (surface)	Bottom boundary condition (1.8 m)	Initial condition (INCON)
1	<u>Gas</u> : constant air pressure of 900 mbar <sup>a</sup> <u>Water</u> : zero flux <u>Radon</u> : zero concentration	<u>Gas</u> : constant air pressure of 900 mbar <u>Water</u> : suction of -400 mbar <u>Radon</u> : zero concentration	<u>Gas</u> : constant air pressure of 974 mbar <u>Water</u> <sup>b</sup> : saturation profile after drainage <u>Radon</u> <sup>b</sup> : concentration profile after drainage
2	<u>Gas</u> : time-variable atmospheric air pressure (Fig. 1) <u>Water</u> : flux applied by rainfall intensity (Fig. 1) <u>Radon</u> : zero concentration	<u>Gas</u> : time-variable atmospheric air pressure (Fig. 1) <u>Water</u> : suction of -400 mbar <u>Radon</u> : zero concentration	idem #1

<sup>a</sup> 1 mbar = 100 Pa

<sup>b</sup> Calculated by TRACI after a long time-period of water drainage from a saturated soil column



**Figure 1-10 – Précipitations et pressions d'air atmosphérique à la surface de la colonne (MC/RMU) considérées pour l'Expérience#2. Données enregistrées à un pas horaire du 15 mars au 15 avril 2000 à la station météorologique située sur le site de stockage Lavaugrasse (87).**

Les valeurs des paramètres des propriétés hydrauliques (i.e., paramètres des Eqs. (1-29)-(1-31)) et des propriétés du terme source radon (i.e., paramètres des Eqs. (1-7) et (1-13)) des matériaux MC et RMU sont ceux montrées, Tableau 1-4. Les phénomènes d'adsorption et de l'hystérésis ont été négligés.

Les conditions sont isothermes à une température de 25 °C. Ainsi, la valeur du coefficient de diffusion binaire du radon dans l'air en milieu libre  $d_g^{(Rn)}$  (Eqs. (1-2) et (1-22)) est prise égale à  $1.1 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  dans les deux codes

(TRACI et EOS7Rn), et la valeur du coefficient d'Ostwald  $K_{Ost}^{(Rn)}$  (Eq. (1-22)) est prise égale à 0.2263 dans TRACI. Dans EOS7Rn, la valeur du coefficient de diffusion binaire du radon dans la phase liquide en milieu libre  $d_l^{(Rn)}$  (Eq. (1-2)) est prise égale à  $1.0 \times 10^{-9} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ , et les valeurs du coefficient de diffusion binaire de la vapeur d'eau et de l'air dans la phase liquide et la phase gazeuse en milieu libre sont supposées identiques à celles du radon dans l'eau et l'air en milieu libre, respectivement. Les valeurs du coefficient de la loi de Henry pour l'air et le radon par rapport à l'eau liquide (i.e.,  $K_H^{(air)}$  et  $K_H^{(Rn)}$  dans Eq. (1-8)) sont prises égales à  $1.0 \times 10^{10} \text{ Pa}$  (valeur par défaut) et  $0.6068 \times 10^9 \text{ Pa}$  (équivalent de  $K_{Ost}^{(Rn)} = 0.2263$ ), respectivement.

Les simulations sont conduites en utilisant les conditions numériques données, Tableau 1-9. Le schéma de Crank-Nicolson pour la discrétisation du temps pour les termes de désintégration et d'émanation du radon a été choisi pour les simulations avec EOS7Rn, alors qu'un schéma totalement implicite de discrétisation du temps a été choisi pour les simulations avec TRACI. Les deux formulations mathématiques de RN et MQ pour la diffusion du radon dans la colonne non-saturée ont été testées pour réaliser des comparaisons.

**Tableau 1-9 – Récapitulatif des paramètres numériques utilisés par TRACI et TOUGH2/EOS7Rn pour les expériences numériques#1-2.**

	TOUGH2/EOS7Rn	TRACI
Space vertical increment (m)	0.05	0.05
Initial time step (s)	0.1	1800
Minimum time step (s)	-	1800
Maximum time step (s)	1800 <sup>a</sup>	1800
Time step reduction factor in case of convergence failure (-)	4	1
Maximum number of Newtonian iterations (-)	8	20
Convergence criterion for relative error (-)	1.0E-5	0.01
Upstream weighting factor (-)	1	-
Automatic time step control (-)	4 <sup>b</sup>	-
Interface mobility and permeability weighting scheme (-)	UW, HW <sup>c</sup>	- <sup>d</sup>
Interface liquid and gas diffusivities weighting scheme (-)	HW <sup>e</sup>	- <sup>f</sup>

<sup>a</sup> Must be less than 0.01 times half-life time of radon, i.e.,  $3.3 \times 10^3 \text{ s}$  (Oldenburg and Pruess, 1995)

<sup>b</sup> Time step size is doubled if convergence occurs within 4 Newton-Raphson iterations

<sup>c</sup> Mobility upstream weighted (UW); permeability harmonic weighted (HW)

<sup>d</sup> Interface mobility affected to the mobility of the grid block (element) above the interface – No interface permeability required

<sup>e</sup> Separate harmonic weighting (HW) of gas and liquid phase diffusivities

<sup>f</sup> Interface diffusivity affected to the diffusivity of the grid block (element) above the interface

- Expérience#1 : problème de drainage de l'eau

Pour le problème d'écoulement diphasique, l'accord entre les profils de degré de saturation en eau calculés par les deux codes au temps de simulation final 365 jours est remarquable (Figure 1-11a). Le profil de degré de saturation en eau simulé par EOS7Rn surestime légèrement celui calculé par TRACI. Cette surestimation s'observe par exemple au cours des temps transitoires de variation de degré de saturation en eau au voisinage de la surface à  $z = 0.025 \text{ m}$  (premier élément du maillage au contact avec la surface), Figure 1-11b.

Pour le problème de transport du radon, le flux d'exhalation du radon calculé par TRACI surestime celui calculé par EOS7Rn durant toute la période de simulation (Figure 1-11c). Ces différences peuvent atteindre un maximum de  $1.3 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  aux temps transitoires quel que soit le modèle de coefficient de diffusion non-saturé (ou tortuosité) utilisé (MQ ou RN). Elles sont essentiellement attribuées aux faibles différences de degré de saturation en eau entre les deux codes durant les états transitoires, qui peuvent avoir un impact important sur les valeurs du

coefficient de diffusion à l'interface entre deux éléments du maillage, et par conséquent sur le calcul de flux diffusif du radon. Les différences entre les vitesses de pore de gaz à l'interface calculées par les deux codes numériques durant les temps transitoires n'étaient pas substantielles (Saâdi, 2011), et ne peuvent pas expliquer ces différences. Peu de différences ont été trouvées entre les flux de radon convectifs calculés par les deux codes aux interfaces.

Je note cependant une différence importante entre les flux d'exhalation de radon qui peut atteindre un maximum de  $3.0 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$  quand deux formulations différentes du coefficient de diffusion du radon en milieu non-saturé (i.e., RN et MQ) sont considérées dans les calculs, et cela quelle que soit la solution numérique utilisée (TRACI ou EOS7Rn). Pour un modèle de diffusion donné, les différences entre les flux calculés par EOS7Rn et TRACI s'atténuent au fur et à mesure qu'un état d'équilibre est établi au cours du temps, ce qui explique les faibles différences entre les profils de concentration en radon simulés par les deux codes après 365 jours (Figure 1-11d). Les faibles déviations par rapport de l'état initial (INCON) dans le cas de la formulation RN sont évidentes, puisque le profil initial de la concentration en radon a été calculé par TRACI en utilisant la même formulation RN pour la diffusion du radon (Tableau 1-8). Les profils de concentration en radon calculés sont en accord avec les flux d'exhalation de radon calculés. Plus le flux d'exhalation du radon est faible, plus la concentration en radon dans la colonne est importante, et vice versa.

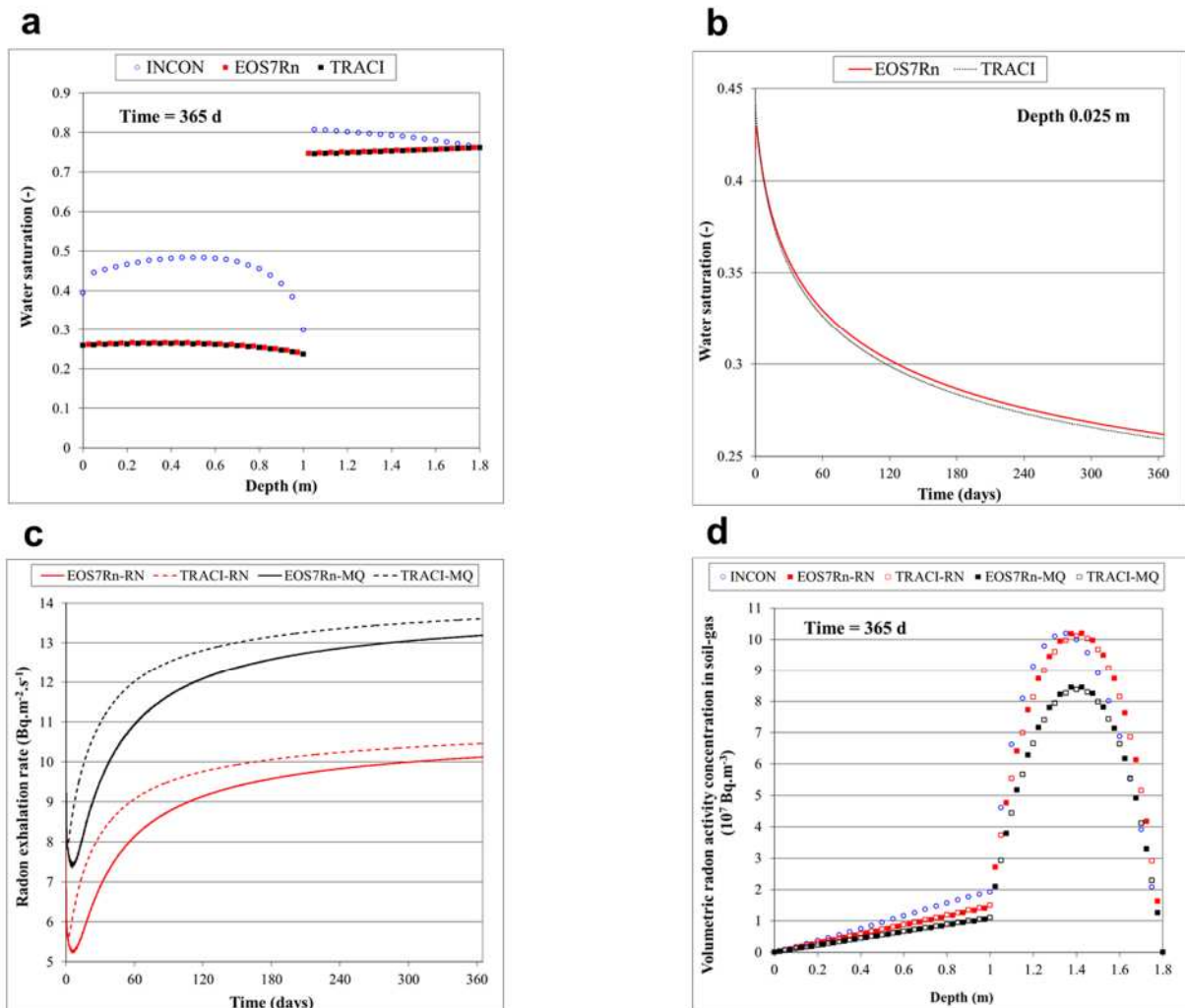


Figure 1-11 - Simulation du drainage de l'eau à partir de la colonne MC/RMU (Expérience#1) durant un an en utilisant les codes EOS7Rn et TRACI, et les modèles de diffusion RN et MQ : a) Profils de degré de saturation en eau; b) Variations temporelles du degré de saturation en eau à  $z = 0.025 \text{ m}$ ; c) Variations temporelles de flux du radon à la surface de MC, et d) Profils de concentration en radon dans l'air du sol. INCON : *Initial CONditions*.



- Expérience#2 : problème d'infiltration et de drainage de l'eau

Pour le problème d'écoulement diphasique, l'accord entre les profils de degré de saturation en eau calculés par TRACI et EOS7Rn après 31 jours ne s'observe qu'au voisinage de la surface de la couverture MC, sur les 50 premiers cm (Figure 1-12a). Les variations dans le temps du degré de saturation en eau à  $z = 0.025$  m (Figure 1-12b) calculées par les deux codes confirment ce résultat. Cependant, des différences importantes sont calculées au voisinage de l'interface et dans la couche RMU. Le code TRACI simule un faible drainage de l'eau initialement présente dans la couche UMT, alors que le code EOS7Rn simule une accumulation ou rétention de l'eau infiltrée dans cette couche.

Ces différences entre les profils de degré de saturation en eau expliquent bien les différences entre les flux d'exhalation du radon (Figure 1-12c) et les profils de concentration en radon (Figure 1-12d) calculés par les deux codes pour l'exemple du modèle MQ pour la diffusion. Plus le degré de saturation en eau est important, plus la concentration en radon est importante, et plus le flux d'exhalation du radon est faible ; et vice versa. Comme précisé dans l'Expérience#1, même des différences faibles en degré de saturation en eau peuvent avoir un impact important sur les résultats des simulations de transport de radon dans la colonne. La différence substantielle entre les profils de degré de saturation en eau peut être expliquée par les approximations numériques différentes utilisées par chaque code pour résoudre le problème de l'interface (Tableau 1-5) entre deux milieux poreux à propriétés très contrastées (i.e., interface MC/RMU) durant le processus de l'infiltration (Saâdi, 2011, 2013).

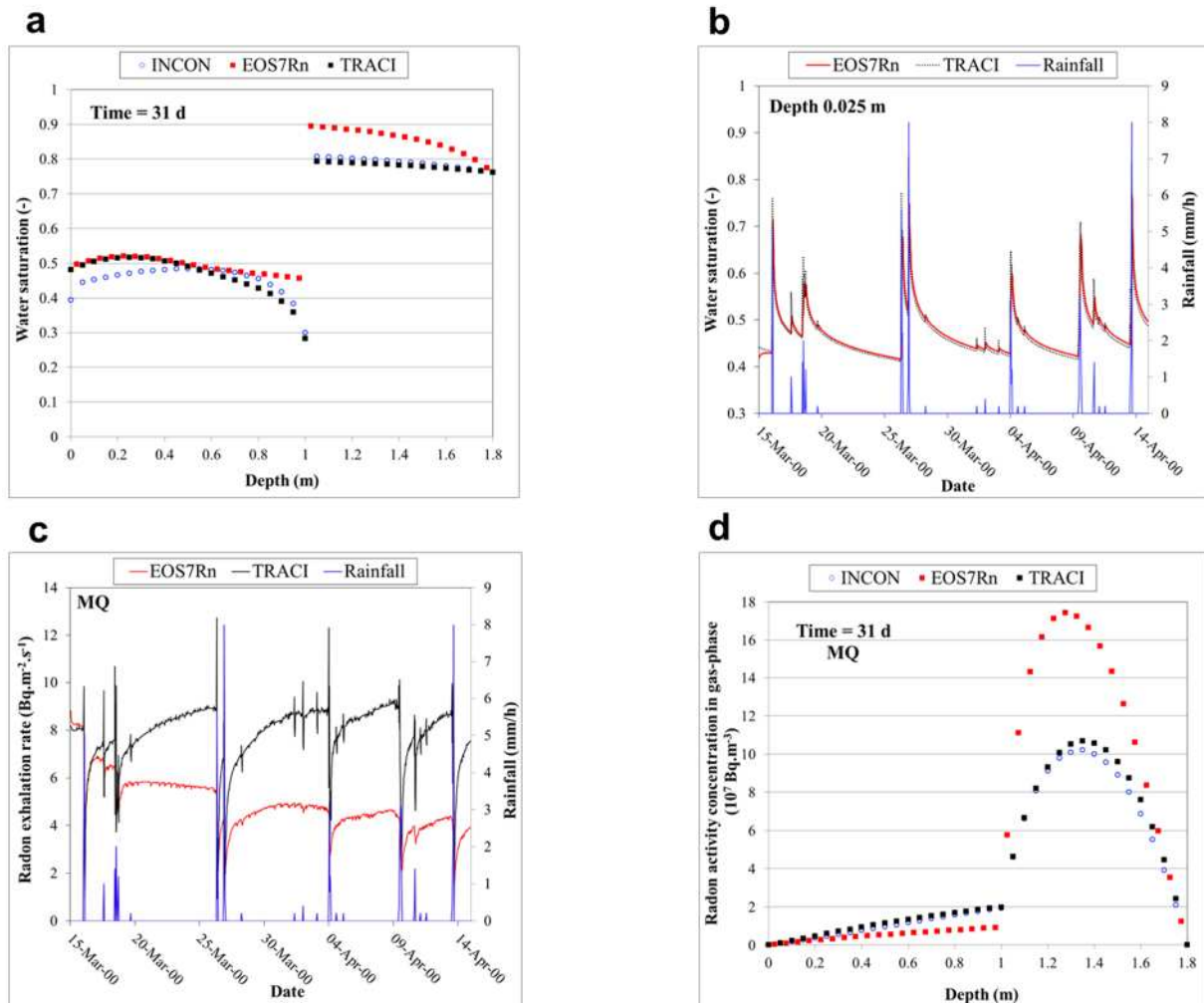


Figure 1-12 - Simulation de l'infiltration et du drainage (colonne MC/RMU ; Expérience#2) durant 31 jours en utilisant les codes EOS7Rn et TRACI et le modèle de diffusion MQ : a) Profils de degré de saturation en eau ; b) Variations temporelles du degré de saturation en eau à  $z = 0.025$  m, c) Variations temporelles de flux du radon à la surface de MC, et d) Profils de concentration en radon dans l'air du sol. INCON : *Initial Conditions*.

Il est difficile de savoir lequel des deux codes numériques calcule le meilleur résultat pour l'Expérience#2, puisqu'il n'existe pas de solution analytique ou semi-analytique, qui permet de résoudre ce problème mathématique de l'écoulement 1D diphasique et de transport du radon dans une colonne non-saturée bicouche, sujette à des conditions initiales hétérogènes et des conditions aux limites dépendantes du temps (Tableau 1-8). La seule solution pour trancher sur ce benchmark est de confronter les deux codes à des données expérimentales ; d'où l'intérêt de l'étude qui sera présentée dans le chapitre 2.

### 1.5.3 Modèles 1D transitoires en milieu géothermique (benchmark avec le code EOSN)

La particularité des codes EOS7Rn et T2Rn est qu'ils peuvent également être appliqués pour les autres gaz nobles. Il suffit de changer les propriétés du radon par celles des gaz nobles stables (Hélium, Néon, Xénon, Argon, Krypton...).

Dans ce qui suit, on démontre les effets de la température sur le transport du radon en milieu géothermique dans le cadre de deux problèmes transitoires, sous différentes conditions initiales et aux limites, en utilisant EOS7Rn. Ces deux problèmes ont été précédemment présentés par Shan et Pruess (2003, 2004) pour simuler le transport des gaz nobles (excepté le radon) en régimes instationnaire et non-isotherme dans des milieux poreux non saturés représentatifs de réservoirs géothermiques, en utilisant le module TOUGH2/EOSN. Pour ces deux problèmes, les simulations sont réalisées sans adsorption, avec et sans dépendance en la température des coefficients de la loi de Henry et de diffusion dans la phase gazeuse en milieu libre (Eqs. (1-17) et (1-23), respectivement), et avec le modèle MQ (Eq. (1-19)) pour le calcul du facteur de tortuosité non-saturée. Les valeurs des coefficients de diffusion de l'air et du radon dans la phase liquide en milieu libre sont prises constantes et égales à  $1.0 \times 10^{-9} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ , puisque les Eqs. (1-26) et (1-28) ne peuvent pas être appliquées pour des conditions de température et de pression élevées (Figure 1-2(d)). Les valeurs des paramètres du potentiel LJ du radon prises de Gopal (1962) ont été choisies pour la diffusion du radon dans la vapeur d'eau saturante (Tableau 1-3), afin d'être consistant avec l'approche théorique choisie par Shan et Pruess (2003, 2004) pour les autres gaz nobles. L'adsorption des gaz à la matrice solide est supposée négligeable.

Les résultats des simulations de ces deux problèmes par le code T2Rn sont identiques à ceux obtenus par le code EOS7Rn. D'où, l'intérêt de ne présenter que ceux issus des calculs par EOS7Rn.

#### ➤ *Problème 1 : transport du radon dans un réservoir géothermique vers un puits d'extraction*

Un puits au centre d'un réservoir géothermique est supposé produire à un taux constant de 20 kg/s. Le réservoir, d'une épaisseur de 500 m, est supposé homogène et isotrope de telle sorte à créer un écoulement radial (Figure 1-13a). Les propriétés physiques et hydrauliques de ce réservoir sont prises de Pruess et al. (2000). Une condition de Neumann à flux nul est fixée à une distance radiale de 1000 m.

Les conditions initiales pour la pression de gaz, le degré de saturation en gaz, la température, et les fractions massiques du *brine*, du radon et d'un traceur non radioactif dans la phase liquide (aqueuse) sont données dans le Tableau 1-10. Ce dernier composant possède des propriétés physiques et une fraction massique initiale identiques à celles du radon. Cette dernière a été estimée en supposant les concentrations en radon dans les phases liquide et gazeuse du réservoir géothermique en équilibre, avec une émanation à partir de la formation rocheuse du réservoir.

La roche du réservoir possède une activité massique en radium  $C_s^{226\text{Ra}}$  égale à 55.5 Bq/kg et un coefficient d'émanation  $E$  égal à 0.1 (Semprini et Kruger, 1983). L'hypothèse d'une émanation constante du radon a été vérifiée sous conditions expérimentales d'une vapeur surchauffée au-dessus d'une fraction de pression de vapeur saturante de 0.5 (Satomi et Kruger, 1982). Le domaine du réservoir est discrétisé en 31 éléments le long de l'axe radial et le processus de production est simulé sur une durée de 30 ans.



Les résultats de variation dans le temps des fractions massiques du radon et du traceur dans la phase gazeuse au puits de production sont montrés dans le graphe log-log de Figure 1-14a. Les effets thermiques sont négligeables dans ce problème puisque les gradients de température dus aux variations de la densité et de la pression de la phase gazeuse sont faibles (Shan et Pruess, 2003, 2004). Pour le traceur, EOS7Rn simule les mêmes résultats que pour les gaz nobles stables Ne et Xe (voir Fig. 2 de leur article). Contrairement au traceur, la réponse de la concentration en radon montre l'influence des propriétés du terme source du radon et du terme puits d'extraction sur le changement des conditions thermodynamiques (rééquilibrage). Pour le radon, on peut distinguer trois régimes de variation dans le temps de la concentration en radon dans le puits : (i) régime avec essentiellement une décroissance linéaire aux premiers temps ; (ii) régime stationnaire aux temps intermédiaires; et (iii) régime avec une croissance linéaire aux temps ultérieurs. Les deux régimes linéaires dans le temps peuvent s'expliquer par un processus de dilution de premier ordre aux premiers temps, et par un processus d'accumulation de premier ordre dominant aux temps ultérieurs. Ces régimes sont compatibles avec l'émanation du radon dans la vapeur condensée et la propagation d'une zone d'ébullition dans le réservoir (Semprini et Kruger, 1983).

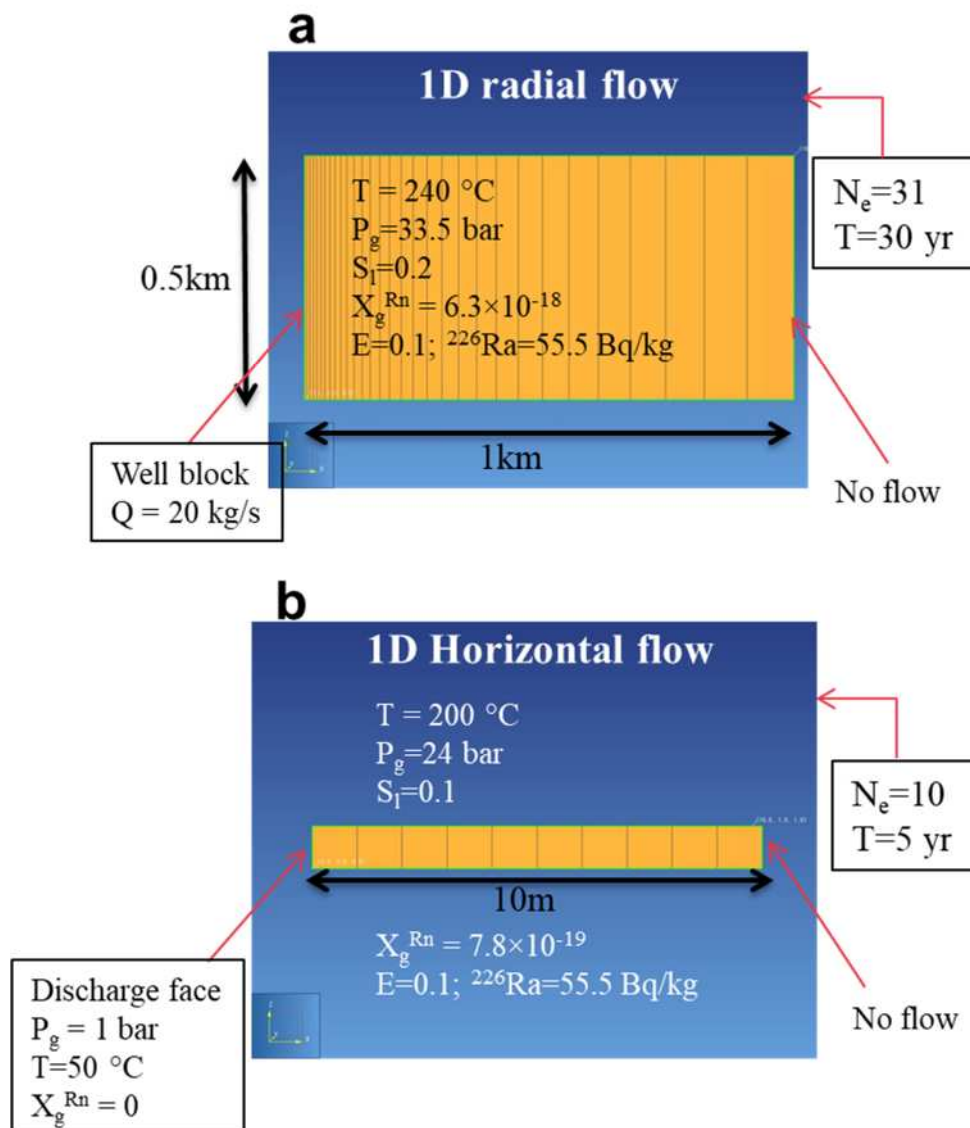
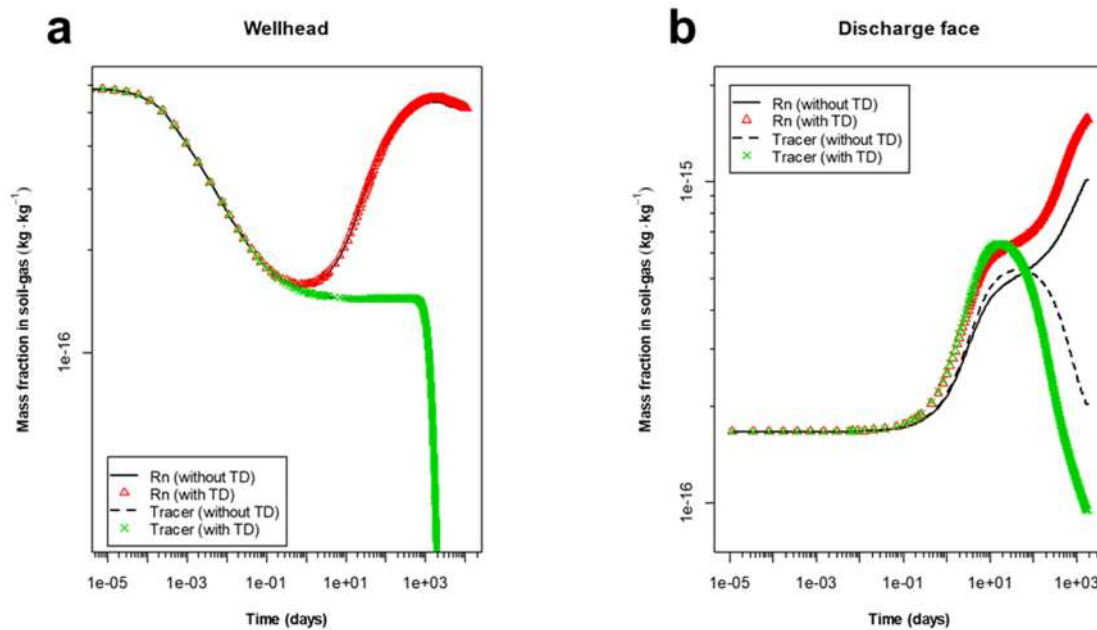


Figure 1-13 – a) Problème du réservoir géothermique radial avec un puits d'extraction. b) Problème 1D d'une colonne de roche poreuse horizontale soumise à un fort gradient thermique.

**Tableau 1-10 – Valeurs initiales des variables primaires utilisées dans EOS7Rn pour étudier les deux problèmes proposés par Shan et Pruess (2003, 2004).**

Sample problem	Geothermal reservoir	Horizontal column
Temperature (°C)	240	200
Gas pressure (bar)	33.479	24
Gas saturation (-)	0.2	0.1
Brine aqueous mass fraction (-)	1.00E-12	1.00E-12
Radon aqueous mass fraction (-)	6.3217E-18	7.8008E-19
Tracer aqueous mass fraction (-)	6.3217E-18	7.8008E-19



**Figure 1-14 – Fractions massiques du radon et du traceur gazeux produits dans la phase gazeuse. a/ En tête du puits (*wellhead*) du réservoir géothermique durant 30 ans de production (problème 1). b/ A la frontière de décharge (*discharge face*) de la colonne de roche poreuse horizontale durant 5 ans (problème 2). TD : Dépendance en la température (*Temperature Dependence*) des coefficients de la loi de Henry et de diffusion dans la phase gazeuse.**

➤ **Problème 2 : transport non isotherme du radon dans une colonne 1D horizontale (roche poreuse) soumise à un fort gradient thermique**

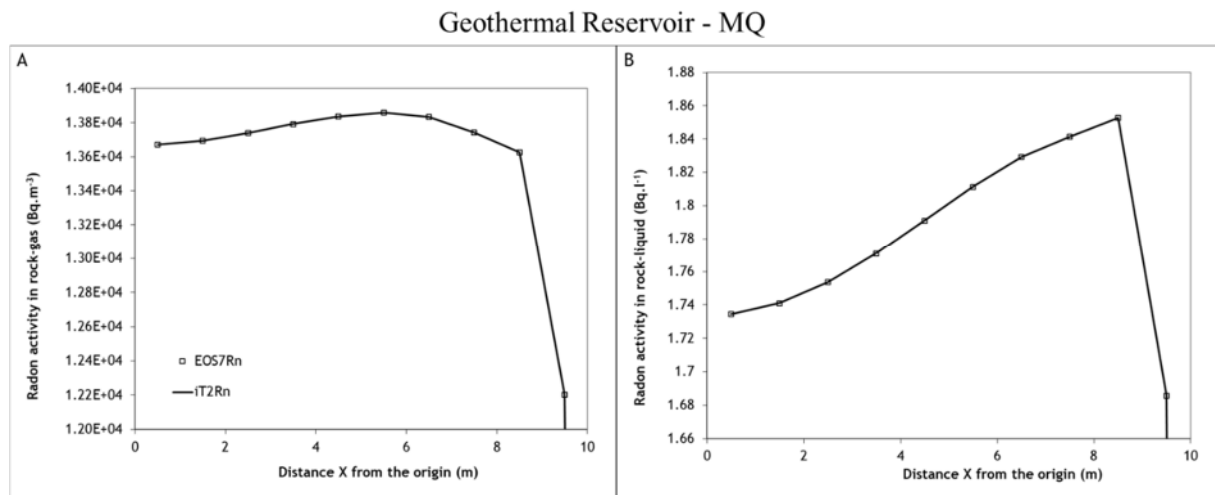
Il s'agit ici de simuler le problème de transport 1D du radon dans une colonne de roche homogène horizontale de 10 m de longueur représentative d'un réservoir géothermique soumis à un fort gradient thermique (Figure 1-13b). Les propriétés du terme source radon de la roche (i.e., activité massique en radium et coefficient d'émanation) sont identiques à celles décrites dans le problème 1. Les propriétés physiques et hydrauliques de cette roche sont celles décrites dans Shan et Pruess (2003). Les conditions d'équilibre initiales pour la pression de gaz, le degré de saturation en gaz, la température, et les fractions massiques du *brine*, du radon et d'un traceur non radioactif dans la phase liquide sont données dans le Tableau 1-10. La valeur de la fraction massique du *brine* dans la phase liquide correspond à celle prise dans le problème 1. En revanche, les fractions massiques du radon et du traceur gazeux dans la phase liquide ont été recalculées en utilisant les nouvelles valeurs du degré de saturation en eau (Tableau 1-10) et de la porosité.

Une pression de 1 bar, une température de 50°C et une concentration en radon nulle sont appliquées à la surface de l'une des frontières de la colonne, où, de telle sorte à extraire la masse et la chaleur à cette surface (*discharge*

face). Une condition de flux nul est appliquée sur l'autre frontière de la colonne. Le domaine est maillé en 10 éléments et le processus est simulé pour 5 ans.

La Figure 1-14b montre les graphes log-log des fractions massiques du radon and du traceur dans la phase gazeuse à la frontière de décharge en fonction du temps. Les résultats pour le traceur gazeux sont identiques à ceux obtenus par Shan et Pruess (2003, 2004) pour les deux gaz nobles stables Ne et Xe (voir Fig. 3 de leur article). Aux premiers temps transitoires, le radon se comporte comme le traceur gazeux, que les simulations soient réalisées avec ou sans dépendance en la température, mais les deux composants gazeux commencent à se comporter différemment aux temps ultérieurs. En effet, la fraction massique du traceur dans la phase gazeuse atteint son maximum lorsque sa diffusivité atteint son maximum à la température finale ( $\sim 50\text{ }^{\circ}\text{C}$  ; Figure 1-2c), puis diminue rapidement. Contrairement au traceur, la fraction massique du radon continue à augmenter avec le temps, à cause du processus de sa production par émanation. Le taux d'augmentation est beaucoup plus important quand l'effet thermique est pris en compte.

Les profils de concentration en radon dans les phases gazeuse et liquide de la roche calculés après 5 ans par les codes EOS7Rn et T2Rn sont également présentés dans la Figure 1-15a et la Figure 1-15b, respectivement. Ces illustrent bien le bon accord entre les deux solutions numériques issues de ces deux codes ainsi que la bonne implémentation des propriétés de transfert du radon dans la plateforme logicielle TOUGH2.



**Figure 1-15 – Profils d'activité volumique du radon simulés après 5 ans par EOS7Rn et T2Rn pour le cas du problème 2 (MQ pour la diffusion) : A/ dans la phase gazeuse de la roche, B/ dans la phase liquide de la roche.**

## 1.6 Conclusion

Ce qu'il faut retenir :

- En régime d'écoulement stationnaire et isotherme, les deux nouveaux codes EOS7Rn et T2Rn développés ont été vérifiés numériquement à travers des études de transport du radon en milieu stratifié. De même, ces deux codes ont été vérifiés numériquement à travers des études de transport du radon en milieu poreux homogène instationnaire et non-isotherme (e.g., réservoir géothermique). Ce qui prouve que les anciennes et les nouvelles propriétés de transfert du radon ont été bien implémentées dans les deux codes ;
- Toutefois, pour un écoulement transitoire en milieu stratifié à deux couches, il s'est avéré que deux codes de calcul utilisant des modèles d'écoulement et de transport du radon en milieu diphasique liquide-gaz différents (e.g., compositionnel (eau-air-radon) pour TOUGH2/EOS7Rn ou T2Rn, et à 1 seul composant

(radon) pour TRACI) et des méthodes numériques différentes (volumes finis pour TOUGH2 et différences finies pour TRACI) obtiennent des résultats très différents lorsque les conditions aux limites aux frontières du domaine sont dépendantes du temps. Cette différence est due aux approximations faites aux propriétés hydrodynamiques et de transfert à l'interface entre deux couches de propriétés très contrastées ainsi qu'aux discrétisations différentes des conditions aux bords faites par ces deux codes.

Ce qu'il faut résoudre :

- En conséquence des résultats obtenus par les deux codes TRACI et T2Rn, leur comparaison avec des données expérimentales reste la seule solution pour trancher quant aux limites et avantages de leur applications, et pour proposer leur amélioration de point de vue numérique et/ou physique des transferts.



## 2. Etude de transport du radon dans un site de stockage de résidus miniers d'uranium vers l'atmosphère

### Abstract

*This chapter presents numerical modelling of a pond experiment typical of the landfill site Lavaugrasse in France (Ferry, 2000; Ferry et al., 2001, 2002), which consists of the study of radon transport in a two layered porous medium (uranium mine waste rock material covering uranium mill tailings material). This study allowed us to validate the numerical model developed based on T2Rn, and to compare its results to those from another finite difference code (Ferry, 2000). Based on a sensitivity analysis on the diffusion coefficient of radon in unsaturated porous media (calculated from different physical and empirical unsaturated tortuosity factors), this study allowed us, on the one hand, to explain differences between results from two models based on two physical approaches and two different numerical methods, and on the other hand to identify their advantages and disadvantages, and their limited applications. In addition, the main processes that need to be enhanced for simulating radon transport in a landfill site have been identified.*

Ce chapitre présente la modélisation d'une expérimentation réalisée par Ferry (2000) et Ferry et al. (2001, 2002) pour étudier les phénomènes de transport du radon dans une stalle (couche de stérile minier couvrant un résidu minier issu du traitement des minerais d'uranium), représentative du site de stockage des résidus miniers Lavaugrasse (87). Cette étude a permis de valider le modèle développé à base du code T2Rn et de confronter ses résultats à ceux d'un autre modèle à base d'un code aux différences finies 1D (Ferry, 2000). S'appuyant sur une étude de sensibilité sur le coefficient de diffusion de radon en milieu non saturé (calculés par différents modèles de tortuosité physiques et empiriques), cette étude a permis, d'une part d'expliquer la différence entre les résultats issus de ces deux modèles basés sur deux approches physiques et deux méthodes numériques différentes, et d'autre part d'identifier leurs avantages et leurs limites d'application. Enfin, les phénomènes prépondérants à prendre en compte pour améliorer les modèles de transport du radon dans un site de stockage de résidus miniers ont également été identifiés.

### 2.1 Introduction et revue synthétique

Les résidus issus du traitement des minerais d'uranium (RMU) contiennent du  $^{226}\text{Ra}$  en quantités relativement importantes. Les RMU stockés en surface, généralement à l'emplacement des anciens sites d'exploitation minière, sont recouverts par une ou plusieurs couches de matériaux peu radioactifs. Afin d'estimer au mieux la voie aérienne d'impact sur l'environnement des stockages de résidus, en particulier en ce qui concerne le long terme, il est nécessaire de déterminer et de comprendre les mécanismes qui contrôlent l'émission du radon à la surface d'un milieu soumis aux contraintes météorologiques.

Les premières études de transport transitoire du radon *in situ* dans les sites de stockage des RMU remontent aux travaux réalisés au début des années 1980 par Simmons et Gee (1981), Mayer et al. (1981), Mayer et Gee (1983), Gee et al. (1984). En effet, ces travaux ont montré l'importance de l'évolution à long terme de la teneur en eau du sol dans les simulations numériques pour prédire l'évolution à long terme de la concentration en radon dans la phase gazeuse du sol et le flux d'exhalation du radon en surface connaissant l'historique de l'évolution à long terme du climat sur le site. Dans ces travaux, cependant, l'approximation de Richards pour l'écoulement diphasique eau-air a été utilisée et aucune comparaison modèle-expérience n'a été suggérée.

Des solutions analytiques exactes pour des conditions d'écoulement diphasique stationnaire en surface ont été proposées par ces auteurs. L'objectif était de réduire les flux mesurés en surface en ajoutant des couvertures sur les RMU.

Ces études se sont poursuivies par les travaux de **Rogers et Nielson** au début des années 1990 (Rogers et Nielson 1991a, b). Ces travaux sont très importants puisque le modèle mathématique de transport du radon en milieux poreux non saturés qu'ils ont développé était bien formulé à travers les équations empiriques décrivant les mécanismes physiques de transfert décrites précédemment (cf. § 1.2). Cependant, leur modèle numérique de transport du radon était monodimensionnel vertical, basé uniquement sur un écoulement stationnaire diphasique liquide-gaz.

Les travaux de recherche de Ferry (2000) et Ferry et al. (2001, 2002) réalisés au sein de l'IRSN représentent les rares études de comparaison modèle-expérience en conditions météorologiques variables en surface, avec prise en compte de l'écoulement diphasique eau-air dans la modélisation du transport advectif-diffusif du radon dans un site de stockage des RMU. Leurs expériences de mesure du radon dans des lysimètres et une stalle artificielle (représentative d'un site de stockage) instrumentés contenant du RMU non couvert ou couvert par du stérile minier (MC), sur une durée de 4 ans (décembre 1997 à septembre 2000), consistait à étudier l'efficacité de la couverture MC sur la réduction de flux du radon en surface. Ces expériences leur avaient permis de caractériser ces deux matériaux et d'étudier le transport du radon sur le site de stockage couvert des RMU de Lavaugrasse (87) (Haute Vienne, France). Durant ces expériences un suivi demi-heure à heure des conditions climatiques et hydriques des matériaux MC et RMU a été réalisé. Pour simuler ces expériences, ils ont développé un code monodimensionnel 1D vertical aux différences finies appelé **TRACI (Transport de Radon dans la Couche Insaturée)** qui résout les équations couplées de l'écoulement des deux phases eau et air à l'équation de transport convectif-diffusif du radon en conditions d'écoulement contrôlées ou de pluie efficace en surface.

Pour l'expérience de la stalle, même si les paramètres de forme et d'échelle des propriétés hydrauliques de MC et de RMU ont été calibrés pour prendre en compte le compactage de MC et la fissuration du RMU durant les périodes estivales, le code TRACI a souvent surestimé les flux transitoires d'exhalation du radon mesurés à la surface du milieu bicouche MC/RMU et de RMU non couvert. Pour l'expérience de RMU non couvert, ces auteurs ont expliqué cette surestimation de flux, en particulier durant les périodes de drainage de l'eau après une période pluvieuse prolongée, par la non prise en compte dans leur modèle du phénomène d'hystérésis lors de l'alternance de la fissuration et du gonflement de RMU. D'autres mécanismes, comme l'effet thermique sur l'évaporation de l'eau en surface, la rosée sur l'humidité du sol et les écoulements latéraux (modélisation 3D) ont été négligés et rarement discutés malgré leur importance. Ces approximations sont dues aux limites d'application du code TRACI qui ne résout que des problèmes 1D isothermes avec des conditions aux limites simplifiées en surface.

En revanche, à part ces effets négligés, aucune étude de sensibilité n'a été performée par Ferry (2000) et Ferry et al. (2001, 2002) pour choisir le modèle mathématique adéquat de diffusion du radon dans les matériaux MC et RMU non saturés. Ces auteurs ont supposé que seule la fameuse formule empirique de Rogers et Nielson (1991a) (RN) peut représenter ces milieux poreux, alors que les travaux de Van der Spoel (1998), Meslin et al. (2010) et Saâdi (2014) prouvent qu'elle est spécifique aux milieux poreux étudiés par Rogers et Nielson (1991b). En plus, la vérification numérique du code TRACI pour simuler le transport transitoire du radon dans des milieux hétérogènes à plusieurs strates n'a pas été réalisée. Comme montré par Ferry (2000), même la vérification numérique des problèmes 1D diphasique eau-air et de transport du radon en milieu poreux homogène n'était pas très convaincante puisque la comparaison était limitée à des données numériques provenant de la littérature.

L'objectif de ce chapitre est de mettre en lumière certaines lacunes dans la modélisation des transferts du radon dans les sites de stockage des RMU à travers une étude synthétique de modélisation de l'expérience de la stalle. L'idée est de comparer les mesures disponibles de flux d'exhalation en surface et de concentrations en radon dans les matériaux constituant la stalle, qui n'ont pas été exploitées précédemment par Ferry (2000), avec les calculs issus des codes TRACI et T2Rn ou EOS7Rn qui utilisent des EDPs et méthodes numériques différentes, en considérant différents modèles de diffusion en milieu poreux non saturé, cela afin d'en extraire les résultats majeurs qui permettent d'améliorer les incertitudes sur le calcul à long terme des flux d'exhalation du radon à la surface d'un site de stockage de RMU.

## 2.2 Site de Lavaugrasse - domaine de la stalle – protocole expérimental

Le domaine d'étude correspond à la stalle, c'est une planche d'essai dont la géométrie est présentée sur la Figure 2-1 en haut, elle présente les dimensions 14 m x 15 m, elle a été construite sur le site industriel de COGEMA (actuellement nommée ORANO NC) situé à Bessines-sur-Gartempe (87), Massif central. La stalle, dont la phase de construction est montrée dans la Figure 2-1 en haut, était isolée de la terre par une membrane imperméable. Une couche de drainage de 30 cm d'épaisseur contenant du gravier et une membrane de géotextile était installée au-dessous du système expérimental. La stalle était conçue pour reproduire une installation de stockage de résidus miniers à une petite échelle et d'étudier l'efficacité de la couverture. Dans un premier temps, les densités de flux de radon ont été étudiées à la surface d'une couche du résidu minier (RMU) de 0.8 m d'épaisseur (Figure 2-1 en bas). Dans un second temps, une couche de stérile minier, appelée matériau de couverture (MC), de 1 m d'épaisseur, compactée tous les 0.6 m, était placée sur la première couche du RMU pour étudier son impact sur les flux d'exhalation du radon provenant de cette dernière. La géométrie finale de la stalle est décrite dans la Figure



2-1b. Les matériaux RMU et MC provenaient du site d'extraction de l'uranium de Jouac (COGEMA), situé à 40 km de Bessines-sur-Gartempe (87). Le sol RMU était produit par traitement de l'uranium à Jouac, et le sol MC, utilisé comme couche de couverture, consistait en la fraction fine ( $\leq 50$  mm) de déchets de roches écrasées par les activités minières. Ces deux matériaux possèdent des propriétés physiques très différentes et sont assimilés à des sols du milieu naturel avec une texture fine. Le sol MC est caractérisé comme un sable limoneux et le sol RMU est caractérisé comme un limon.

L'instrumentation de la stalle pour la mesure en continu des variables d'écoulement (pression capillaire et teneur en eau aux différentes profondeurs) et de transport du radon (concentration en radon dans la phase gazeuse aux différentes profondeurs et le flux du radon en surface) est décrite en détail dans Ferry (2000) et Ferry et al. (2002) et Saâdi et Guillevic (2016).

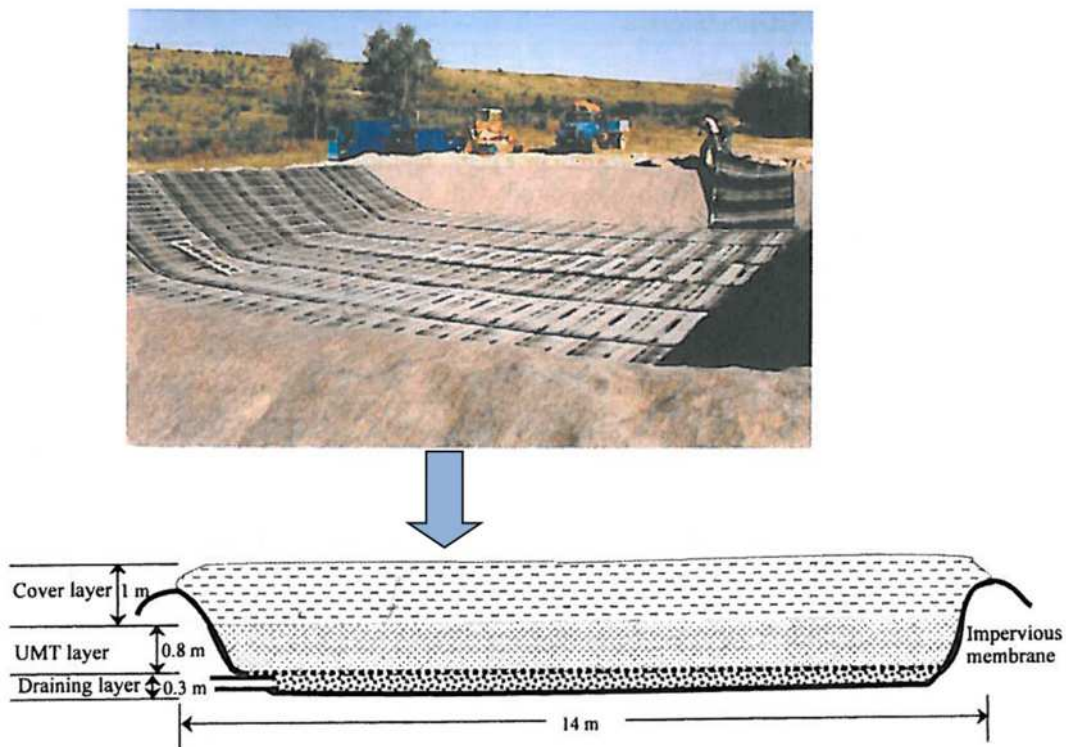


Figure 2-1 – En haut : schéma du principe de l'expérience de la stalle et sa réalisation. En bas : Couche de couverture CM (*Cover layer*), couche du résidu minier d'uranium RMU (*UMT layer*), couche de drainage (*Draining layer*) et membrane imperméable (*Impervious layer*). D'après Ferry et al. (2002).

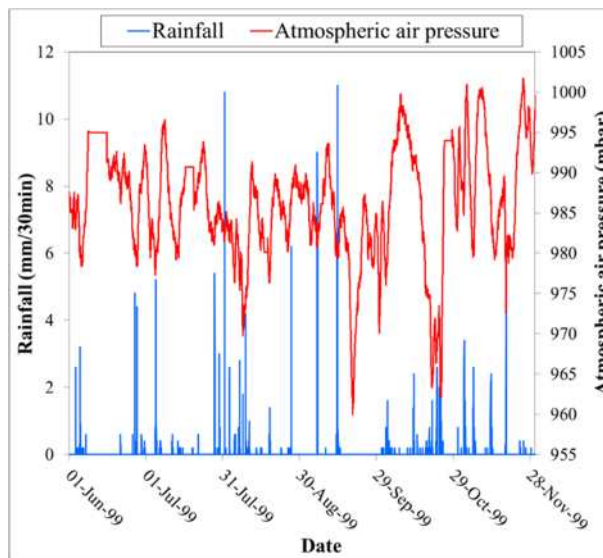
### 2.3 Simulation de transport du radon dans la stalle : TRACI vs T2Rn vs expérience

Dans cette sous-section on décrira en particulier la comparaison des résultats de simulation obtenus par le code T2Rn (i.e., *TOUGH2 for Rn*) avec ceux issus du code TRACI et avec les données expérimentales de concentration en radon dans les matériaux MC et RMU de la stalle et de flux d'exhalation du radon à la surface du MC. La comparaison des résultats obtenus par le code EOS7Rn avec ceux obtenus par le code TRACI et avec ces mêmes données expérimentales, sont décrites en détails dans Saâdi et Guillevic (2016). Nous avons vérifié que les simulations par le code EOS7Rn diffèrent peu de celles obtenues par le code T2Rn.

Je me suis limité aux données climat et radon disponibles du 1<sup>er</sup> juin au 30 novembre 1999 au moment où l'épaisseur de 0.8 m de la couche RMU (*UMT*) dans la stalle était uniquement couverte par la couche de 0.5 m d'épaisseur de la couche CM. Ainsi, seules les mesures de flux d'exhalation du radon à la surface de CM et de la concentration en radon dans la phase gazeuse aux profondeurs 0.25 et 0.5 m ont été considérées dans cette comparaison.



La stalle est modélisée comme une colonne verticale bicouche (MC/RMU ou CM/UMT) de hauteur de 1.3 m. Seules les données de la pression d'air atmosphérique et des précipitations enregistrées toutes les demi-heures durant 6 mois (Figure 2-2) à la station météorologique située sur le site de Lavaugrasse ont été prises en compte à la surface. Les événements d'évaporation du sol ont été négligés, puisque ni les données d'évaporation à partir de la couverture du sol MC nu, ni les données alternatives permettant de l'estimer (i.e. température de l'air, la radiation solaire, vitesse de vents, humidité relative ; cf. § 1.4.1) n'étaient disponibles durant cette période. L'effet de la rosée (*dewing effect*) a été également négligé. La condition à la limite inférieure est supposée à pression capillaire constante de 400 mbar.



**Figure 2-2 – Données de précipitations et de pression atmosphérique de l'air utilisées pour la simulation de l'expérience de la stalle. Données enregistrées toutes les demi-heures du 1<sup>er</sup> juin au 30 Novembre 1999 à la station météo localisée sur le site de Lavaugrasse (87).**

Pour les deux matériaux MC et RMU, les propriétés hydrodynamiques sont décrites par les Eqs. (1-29), (1-30) et (1-31) et les propriétés du terme source radon sont décrites par les Eqs. (1-13), (1-15) et (1-20). Les paramètres associés à ces équations sont les mêmes données dans le Tableau 1-4. Les conditions d'écoulement sont supposées isothermes à la température de l'air atmosphérique moyenne sur la durée de six mois (i.e., 15 °C). Ainsi, le coefficient de diffusion dans les phases liquide et gazeuse en milieu libre, le coefficient de la loi de Henry (ou coefficient d'Ostwald) pour la vapeur d'eau, le radon et l'air (Tableau 2-1) ont été prises à leurs valeurs mesurées si disponibles ou calculées en utilisant des relations empiriques (cf. § 1.3.2)) pour cette température d'air atmosphérique et pour la pression atmosphérique de l'air moyenne (986.84 mbar).

L'adsorption du radon à la matrice solide, l'hystérésis et le rétrécissement du RMU ont été négligés.

**Tableau 2-1 – Valeurs des coefficients de diffusion binaire des constituants gazeux (vapeur d'eau, radon et air) dans les phases liquide et gazeuse en milieu libre ainsi que les coefficients de la loi de Henry (ou Ostwald) correspondant par rapport à l'eau liquide pour la température moyenne de l'air de 15 °C à pression atmosphérique.**

T = 15 °C		Binary diffusion coefficient (m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> )		Henry's law Coefficient (10 <sup>9</sup> Pa)	Ostwald Coefficient (-)
Phase		Liquid (water)	Gas (air)	Liquid (water)	
Component	Water vapor	1.92E-09	2.35E-05	-	-
	Radon	1.25E-09	1.03E-05	0.441	0.3016
	Air	1.59E-09	1.94E-05	8.231	-

Les simulations ont été réalisées par le même schéma numérique de pondération dans le temps du terme source radon et les paramètres numériques donnés dans le Tableau 1-9 (cf. § 1.5.2). En revanche, dans cette étude une analyse de sensibilité a été réalisée en testant les différents modèles de coefficient de diffusion du radon en milieu poreux non-saturé, i.e., RN, BU, and MQ.

### 2.3.1 Simulation de l'écoulement de l'eau (degré de saturation en eau)

Les données de teneur en eau et de pression capillaire mesurées dans les différentes profondeurs de la stalle sols n'étaient pas exploitables dans le cadre de la thèse de Ferry (2000) puisqu'elles étaient sujettes à de grandes incertitudes. En effet, le décollement des tensiomètres durant les périodes sèches ne permettait pas de bonnes mesures en continu de la pression d'eau dans les MC et le RM. C'est la raison pour laquelle les propriétés hydrodynamiques (Eqs. (1-29), (1-30), et (1-31)) de ces deux matériaux ont été initialement estimées à partir de la texture (cf. § 1.5). Une réévaluation de certains paramètres, en particulier la perméabilité intrinsèque et le paramètre d'échelle de la pression capillaire, a été nécessaire pour simuler le flux d'exhalation et la concentration en radon en profondeur mesurés.

Afin de s'assurer de la bonne simulation de l'écoulement de l'eau par le code T2Rn, celui-ci a été confronté au code EOS7Rn (test de non-régression). D'après la Figure 2-3 on constate que le code T2Rn simule parfaitement les variations temporelles de la teneur volumique en eau calculées par le code EOS7Rn, que ce soit au voisinage de la surface du sol dans le MC (profondeur  $z = 0.025$  m, Figure 2-3A), où les amplitudes de variation de la teneur volumique en eau sont très importantes, ou, que ce soit dans le RM à la profondeur  $z = 0.725$  m (Figure 2-3B) où l'écoulement de l'eau est très lent.

Les différences de degré de saturation en eau entre les deux codes s'observent essentiellement durant les périodes de drainage de l'eau après des événements pluvieux. Toutefois, ces différences sont très faibles et laissent présager que le code T2Rn permet de bien simuler l'écoulement de l'eau dans la stalle.

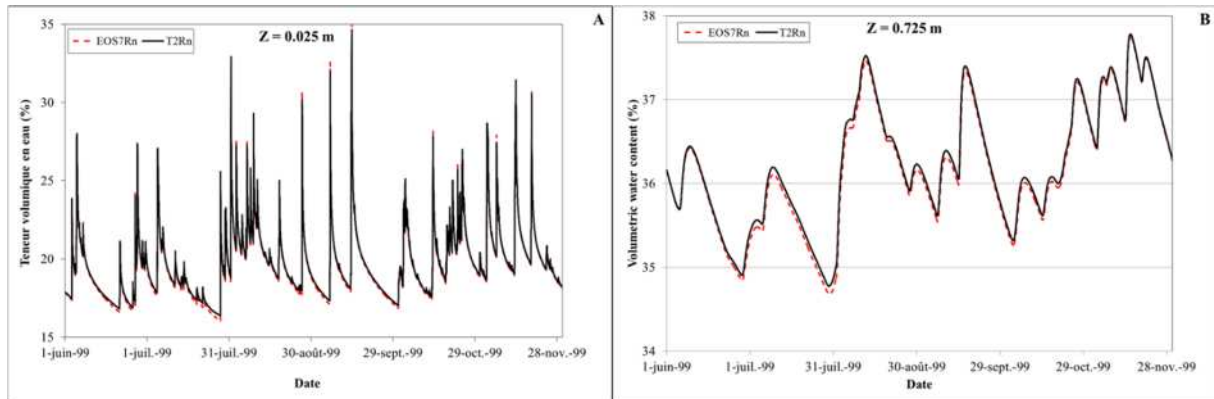


Figure 2-3 – Variations temporelles de la teneur volumique en eau simulée durant 6 mois par EOS7Rn et T2Rn aux profondeurs A/  $z = 0.025$  m et B/  $z = 0.725$  m.

### 2.3.2 Simulation de la concentration en radon dans les couches RMU et MC de la stalle

La Figure 2-4 montre que **la formulation MQ** pour la diffusion est meilleure (en termes de grandeur et d'amplitude de pics) pour des simulations par le code TRACI de la concentration en radon à la profondeur  $z = 0.25$  m, en particulier entre **mi-juin et mi-septembre 1999**. La formulation RN préconisé par Ferry et al. (2002) dans le code TRACI est loin d'être capable de prédire ce comportement. Notons, par contre, que la formulation BU dans TRACI est nettement meilleure que RN.

Pour cette même profondeur et même période (mi-juin à mi-septembre), on constate, contrairement à TRACI, que c'est **la formulation de BU** dans T2Rn qui améliore le calcul des concentrations en radon. Les concentrations en radon mesurées sont toujours sous-estimées par T2Rn pour les deux formulations RN et MQ durant cette période.

Durant la période sèche s'étalant de **mi-septembre au 1<sup>er</sup> octobre 1999**, des pics anormaux de concentrations en radon sont observés à  $z = 0.25$  m (Figure 2-4), ils sont incohérents avec aucun enregistrement de la pluie durant cette période. Cette incohérence ne peut être expliquée que par la présence des jours de rosées matinales importantes ou au mauvais fonctionnement des enregistreurs de la pluie durant cette période. D'où, leur sous-estimation quel que soit le code et le modèle de diffusion choisi. Ce manque d'information se traduit par une mauvaise initialisation de la concentration en radon dans le modèle et influe, par conséquent, sur la bonne estimation des concentrations en radon mesurées à  $z = 0.25$  m au-delà du **1<sup>er</sup> octobre 1999**. Si T2Rn permet de mieux les approcher, **TRACI les sous-estime quel que soit le modèle de diffusion choisi**.

Les remarques décrites ci-dessus pour la simulation des concentrations en radon à  $z = 0.5$  m, s'appliquent également à la simulation de celles à  $z = 0.5$  m (Figure 2-5) par les deux codes TRACI et T2Rn, et les trois modèles de diffusion RN, BU et RN durant la période de mesure débutant à partir du **1<sup>er</sup> octobre 1999**. En outre, l'incertitude sur la bonne position de la mesure de la concentration du radon à l'interface MC/RMU permet également d'expliquer la surestimation de la concentration en radon mesurée à la profondeur  $z = 0.5$  m par ces deux codes.

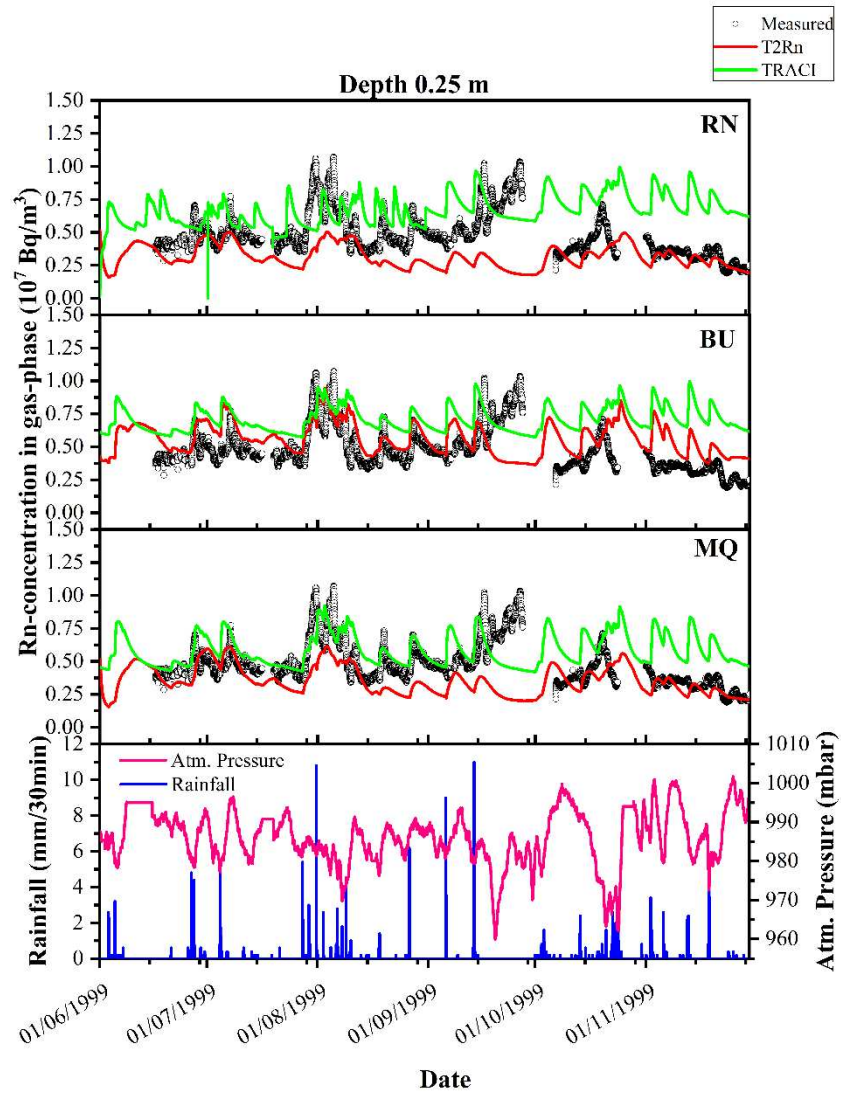


Figure 2-4 – Concentrations en radon mesurées et calculées par les codes TRACI et T2Rn à la profondeur 0.25 m pour les trois modèles de diffusion du radon RN, BU et MQ dans la stalle non-saturée.

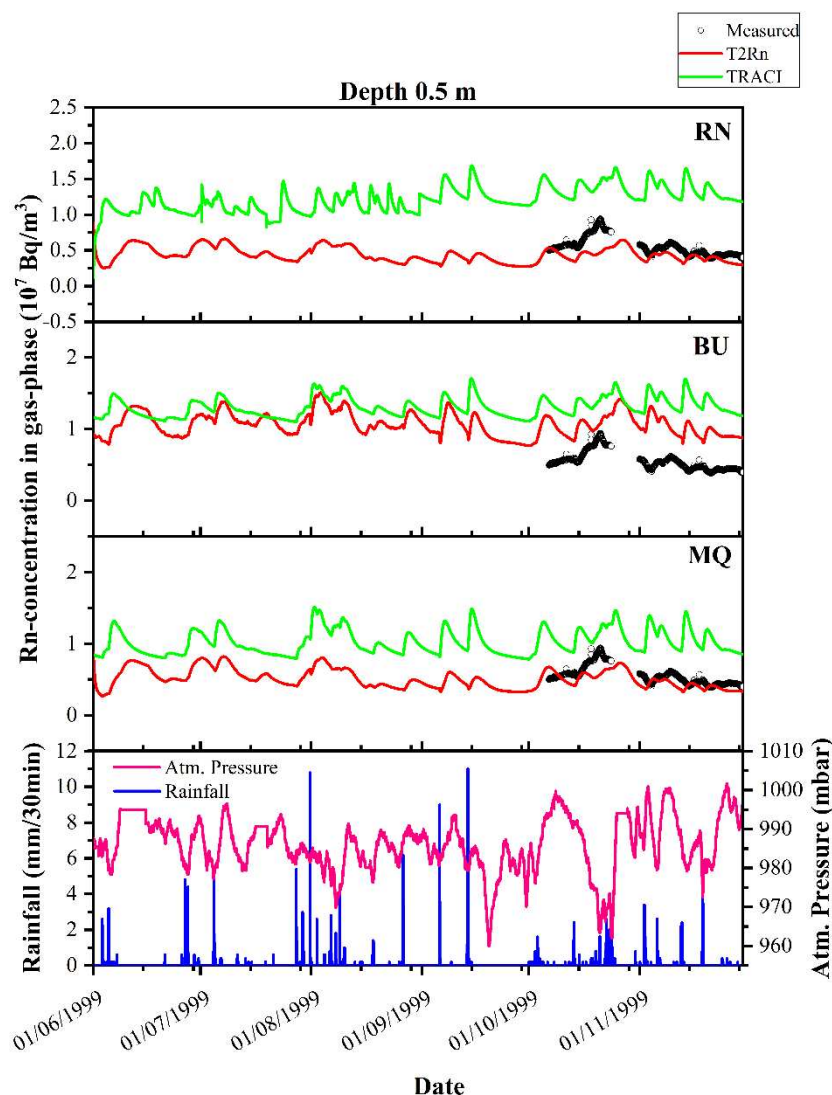


Figure 2-5 – Concentrations en radon mesurées et calculées par les codes TRACI et T2Rn à la profondeur 0.5 m pour les trois modèles de diffusion du radon RN, BU et MQ dans la stalle non-saturée.

### 2.3.3 Simulation de flux d'exhalation du radon à la surface de la couverture MC

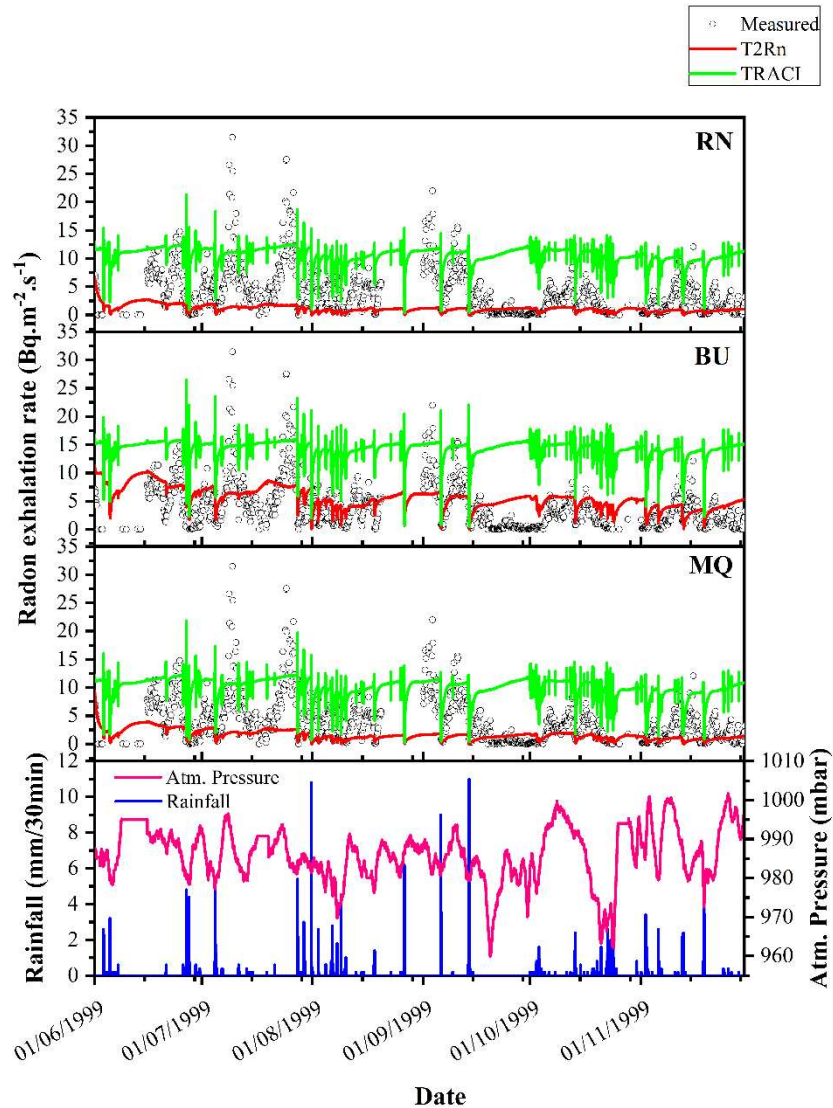
Même si le modèle MQ dans TRACI simule bien la décroissance du flux d'exhalation du radon mesuré après les événements pluvieux, il surestime largement les flux de radon durant les périodes sèches (Figure 2-6). En plus, TRACI calcule des valeurs de flux presque constants dans le temps quel que soit le modèle de diffusion choisi. Ceci est bien démontré dans la Figure 2-7a en termes de valeurs moyennes mensuelles.

Comme TRACI, T2Rn prédit nettement la décroissance de flux du radon après des événements pluvieux en surface. Cependant, contrairement à TRACI, T2Rn simule des flux d'exhalation de radon plus sensibles au coefficient de diffusion choisi (Figure 2-6), comme a été montré pour la concentration en radon en profondeur (cf. § 2.3.2). En plus le modèle BU apparaît le plus convenable pour simuler à la fois le flux d'exhalation du radon (avec une surestimation moins importante des flux de radon faibles mesurés durant les périodes sèches) et la concentration en radon en profondeur (Figure 2-4, Figure 2-5). Pour ce modèle de diffusion, peu de différence est observée entre les flux moyens mensuels et semestriels simulés et mesurés (Figure 2-7b). En effet, le flux de radon moyen semestriel calculé par T2Rn ( $5.54 \pm 1.89 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ) est 39% inférieur à celui calculé par TRACI et est plus proche de celui mesuré ( $4.07 \pm 4.02 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ).

La mauvaise initialisation du modèle de la stalle le 1<sup>er</sup> juin et le 1<sup>er</sup> octobre (manque d'information sur l'origine de flux d'eau infiltrée en surface à partir de mi- à fin septembre 1999, cf. § 2.3.2) explique bien cette surestimation de flux de radon mesuré par T2Rn avec le modèle BU durant les périodes du premier à mi-juin, et du 1<sup>er</sup> octobre au 30 novembre 1999 (Figure 2-6). Ceci est également bien montré dans la Figure 2-7b en termes de flux d'exhalation de radon moyens mensuels.

De nouveau, la large sous-estimation du flux de radon mesuré (Figure 2-6) quand le modèle de diffusion RN est utilisé dans T2Rn, confirme sa mauvaise utilisation pour les milieux souterrains peu profonds (Saâdi, 2014).

Puisque l'évaporation à la surface du sol n'est pas prise en compte dans les deux codes TRACI et T2Rn, aucun d'eux n'a été capable de simuler les pics de flux d'exhalation du radon mesurés durant les périodes de fortes demandes évaporatoires de l'été (Figure 2-6).



**Figure 2-6 – Flux d'exhalation du radon mesurés et simulés par TRACI et T2Rn à la surface de la couverture (MC) en utilisant les trois modèles de diffusion du radon dans la stalle non-saturée : Rogers et Nielson (1991a) (RN), Bakingham (1905) (BU), et Millington et Quirk (1961) (MQ).**

Malgré le manque de données nécessaires permettant de simuler ce phénomène sur le site de Lavaugrassé, on constate que T2Rn est capable de simuler les variations saisonnières de flux de radon en provenance du sol durant



l'année. Ces résultats sont bien confirmés par les valeurs moyennes mensuelles et semestrielles des flux calculés par T2Rn, présentées Figure 2-7a, qui s'approchent d'autant plus des valeurs moyennes mesurées.

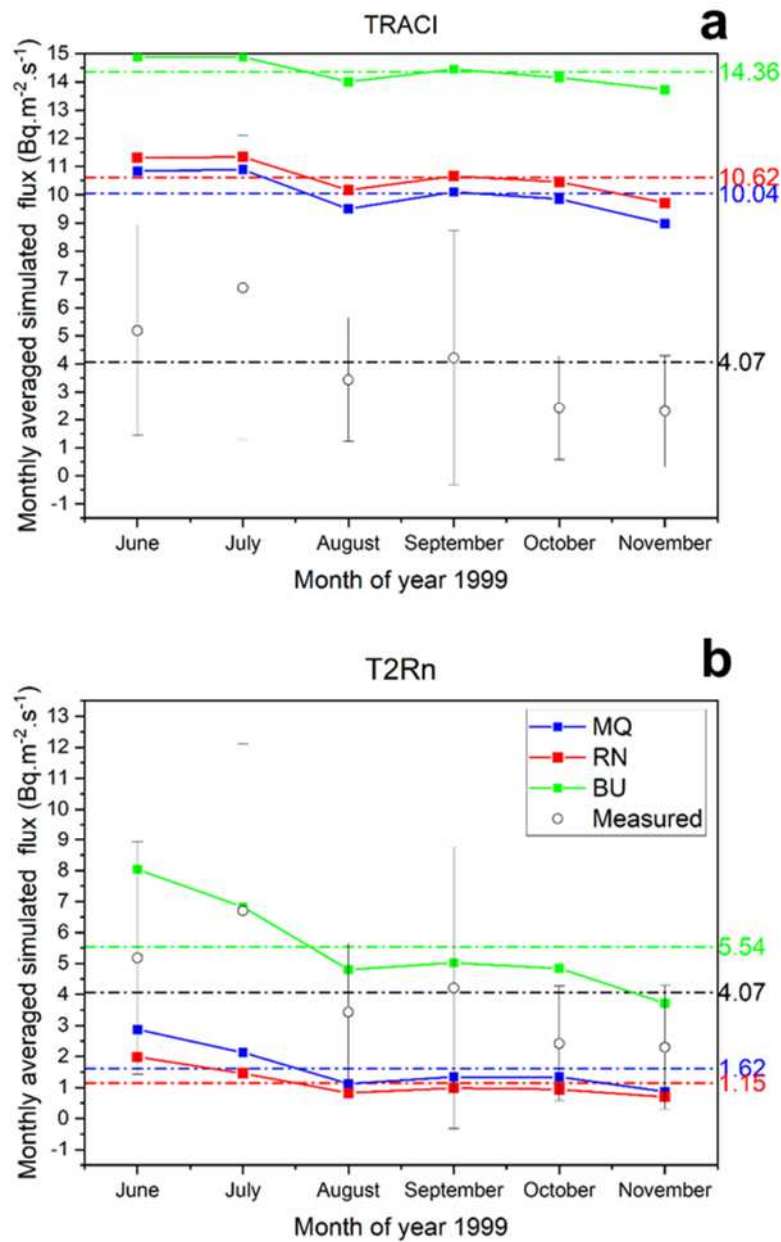


Figure 2-7 – Moyennes mensuelles et semestrielles de flux d'exhalation du radon mesurées et calculées par a/ TRACI, et b/ T2Rn, pour les trois modèles de diffusion de radon MQ, RN et BU.

## 2.4 Conclusion

Cette étude a permis, d'une part, de valider le développement du code T2Rn sur des données expérimentales, et d'autre part, de ressortir un nombre de remarques importantes concernant les résultats attendus sur la modélisation de transport du radon dans un site de stockage de résidu minier couvert par du stérile minier.

Ce qu'il faut retenir :

- Si l'on considère que les modèles de propriétés hydrodynamiques des sols MC et RMU ainsi que leur paramétrisation sont sujettes à de faibles incertitudes, il n'y a pas un modèle unique de diffusion du radon dans ces deux matériaux permettant de simuler le flux d'exhalation du radon en surface. La comparaison avec des données expérimentales est nécessaire pour identifier le modèle de diffusion adéquat ;
- La comparaison entre deux codes basés sur des conceptualisations physiques différentes de transfert du radon en milieu poreux non saturé (le radon comme seul constituant dans la phase gazeuse dans TRACI ; l'eau, l'air et le radon comme constituants de la phase gazeuse dans T2Rn), et des méthodes numériques différentes (différences finies pour TRACI ; volumes finis pour T2Rn), ont révélé que le flux d'exhalation du radon calculé par T2Rn est très sensible au modèle de diffusion choisi. Elle a permis d'améliorer la simulation simultanée de la concentration en radon en profondeur et le flux d'exhalation du radon en surface pour le modèle physique de diffusion BU.
- Si le modèle de la stalle basé sur le code T2Rn avec un coefficient de diffusion de type BU simule remarquablement les flux d'exhalation du radon mesurés après chaque événement pluvieux (i.e., infiltration d'eau en surface), il n'a pas permis d'améliorer le calcul des pics de flux d'exhalation du radon mesurés durant les périodes d'évaporation et d'assèchement prolongées de la surface du sol ;
- Les modèles de diffusion à base physique (BU et MQ) donnent des résultats plus satisfaisants que le modèle empirique RN qui a été largement utilisé dans les modèles de migration du radon en sub-surface, et confirment les résultats obtenus par certains auteurs (Van der Spoel, 1998 ; Meslin et al., 2010 ; Saâdi, 2014).

Ces résultats confirment bien la robustesse du code T2Rn à simuler les phénomènes transitoires de transport du radon dans des résidus miniers couverts par des stériles miniers, mais reste encore à améliorer ces modèles pour réduire les incertitudes de calcul de flux du radon en surface.

#### Ce qu'il faut améliorer de point de vue recherche :

- Prendre en compte l'évaporation du sol dans T2Rn pour réduire les incertitudes sur le calcul des pics de flux d'exhalation du radon à la surface d'un site de stockage du RMU. A titre d'illustration, un exemple synthétique de calcul de flux du radon à la surface d'un lysimètre situé sur le site de Lavaugrasse (Ferry, 2000), soumis à des évaporations prolongées en surface durant une période sèche est montré dans la Figure 2-8. L'effet cyclique de l'évaporation sur les flux mesurés est bien reproduit par T2Rn malgré une surestimation de flux mesuré (valeurs d'évaporation synthétiques très élevées) ;
- Par ailleurs, il serait important d'appliquer T2Rn sur un site où l'on dispose d'un plus grand nombre de données mesurées, en particulier les variables et propriétés hydriques et thermiques des milieux poreux étudiés, et les variables climatiques de forçage du modèle en surface telles que le rayonnement solaire, l'évapotranspiration potentielle etc. nécessaires pour estimer la part de flux de radon dû essentiellement à l'évaporation ;
- La rosée en surface doit être prise en compte dans le modèle par la quantité d'eau apportée en surface, ce qui évitera la mauvaise initialisation du modèle durant les périodes transitoires de transfert du radon.
- Les propriétés hydrodynamiques des matériaux MC et RMU ne sont pas réellement représentatives de leurs structures porales, puisque obtenues uniquement à partir de leurs propriétés texturales et avec calage de leurs perméabilités intrinsèques et leurs paramètres de forme et d'échelle. En plus, le RMU présente une structure physico-chimique particulière avec un effet d'hystérésis important durant les périodes pluvieuses de son gonflement et les périodes sèches de sa fissuration. Un effort important doit être fourni dans ce sens pour améliorer leur prise en compte in situ dans un site de stockage : e.g. développement d'un modèle de sol à double porosité, déformable, dont sa structure varie selon les conditions hydriques imposées par la météorologie qui règne à la surface du stockage à long terme.
- Etant donné que T2Rn est développé sous la plateforme d'inversion numérique iTOUGH2 (Finsterle, 2004), il serait également judicieux de tester ses capacités d'inversion numérique des données mesurées



pour estimer les paramètres inconnus des modèles de sites de stockage du RMU (monocouche en RMU ou bicouche MC/RMU ou multicouches avec MC/RMU alternée; Figure 1-7) ainsi que les incertitudes associées, pourvu que ces données permettent de bien poser le problème mathématique d'inversion à résoudre. Pour cela, un effort doit être fourni pour finaliser la tâche d'inversion des paramètres du module plante (cf. § 1.4.2) avec l'ensemble des paramètres du module sol du code T2Rn.

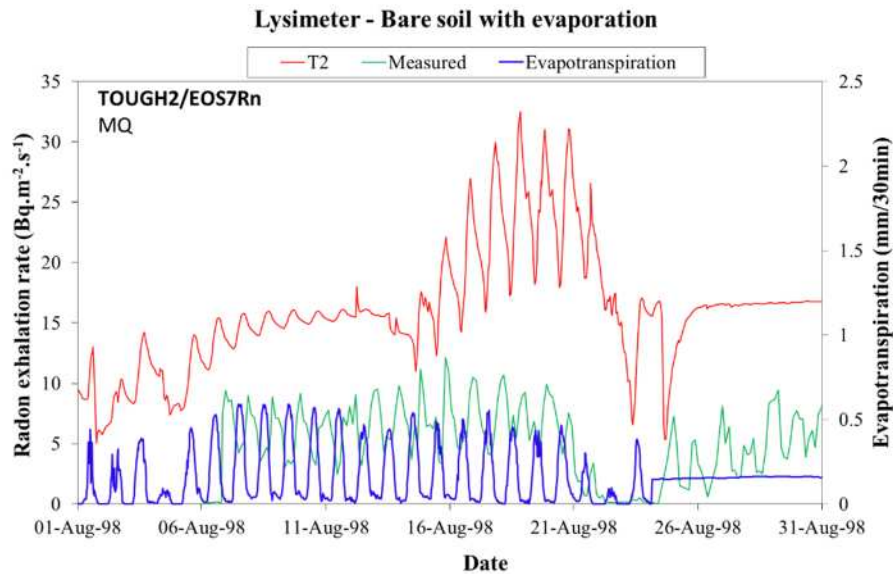


Figure 2-8 – Variations temporelles du flux d'exhalation du radon mesuré et simulé par EOS7Rn durant une période très sèche au mois d'août 1998 en considérant l'évapotranspiration à la surface du RMU dans un lysimètre (Ferry, 2000). Simulations réalisées sans aucune calibration des paramètres.



### 3. Etude de transport du radon à l'interface sol-bâtiment

#### Abstract

*This chapter presents examples studies of radon transport from soils to buildings with different foundation configurations. We are interested in particular to problems of interfaces between the building foundation (walls and slabs) and the soil with a simplified hydraulic condition that applies the building at the soil through its under-pressurization and/or over-pressurization. The purpose of those studies is to show that we can deal by the code T2Rn complex models with different building configurations under variable weather conditions in order to estimate transient radon fluxes through the main pathways of radon transfer at the soil-building interface. Simplified hypotheses of the developed model of a building partially built on a basement and slab-on-grade foundation enabled us to simulate remarkably radon concentrations measured in the basement by avoiding divergence problems of the numerical solutions under transient conditions for a heterogeneous structure at the soil-building interface, while preserving the physical meaning of the calibrated parameters. Moreover, a benchmarking between T2Rn and the analytical and semi-empirical equations of CSTB (Centre Technique et Scientifique du Bâtiment), on two foundations configurations (supported slab and slab-on-grade), allowed to identify the limits of these equations, especially when the soil is heterogeneous and anthropogenic source of radon with high radium content is present around the building.*

Ce chapitre présente des exemples d'études de transport du radon depuis les sols vers des bâtiments à différentes configurations du sous-bassement. Il s'intéresse en particulier aux problèmes des interfaces entre la fondation d'un bâtiment (murs et dalles) et le sol avec une simplification de la condition à la limite aéraulique qu'exerce la dépressurisation et/ou la surpression du bâtiment sur le sol. Le but de ces études est de pouvoir montrer que l'on peut traiter avec le code T2Rn des modèles complexes avec différentes configurations de sous-bassement de bâtiment en conditions météorologiques variables, afin d'estimer les flux de radon transitoires à travers les principales voies de transfert du radon à l'interface sol-bâtiment. Les hypothèses simplificatrices des modèles développés pour une configuration d'une habitation avec cave ont permis de simuler remarquablement les concentrations en radon mesurées dans la cave en contournant les problèmes de divergence de solutions numériques en régime transitoire souvent rencontrés entre des matériaux à perméabilités très contrastées à l'interface sol-bâtiment, et tout en préservant le sens physique des paramètres calibrés. En outre, un benchmark entre T2Rn et les équations analytiques et semi-empiriques de CSTB (Centre Technique et Scientifique du Bâtiment) sur deux types de soubassement du bâtiment (dalle portée et dalle sur terre-plein) a permis d'identifier les limites d'application de ces modèles, en particulier lorsque le sol est hétérogène et une source de radon anthropique à teneur en radium très élevée est présente au voisinage d'un bâtiment.

#### 3.1 Introduction

En parallèle aux travaux réalisés durant les années 1980 et 1990 sur le stockage des RMU, d'autres études ont été réalisées pour simuler le transport du radon depuis les sols vers les bâtiments, en utilisant des codes de calcul basés sur des solutions numériques ou analytiques (Nazaroff et al., 1985; Nazaroff, 1988, 1992; Tanner, 1988; Loureiro et al., 1990; Revzan et al., 1991; Revzan et Fisk, 1992; Garbesi, 1993; Gadgil, 1994; Kohl, 1994; Nielson et al., 1996 - RAETRAD-F; Wang et Ward, 2000; Andersen, 2000, 2001 - RnMod3d). Certains de ces codes résultent parfois d'un couplage d'un code de subsurface avec un code de calcul de bilan de masse aéraulique instantané dans le bâtiment.

Même si les modèles développés à base de ces codes arrivaient à reproduire quelques mesures ponctuelles de flux à l'interface sol-bâtiment et/ou de la concentration en radon dans le bâtiment à travers un ajustement de paramètres (sol et bâtiment), ainsi que de réaliser des études de mitigation du radon dans un bâtiment par des systèmes de dépressurisation de sols (*Soil Depressurization Systems* : SDS), ils étaient incapables de prédire les phénomènes transitoires observés dans un bâtiment, en particulier les brusques pics à concentration en radon élevée, dus aux fortes dépressurisations du bâtiment.

Par ailleurs, ces travaux étaient basés sur plusieurs hypothèses simplificatrices, ce qui limita leurs applications. Parmi ces hypothèses : (i) le régime d'écoulement diphasique eau-air est stationnaire; (ii) la phase eau est immobile, et les flux d'infiltration et d'évaporation de l'eau à la surface du sol situé au voisinage du bâtiment sont

négligeables; (iii) les fissures dans les matériaux de la fondation sont modélisées par deux plaques parallèles (modèle de Poiseuille plan) et sont souvent représentées explicitement dans la géométrie comme des fissures de retrait autour de la périphérie du plancher du béton coulé, sans connaître réellement leurs vraies positions, longueurs et épaisseurs dans ces matériaux; (iv) le transport du radon dans les fissures est supposé stationnaire; (v) pour un bâtiment avec cave, les murs de cette dernière sont souvent supposés imperméables à l'entrée du radon à partir du sol adjacent.

Les hypothèses (i) et (ii) ont été souvent choisies pour éviter le problème de la caractérisation des propriétés hydrodynamiques des sols non saturés avoisinant le bâtiment, ainsi que les problèmes de non-convergence de la solution numérique des EDPs non linéaires qui leur sont associées, en particulier au voisinage des matériaux imperméables et fissurés de la fondation.

Peu, sont les travaux de modélisation de transport du radon depuis le sol vers un bâtiment en régime d'écoulement transitoire monophasique en gaz (e.g., Tsang et Narasimhan, 1992 ; Holford, 1994 - Rn3D ; Holford et Freeman, 1996). Les modèles développés par ces auteurs étaient spécialement destinés à étudier le transport du radon à l'interface sol-cave d'un bâtiment mais ils étaient peu confrontés à des expériences in-situ de mesure de flux et de concentration du radon dans le bâtiment. En plus, leur développement est basé sur les hypothèses simplificatrices (ii) à (v) décrites précédemment.

Depuis ces travaux, et depuis le début du 21<sup>ème</sup> siècle, aucune étude détaillée n'a été publiée sur la modélisation numérique de transport transitoire du radon depuis les sols vers les bâtiments en conditions d'écoulement diphasique eau-air et sous conditions météorologiques variables à la surface du sol et autour du bâtiment.

Malgré l'importance des travaux de Abreu (2005), Abreu et Johnsson (2005, 2006) et Buzkurt (2005), ces derniers ont étudié plutôt le transport des VOCs à l'interface sol-cave d'un bâtiment, mais en considérant uniquement un régime d'écoulement transitoire de la phase gazeuse et les hypothèses simplificatrices (ii) à (v) décrites précédemment.

Ce sont les seuls travaux de Yu et al. (2009) qui présentent la particularité de prendre en compte l'écoulement de la phase eau en plus de celle de la phase gazeuse pour étudier le transport du TCE (Tri-Chloro-Ethylène) depuis un sol surmontant un aquifère hétérogène vers la cave d'un bâtiment. Toutefois, leur modèle resta limité à des infiltrations constantes en surface au voisinage d'un bâtiment en considérant que l'entrée du TCE à travers les murs de la cave est négligeable. En outre, aucune validation expérimentale ne prouve que les hypothèses de fonctionnement de leur modèle à simuler le transport du TCE soient correctes.

Je note également les modèles stationnaires analytiques et semi-empiriques (analogie avec le transfert de chaleur par conduction) récemment développés par le CSTB (Abdelouhab, 2011 ; Diallo, 2013 ; Diallo et al., 2012, 2015 ; Collignan et Powaga, 2019) qui permettent de calculer les débits d'air dus à la convection à travers le sol ainsi que le flux advectif-diffusif d'entrée de polluants gazeux dans les bâtiments pour trois types de soubassement (dallage indépendant, dalle portée, vide sanitaire). La particularité de ces modèles est qu'ils ont été vérifiés numériquement avec des modèles simples à base d'un code CFD (*computational fluid dynamics*), COMSOL-Multiphysics, et validés expérimentalement sur des données issues de la littérature, ce qui a permis une meilleure compréhension du comportement des polluants gazeux à l'interface sol-bâtiment. Cependant, ces modèles présentent des limitations pour diverses applications (Gineau, Saâdi et al., 2018).

Je mentionne également les travaux récents qui traitent la problématique de transport du radon dans le RDC et les différents étages dans un bâtiment avec/sans cave par des modèles simples ou complexes, à base de codes CFD, qui supposent connus les flux d'entrée du radon à l'interface sol-bâtiment (e.g., Akbari et Mahmoudi, 2012).

A mes connaissances, il n'existe pas une étude complète couplant un code CFD et un code de transport en milieu poreux diphasique (eau-air) en conditions météorologiques variables à la surface d'un sol et autour d'un bâtiment.

A l'IRSN, les premiers modèles de transport du radon vers un bâtiment et dans un bâtiment à plusieurs étages ont été développés par Ferry (2001), et ce pour un écoulement stationnaire de la phase gazeuse (code RADON2). Depuis, un code nommé CARAIBE (Doursout, 2008) a été développé en fusionnant le code RADON2 avec un module (aéraulique) VENTILATION1 (Navarro, 2007) pour améliorer l'évaluation de la concentration en radon dans les différents étages du bâtiment. Ce code de calcul utilise un modèle de transport unidimensionnel (1D) vertical, en régime d'écoulement stationnaire dans le sol et les roches sous-jacentes en considérant la solution analytique exacte de Guérin (1991), cf. § 1.5.1. Cependant, ce modèle n'est pas adapté dès lors qu'une ou plusieurs

cavités souterraines sont présentes et viennent perturber le transport du radon, auquel cas un modèle tridimensionnel (3D) paraît plus adapté. Par ailleurs, le régime transitoire de l'écoulement diphasique eau-air, non pris en compte dans CARAIBE, est un élément essentiel pour pouvoir suivre l'évolution temporelle du flux d'exhalation de radon à la surface du sol et des parois d'une cavité souterraine. La grande difficulté réside dans la caractérisation hydro-dispersive des différentes couches d'un sol (Lions, 2005 ; Doursout, 2009). En présence d'une nappe souterraine (Lions, 2005), la situation se complique encore plus, puisque l'eau est susceptible de monter par capillarité ou par recharge à travers la zone non saturée, ce qui peut modifier complètement l'état hydrique du sol au voisinage et au-dessous d'un bâtiment.

L'objectif des travaux de recherche que j'ai développés à l'IRSN, et qui seront décrits dans ce chapitre visent à renouer le lien avec ces études (abandonnées) de ce type de problèmes, puisque je me base sur les codes EOS7Rn et T2Rn qui sont numériquement robustes et permettront de résoudre les problèmes mathématiques de transport des gaz en milieu poreux et/ou fracturé non saturé (cf. § 1.3 et § 1.4), et cela quelle que soit la configuration du bâtiment à l'aplomb du sol et les conditions aux limites imposées en surface et autour du bâtiment.

Ces études incorporeront des techniques d'homogénéisation en cas de présence de fissures dans une fondation à l'interface sol-bâtiment, une nouvelle approche pour simuler le transport du radon à l'interface sol-cave et dans la cave elle-même, ainsi que l'implémentation des méthodes de dépressurisation des sols pour remédier au problème de transport du radon depuis le sol vers le bâtiment, à travers des termes puits dans les équations d'écoulement et de transport. *In fine*, les paramètres optimisés dans les modèles décrivant ces études doivent préserver leur sens physique.

Dans ce qui suit, je présente, un premier cas d'étude de transport du radon depuis le sol vers une habitation avec RDC, construite partiellement sur terre-plein avec cave enterrée dans le sol. Le choix de cette maison, située à Bessines-sur-Gartempe (87), est survenu à la suite d'une demande urgente de l'IRSN pour étudier l'origine des concentrations anormalement élevées de radon dans l'air intérieur de l'habitation ( $160 \text{ kBq/m}^3$  dans la cave) mesurées en mars 2014 par la société Algade, dans le cadre de la campagne de recherche de sites de réutilisation de stériles menée par la société ORANO (anciennes AREVA NC et COGEMA). Cette étude a révélé que la présence de sables issus de traitement de minerai d'uranium dans le sol de la parcelle où se situe l'habitation, en est la cause principale.

Dans un second temps, je présente un second cas d'étude dans le cadre d'un benchmark théorique entre le code T2Rn et les modèles analytiques et semi-empiriques (MA) de CSTB, pour le cas d'un modèle de bâtiment avec mur et une dalle portée. Ce benchmark servira pour vérifier les hypothèses de fonctionnement de chacun des modèles développés à base de ces deux codes, ainsi que pour étudier leurs limites d'application.

Enfin, je présente un troisième cas d'étude, qui correspond à une maison construite sur terre-plein, située dans le département de Maine-et-Loire (49), région des Pays de la Loire. Elle fait partie des habitations qui ont été instrumentées et investiguées au printemps 2016 par l'IRSN afin d'identifier les différentes sources et voies d'entrée du radon dans certaines pièces de vie. Elle a été choisie, d'une part pour l'importance des données disponibles de flux et de concentration en radon à l'intérieur et à l'extérieur de l'habitation, et d'autre part pour faciliter la comparaison entre le code T2Rn, les codes MA de CSTB, et les données mesurées de flux et de concentrations en radon à l'intérieur et à l'extérieur de l'habitation ; cela afin de statuer sur les avantages et les inconvénients de chacun de ces deux codes pour des applications concrètes.

## 3.2 Modèle d'une habitation construite partiellement sur terre-plein et sur cave

### 3.2.1 L'habitation et son instrumentation

La maison étudiée est construite sur une superficie d'environ  $150 \text{ m}^2$ . Elle est constituée d'un RDC partiellement construit sur terre-plein et sur une cave, Figure 3-1. On assiste à un dallage en béton sur terre-plein et sous la cave. Les murs de la cave sont construits en parpaing. La hauteur du RDC est en moyenne égale à 2.5 m. La maison est située à Bessines-sur-Gartempe (France), à 1 km du site de stockage Lavaugrasse des RMU (Saâdi et Guillevic, 2016).

Le Tableau 3-1 résume le protocole expérimental réalisé lors d'une campagne d'expertise menée par l'IRSN entre le 24 mars et le 3 avril 2014. Il consiste à mesurer la pression, la température, l'humidité relative et la concentration en radon de l'air, et les flux du radon à l'intérieur et à l'extérieur de la maison.

L'analyse des résultats issus de ce protocole expérimental est présentée ci-dessous.



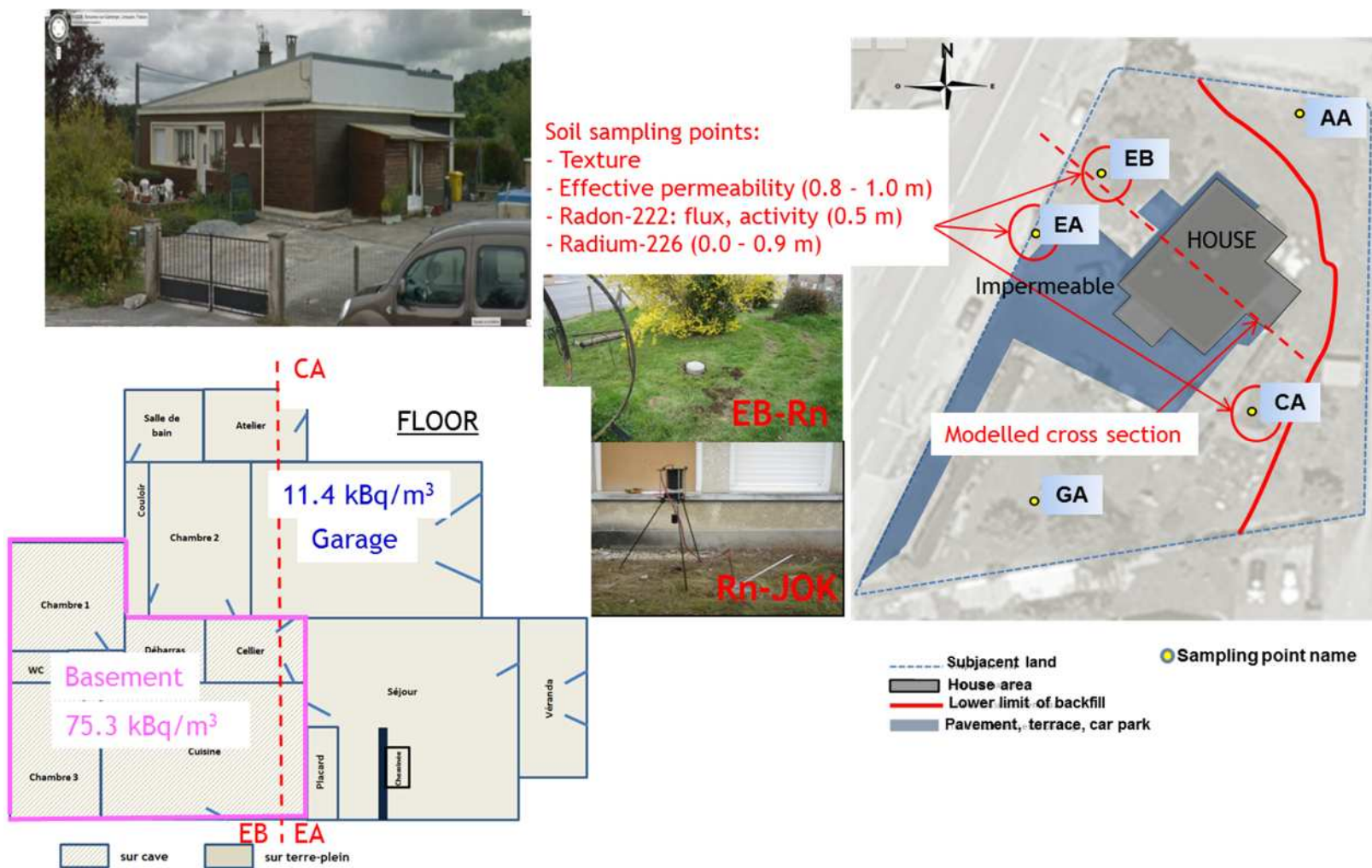


Figure 3-1 – La maison Jusiak étudiée (plan architectural, vue aérienne, points d’échantillonnage et la section modélisée).

**Tableau 3-1 – Protocole expérimental pour la caractérisation des propriétés physiques et du terme source radon des sols, et des sources radon dans les atmosphères intérieure (RDC et cave) et extérieure (air atmosphérique ambiant) à la maison.**

Method	Soil <sup>a</sup>				Basement			Ground floor		Outdoor air <sup>b</sup>	
	Sampling (auger) + $\gamma$ -spectroscopy	RADON-JOK <sup>c</sup>	Air sampling probes <sup>d</sup>	AC <sup>e</sup>	AG <sup>f</sup>	Air sampling (scintillating flasks) + CAPP2 <sup>g</sup>	SSNTD <sup>h</sup>	AC	AG	AC	AG
Type	one-time	one-time	one-time	one-time	Continuous <sup>i</sup>	one-time	Average	one-time	Continuous	one-time	Continuous
Variable or parameter	Texture, <sup>226</sup> Ra activity	Permeability to gas	<sup>222</sup> Rn activity	<sup>222</sup> Rn flux	Temperature, gas pressure, RH, <sup>222</sup> Rn activity	<sup>222</sup> Rn activity	<sup>222</sup> Rn activity	<sup>222</sup> Rn flux	<sup>222</sup> Rn activity	<sup>222</sup> Rn flux	Temperature, gas pressure, RH, <sup>222</sup> Rn activity
Position	1 m top-soil	0.77 - 1 m	0.5 m depth	Surface	~ 0.2 m from the wall & 1 m above the floor	Near the wall, ceiling	Near the wall, ceiling	Slab floor, walls	Middle of each room	Garage slab floor	2 m above surface <sup>j</sup>
Period	26 March 2014	26 March 2014	26 March 2014	26 March 2014	24 March to 3 April 2014	25, 31 March - 02 April 2014	25 March to 6 May 2014	25-26 March 2014	24 March to 3 April 2014	25-26 March 2014	24 March to 3 April 2014 <sup>k</sup>

<sup>a</sup> Five locations around the house (Saâdi and Laurent, 2017)

<sup>b</sup> Around the house

<sup>c</sup> Neznal and Neznal (2003)

<sup>d</sup> French norm NF ISO 11665-6

<sup>e</sup> Accumulation chamber (French norm NF ISO 11665-7)

<sup>f</sup> AlphaGUARD monitor from Genitron Instruments (Germany)

<sup>g</sup> Portable alpha counter used for in-situ analysis

<sup>h</sup> Solid State Nuclear Track Detectors for passive measurements (Film LR-115 - DPR2 dosimeter, Algate Instruments, France)

<sup>i</sup> Time step = 1 hour

<sup>j</sup> Apparatus positioned in a wooden shed in front of the garage in order to be connected to the power supply

<sup>k</sup> Interruption from 28 March to 31 March for security reasons of the AlphaGUARD monitor



### ➤ Mesures dans l'air intérieur de la maison

Trois techniques de mesure de la concentration en radon dans les différentes pièces du RDC et la cave ont été choisies : (i) prélèvement de l'air par des fioles scintillantes pour des mesures ponctuelles, analysées par la suite par un compteur alpha portable (type CAPP2 ; Instruments Algade, France) ; (ii) Dosimètres DPR2 - film LR-11 (Instruments Algade, France) - en anglais *solid state nuclear track detectors* (SSNTD) – pour des mesures passives. La période totale d'exposition des DPR2 a duré 43 jours (du 25 mars au 6 mai 2014) ; (iii) des moniteurs AlphaGuard (Genitron Instruments, Germany), pour des mesures en continu dans le temps avec pas de mesure toutes les 10 min.

Un seul AlphaGuard a été placé au milieu de chaque chambre du RDC. Dans la cave, en plus de l'emplacement d'un AlphaGuard à ~0.2 m du mur et à 1 m de hauteur à partir du plancher de la cave (Figure 3-2a) pour des mesures en continu de la concentration en radon, des mesures ponctuelles ont également été réalisées à différents temps à côté des murs et du plafond de la cave par 4 dosimètres DPR2. Sur la période de mesure de 10 jours, la concentration en radon moyenne mesurée par l'AlphaGuard est de  $75\,336 \pm 6\,374 \text{ Bq.m}^{-3}$  (avec un maximum de  $176\,128 \pm 14\,656 \text{ Bq.m}^{-3}$ ), alors que celle mesurée d'une manière ponctuelle est égale à  $107\,779 \pm 32\,142 \text{ Bq.m}^{-3}$  (avec un maximum de  $139\,000 \pm 7\,500 \text{ Bq.m}^{-3}$ ). Cette dernière mesure prend en compte mieux la variabilité spatiale de la concentration en radon dans la cave. La concentration en radon mesurée moyenne dans le garage est de  $11\,364 \pm 1\,052 \text{ Bq.m}^{-3}$  (avec un maximum de  $71\,168 \pm 5\,888 \text{ Bq.m}^{-3}$ ).

Les mesures de flux du radon à la surface des murs et du plancher (dalle de béton) de la cave, ainsi que celles à la surface du plancher du garage (dalle de béton), ont été réalisées par une méthode d'accumulation (Norme Française NF ISO 11665-7) à travers des chambres (volumes cylindriques, Figure 3-2b). Le principe de cette méthode de mesure est décrit en détails dans l'Annexe A.2. Les flux du radon variaient entre  $0.005 \pm 0.042$  (dans le garage) et  $0.297 \pm 0.161 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$  (mur de la cave).

Les données relatives à l'atmosphère interne de la maison telle que la température, l'humidité relative, et la pression ont été mesurées par l'AlphaGuard afin de suivre leur évolution temporelle toutes les heures. En effet, dans la cave, la température variait entre 10.3 et 18.4 °C (moyenne de 13.3 °C) et l'humidité relative variait entre 52 et 68.7 % (moyenne de 62.3 %)

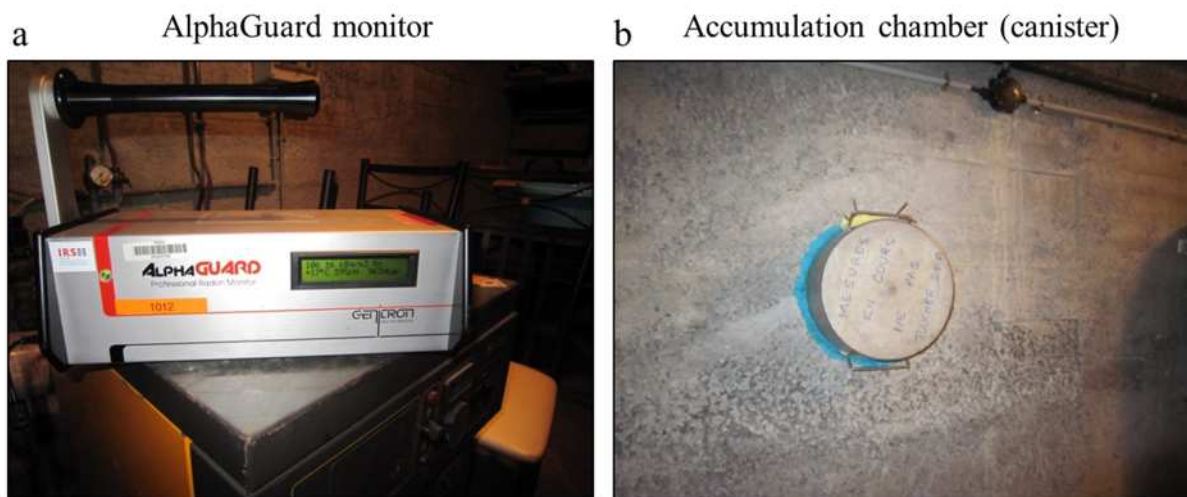


Figure 3-2 – a/ Le moniteur AlphaGuard près du mur pour la mesure en continu de la concentration en radon. b/ Volume d'accumulation du radon collé au mur de la cave pour la mesure ponctuelle du flux d'exhalation du radon.

### ➤ Mesures dans le sol

Cinq points de mesure autour de la maison (Figure 3-1) ont été sélectionnés pour caractériser les propriétés physiques et du terme source radon du sol. Des échantillons ont été collectés sur le premier mètre du sol en utilisant des trous à la tarière, cela afin d'analyser leurs textures et déterminer leur teneur en radium, mesurée par spectrométrie gamma (au laboratoire et in situ). Les propriétés du sol sont presque homogènes autour de la maison

; ils présentent une texture sableuse, mais on distingue une première couche homogène peu différente du sable sur les 30 premiers cm (point AA) à cause de sa teneur en matière organique très élevée.

La perméabilité effective au gaz du sol a été mesurée deux fois, à une profondeur approximative de 1 m au voisinage des points d'échantillonnage des sols en utilisant l'appareil RADON-JOK (Neznal et Neznal, 2003), Figure 3-1. Le principe de mesure de cet appareil est décrit en détails dans l'Annexe A.1.

Le flux d'exhalation du radon vers l'atmosphère a été mesuré par des chambres d'accumulation (Figure 3-1; cf. Annexe A.2), et la concentration en radon du sol a été mesurée d'une manière ponctuelle par des sondes d'extraction de l'air du sol à 0.5 m de profondeur (Annexe A.3).

### ➤ Mesures dans l'air atmosphérique externe à la maison – données climatiques

Les données atmosphériques autour de la maison, telles que les évolutions temporelles de la concentration en radon, la pression, la température et l'humidité relative, ont été mesurées entre le 25 mars et le 1<sup>er</sup> avril 2014, avec une interruption entre le 28 et le 31 mars pour des raisons de sécurité de l'appareil AlphaGuard. Les données manquantes ont été complétées par les données horaires enregistrées dans les stations météorologiques lointaines AREVA NC et METEOFRENCE, entre le 1<sup>er</sup> janvier 2013 (00 :00 AM) et le 4 avril 2014 (06 :00 AM), Figure 3-3a. Ces données concernent la pluviométrie  $R$  (mm), l'évapotranspiration réelle  $ETR$  (mm), la pression de l'air  $P_{atm}$  (mbar), la température de l'air  $T_{atm}$  (°C), l'humidité relative de l'air  $RH$  (%), la vitesse du vent  $U$  (m/s) et sa direction (en degré), et la radiation solaire globale  $RG$  (kW.m<sup>-2</sup>). Un zoom sur la période de la campagne de mesure du radon (Figure 3-3b ; du 24 mars à 3 avril 2014) montre que cette période est très sèche avec une pluie efficace moyenne négative de l'ordre de  $\sim -4$  mm. La pression et la température de l'air moyennes durant cette période sont de l'ordre de 970.7 mbar et de 10.1 °C, respectivement.

L'apport du radon de l'air atmosphérique externe à la maison est très négligeable devant celui provenant du sol, puisque la concentration en radon mesurée dans l'air atmosphérique externe est entre 20 et 250 Bq.m<sup>-3</sup> alors que celle mesurée dans l'air du sol dépasse largement 1 MBq.m<sup>-3</sup>.

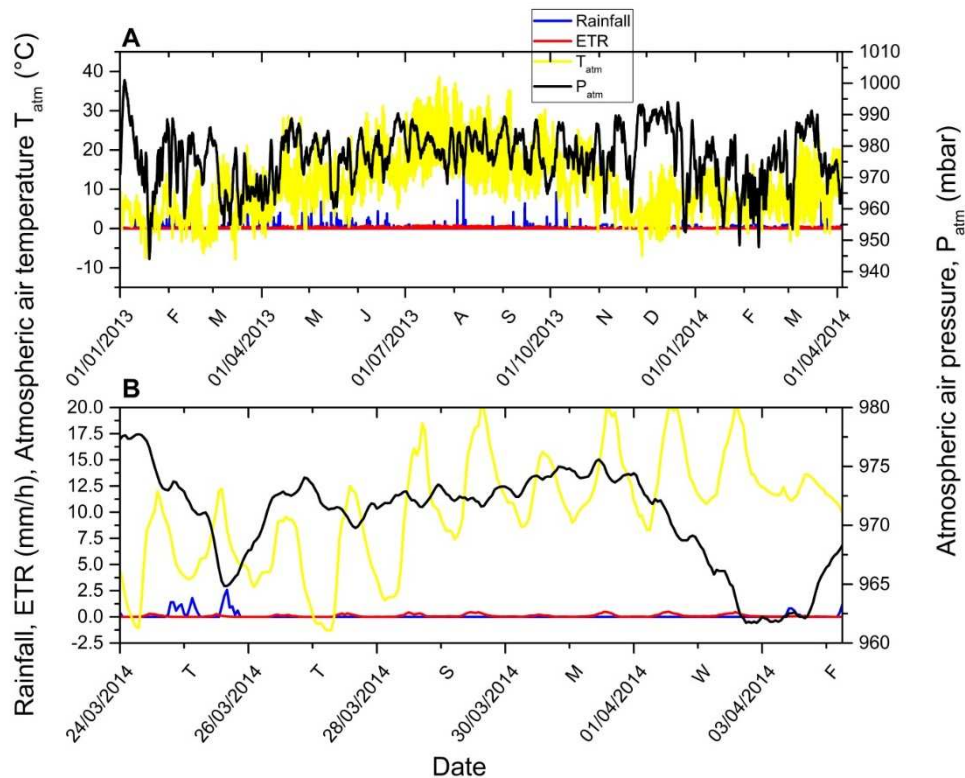


Figure 3-3 – Données météorologiques enregistrées : A/ 1<sup>er</sup> janvier 2013 - 4 avril 2014 ; B/ 24 mars - 3 avril 2014.

Dans un premier temps, les mesures ponctuelles de flux et de concentration en radon à l'intérieur (cave et RDC) et à l'extérieur (sol et atmosphère), seront exploitées pour une étude en régime diphasique eau-air stationnaire de transport du radon, afin d'obtenir les premières estimations des paramètres de la fondation (perméabilité et porosité équivalentes). Dans un second temps, les mesures en continu de la concentration en radon et des paramètres atmosphériques (température, humidité relative, et pression de l'air) à l'intérieur et à l'extérieur de la maison, ainsi que les mesures des paramètres hydrologiques (pluviométrie, évapotranspiration), seront exploités pour une optimisation finale des paramètres clés du modèle en conditions d'écoulement diphasique eau-air transitoires.

Les données météorologiques ont servi pour l'étude de corrélations entre les données atmosphériques et de concentration en radon mesurées à l'intérieur de la maison et celles mesurées dans l'atmosphère externe à ces alentours. En effet, les différences de température entre l'intérieur et l'extérieur de la maison ont permis de calculer les différences de pression dues à l'effet cheminée (*stack effect*).

### 3.2.2 Domaine d'étude

Le domaine d'étude est réduit à la section 2D montrée dans la Figure 3-1 (ligne rouge discontinue) qui coupe la cave et le garage, ainsi qu'aux deux points de mesure dans le sol EB et CA. La Figure 3-4 montre en détails le bloc du sol, le RDC, et la cave de la maison de cette coupe 2D modélisée dans le plan XZ. Le bloc du sol est de 10 m d'épaisseur et de 32 m de long. Une configuration à trois couches homogènes (Tableau 3-2) avec présence d'une nappe phréatique, dont le niveau piézométrique est à 6 m de profondeur au-dessous de la surface du sol (Lachassagne et al., 2001), a été considérée. Deux types de sable ont été distingués pour les deux premières couches selon leurs teneurs en matière en organique. La troisième couche correspond au sable limoneux qui a été utilisé pour couvrir le RMU du site de stockage Lavaugrasse (cf. § 1.5.1 et § 2.3).

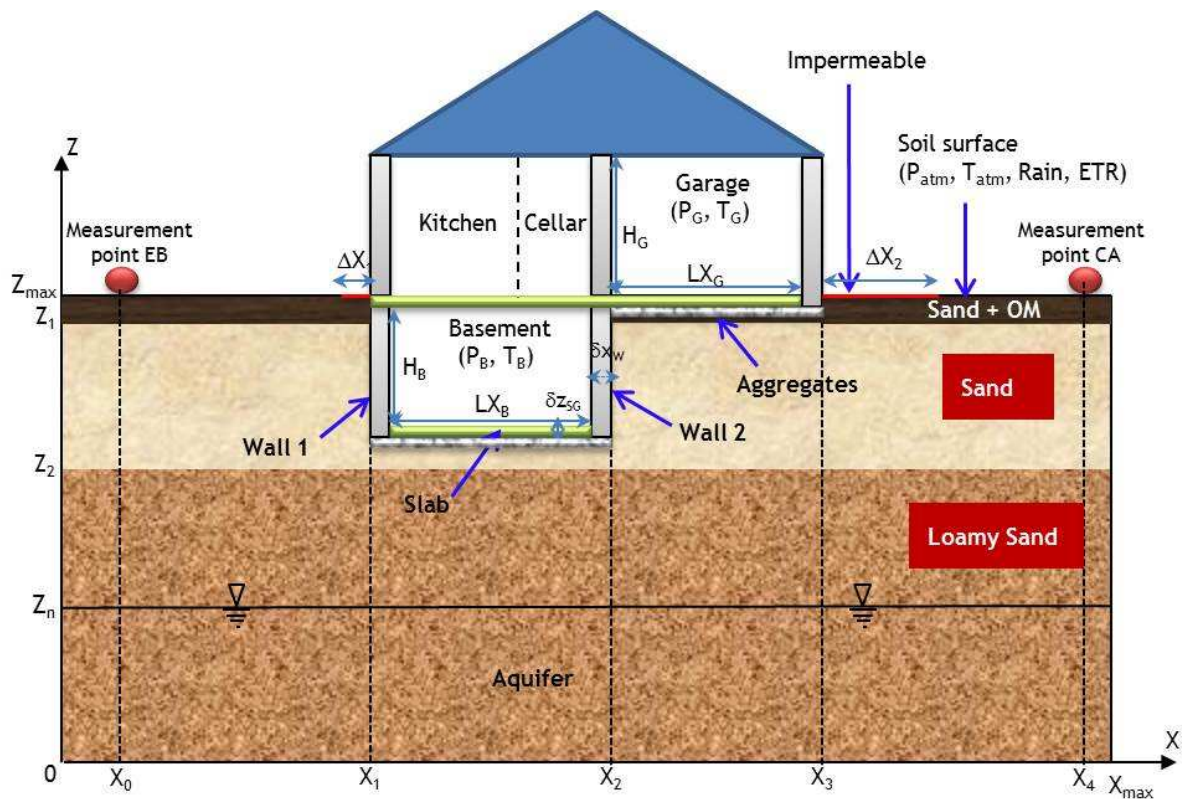


Figure 3-4 – Vue 2D de la section modélisée (Figure 3-1). OM : Organic Matter,

**Tableau 3-2 – Caractéristiques géométriques du bloc du sol et de la section 2D modélisée.**

Maximum height of the soil domain, $Z_{\max}$ (m)	10.0
Layer thickness of the UMT-contaminated sand mixed with OM <sup>a</sup> , $Z_{\max} - Z_1$ (m)	0.50
Layer thickness of the UMT-contaminated sand, $Z_1 - Z_2$ (m)	3.05
Layer thickness of the loamy sand, $Z_2$ (m)	6.45
Water table of the aquifer, $Z_{\max} - Z_n$ (m)	6.00
Maximum width of the soil domain, $X_{\max}$ (m)	32.0
Lateral distance from X-axis origin to basement wall 1–soil interface, $X_1$ (m)	10.0
Lateral distance from X-axis origin to basement wall 2–soil interface, $X_2$ (m)	16.9
Lateral distance from X-axis origin to outside garage wall, $X_3$ (m)	22.0
Length of the sidewalk on the kitchen wall side, $\Delta X_1$ (m)	0.62
Length of the sidewalk on the garage wall side, $\Delta X_2$ (m)	2.50

<sup>a</sup> OM: Organic Matter

Les points de mesure EB et CA situés aux positions  $X_0 = 1.4$  m et  $X_4 = 29.4$  m, respectivement, ont été considérés dans la géométrie afin de pouvoir comparer les simulations du modèle aux mesures du radon dans le sol en ces points.

Les caractéristiques géométriques de la cave et du garage montrées dans la Figure 3-4 sont données, Tableau 3-3. Les valeurs de LX et LY ont été estimées à partir de l'échelle du plan architectural de construction de la maison (Figure 3-1).

**Tableau 3-3 – Caractéristiques géométriques du RDC, de la cave et du garage de la maison.**

	Basement	Garage	Floor
Height, H (m)	2.5	2.5	2.5
Length, LY (m)	10.44	7.31	-
Width, LX (m)	6.33	4.80	-
Area, S (m <sup>2</sup> )	66.1	35.1	150
Volume, V (m <sup>3</sup> )	168.5	89.5	375

La fondation sur terre-plein du garage et de la cavité est représentée par une dalle de 0.2 m d'épaisseur. Les murs de la cave ont été supposés représenter le parpaing et le remblai par un seul matériau d'épaisseur 0.3 m. Les deux matériaux (dalle et murs) sont construits à base du béton (ciment).

Il a été supposé également la présence des agrégats (i.e., graviers mélangés avec du sable) de 0.15 m d'épaisseur au-dessous de la dalle de béton.

### 3.2.3 Modèle de transport du radon dans le sol et les matériaux de la fondation

Pour résoudre le problème mathématique de transport du radon dans le bloc du sol et les matériaux de la fondation (dalles et murs), Figure 3-4, le module EOS7Rn a été utilisé. En plus, il a fallu spécifier les propriétés hydrauliques et les propriétés des termes sources et de diffusion du radon dans les couches du sol non saturées, ainsi que les conditions initiales et aux limites.

Les conditions d'écoulement ont été supposées isothermes. Ainsi, la convection thermique du gaz du sol à travers la fondation de la maison, due à l'effet cheminée (chauffage/ventilation/système HVAC) quand la maison est occupée par ses propriétaires, est traduite par une dépression ou surpression à travers des incréments de pression négatifs ou positifs  $\Delta P_G$  (Pa) et  $\Delta P_B$  (Pa) dans le garage et la cavité, respectivement (Tsang et Narasimhan, 1992 ; Yu et al., 2009).

#### ➤ *Terme puits du radon*

Afin de tenir compte de l'aération ou de la ventilation de toute partie du domaine poreux, un terme puits  $\lambda_{Rock}$  ( $s^{-1}$ ) a été ajouté dans l'équation de bilan de masse Eq. (1-1) de chaque constituant gazeux  $\kappa$  (vapeur d'eau, radon et air). Par conséquent, pour le radon, l'équation du bilan de masse (Eq. (1-6)) est modifiée comme suit :

$$(3-1) \quad q^{(Rn)} = -(\lambda_{Rn} + \lambda_{Rock})M^{(Rn)} + u_{Rn}E(S_l) \quad Rn \equiv \text{Radon-222}$$

L'Eq. (3-1) est très utile pour étudier les scénarios des systèmes de dépressurisation du sol et leur impact sur la mitigation des flux de radon du sol vers le bâtiment (cf. § 3.2.8 ci-après).

#### ➤ *Propriétés hydrauliques des couches de sols et des matériaux de la fondation*

Les propriétés hydrauliques du sable (1 & 2), du sable limoneux, du béton et des agrégats ont été modélisées par les relations de van Genuchten-Mualem (VG-M) pour la pression capillaire et les perméabilités relatives aux phases liquide et gazeuse (Eqs. (1-29), (1-30), and (1-31), respectivement). Les valeurs des paramètres physiques et des paramètres hydrauliques de VG-M caractérisant chaque milieu poreux ainsi que les références de leur obtention sont données, Tableau 3-4.

#### ➤ *Propriétés de transport et du terme source radon*

Les coefficients de diffusion de la vapeur d'eau, du radon et de l'air dans les phases liquides et gazeuses du sol sont modélisés par la formule du modèle de Millington et Quirk (1961), soit l'Eq. (1-19). Les teneurs en radium des trois couches du sol sont données, Tableau 3-4. En revanche, celles des dalles et des murs sont supposées négligeables. Les coefficients d'émanation du radon des couches de sable et du sable limoneux ont été supposés constants (Tableau 3-4).

Les valeurs des coefficients de diffusion des constituants gazeux en milieux libres (phases liquide et gazeuse), et celles des coefficients de Henry correspondants, sont prises égales à celles mesurées à la température de l'air atmosphérique moyenne ( $\sim 10$  °C). L'adsorption du radon à la surface des grains solides est supposée négligeable.

#### ➤ *Conditions initiales et aux limites*

Le profil hydrique initial correspond à celui simulé à l'état d'équilibre hydrostatique depuis la surface du sol jusqu'au substratum de l'aquifère. Dans un premier temps, le bloc du sol est supposé initialement vide du radon, et les simulations sont réalisées jusqu'à ce que la concentration en radon atteigne sa valeur à l'équilibre dans le bloc du sol sous pression constante de gaz (i.e., pression d'air atmosphérique moyenne de 970.7 mbar). Cet état d'équilibre est donc considéré pour une nouvelle initialisation de la concentration en radon dans le profil du sol pour des simulations à des temps ultérieurs.

Aux frontières latérales et au substratum du domaine (Figure 3-4), les flux d'eau et du radon sont considérés nuls. A la surface du sol (Figure 3-4), excepté aux surfaces imperméables où les flux d'eau et de radon sont nuls, la pression atmosphérique de l'air et la pluie efficace sont appliquées.



**Tableau 3-4 – Les paramètres par défaut des caractéristiques hydrauliques de VG-M, et des propriétés de transport et du terme source radon des différentes couches du sol et des matériaux de la fondation.**

Material	Sand 1 <sup>a</sup>	Sand 2 <sup>b</sup>	Loamy sand <sup>c</sup>	Aggregates <sup>d</sup>	Slab <sup>e</sup>	Wall <sup>e</sup>
Thickness (m)	0.5	3.05	6.45	0.15	0.2	0.3
Residual water liquid saturation, $S_{lr}$ (-)	0.22	0.22	0.125	0.18	0.4059	0.4059
Full water liquid saturation, $S_{ls}$ (-)	0.90	0.90	1	1	0.99923	0.99923
Scale parameter of the capillary pressure curve, $\alpha_{VG}$ ( $m^{-1}$ )	1.30	1.30	3.46	24.4	2.4	2.4
Shape parameter of the capillary pressure curve, $m_{VG}$ (-)	0.4118	0.41	0.422	0.6	0.3711	0.3711
Dry bulk density, $\rho_d$ ( $kg.m^{-3}$ )	1563.5	1563.5	1520	2200	2039.5	2039.5
Porosity, $\phi$ (-)	0.41	0.41	0.4	0.17	$F_{E-S}^f$	$F_{E-W}^f$
Effective unsaturated permeability, $k_e$ ( $m^2$ )	1.13E-11 <sup>g</sup>	8.55E-12 <sup>g</sup>	9.82E-13	1.995E-08	-	-
Intrinsic permeability, $k_0$ ( $m^2$ )	2.14E-11	1.62E-11	1.23E-12	2.00E-08	$k_{E-S}^f$	$k_{E-W}^f$
Radium-226 mass activity, $C_s^{226Ra}$ ( $Bq.kg^{-1}$ )	2925 <sup>h</sup>	<sup>i</sup>	1000	0	0	0
Emanation coefficient, E (-)	0.2	0.2	0.23	-	-	-

<sup>a</sup> Sand (Fontainebleau sand; Renard, 2012) mixed with UMT and topsoil organic matter

<sup>b</sup> Sand mixed with UMT

<sup>c</sup> Source: Ferry et al. (2002)

<sup>d</sup> Equivalent to gravel from alluvial deposits (Dann et al., 2009) or gravel mixed with coarse sand (Mace et al., 1998)

<sup>e</sup> Concrete CL-7 variety (Gupta et al., 2004a)

<sup>f</sup> Effective value which depends upon crack line length and its aperture ( $L_c, w_c$ )

<sup>g</sup> Sand 1: Measurement point AA (0.995 m; Table 5). Sand 2: geometric mean for measurement values at points EA, EB and CA (0.77, 0.91, 0.82 m; Table 5)

<sup>h</sup> Arithmetic mean for laboratory and in-situ measurement values at point AA (0-0.3m; Table 3)

<sup>i</sup> Arithmetic mean for laboratory and in-situ measurement values (Table 3) at point EB (0.5-0.6 m, 6800  $Bq.kg^{-1}$ ) for X between 0 and 10 m, as well as at point CA (0.5-0.8 m, 8800  $Bq.kg^{-1}$ ) for X between 16.9 and 32 m. Arithmetic mean for measured values (Table 3) at points EB and CA (0.5-0.8 m) for X between 10 and 16.9 m below aggregates beneath the basement slab (7800  $Bq.kg^{-1}$ )

### 3.2.4 Modèles de transport du radon dans la cave de l'habitation

Deux approches ont été choisies dans le cadre de cette étude pour représenter la cave de la maison, cela afin de tester leurs performances à simuler les concentrations en radon mesurées en continu dans le temps au sein de la cave de la maison.

#### ➤ *Modèle de cave BMI (Basement Model 1)*

Dans cette approche, le volume de la cave est traité comme un milieu poreux (macropore) avec une porosité égale à 1 et une perméabilité intrinsèque très élevée (e.g.,  $\sim 1.0 \times 10^{-8} \text{ m}^2$ ). La dépression ou la surpression sont appliquées au plancher du RDC (i.e., cuisine et cellier ; Figure 3-4) couvrant la cave, et l'écoulement et le transport dans la cave sont résolus par le code EOS7Rn. La particularité de cette approche est de pouvoir calculer une concentration en radon non homogène dans la cave, et de pouvoir éviter le couplage d'un code CFD avec le code EOS7Rn, tout en respectant le principe de continuité des variables physiques à l'interface cave-milieu poreux (e.g., Yu et al., 2009).

Le taux de renouvellement d'air (*air exchange rate*) dans la cave à travers les ouvertures des fenêtres et des portes  $\lambda_B$  ( $\text{s}^{-1}$ ) est modélisé par un terme puits comme  $\lambda_{Rock}$  dans l'Eq. (3-1).

#### ➤ *Modèle de cave BM2 (Basement Model 2)*

Dans cette approche, la concentration en radon est supposée homogène dans la cave, et la dépression et/ou la surpression sont appliquées aux surfaces des murs et du plancher de la cave. Le flux d'exhalation du radon  $F_g^{Rn}$  ( $\text{Bq.s}^{-1}$ ) à travers ces surfaces est calculé par le code EOS7Rn, et la concentration en radon dans la cave  $C_B^{Rn}$  ( $\text{Bq.m}^{-3}$ ) à chaque pas de temps est calculée en résolvant l'équation de bilan de masse suivante (Loureiro et al., 1990 ; Revzan et al., 1991 ; Revzan et Fisk, 1992 ; Tsang et Narasimhan, 1992 ; Garbesi et al., 1993 ; Gadgil et al., 1994 ; Kohl et al., 1994 ; Holford, 1994 ; Holford et Freeman, 1996 ; Oostrom et Lenhard, 1996 ; Wang et Ward, 2000 ; Andersen, 2001 ; Abreu et Johnson 2005, 2006 ; Bozkurt et al., 2009 ; Saâdi et Marie, 2017 ; Saâdi, 2018) :

$$(3-2) \quad \frac{dC_B^{Rn}}{dt} = \frac{F_g^{Rn}}{V_B} - (\lambda_{Rn} + \lambda_B)C_B^{Rn} + \lambda_B C_{ATM}^{Rn}$$

où  $V_B$  est le volume de la cave ( $\text{m}^3$ );  $\lambda_B$  est le taux de renouvellement d'air dans la cave à travers les ouvertures des fenêtres et des portes ( $\text{s}^{-1}$ ); et  $C_{ATM}^{Rn}$  est la concentration en radon dans l'atmosphère externe ( $\text{Bq.m}^{-3}$ ).

### 3.2.5 Maillage du domaine modélisé

Le maillage 2D est rectilinéaire et irrégulier avec 3696 éléments quadrilatéraux ( $NX=66$ ,  $NZ=56$  ; Figure 3-5a). Les pas d'espace le long des axes OX et OZ sont choisis de telle sorte à respecter un nombre de Péclet inférieur à 2 et afin de réduire la dispersion numérique (cf. § 1.5.1).

L'implémentation du modèle de cave BM2 nécessite tout simplement de désactiver les éléments de la cave et ceux du plancher de la dalle de la cuisine et du cellier, ce qui réduit le nombre d'éléments de calcul à 3488.

Certaines cellules extra (*Extra-cells*) ont été ajoutées pour simplifier la manipulation des conditions aux limites de type Dirichlet pour les cas d'une dépression ou surpression et de fraction massique en radon dans la phase gazeuse, constantes ou dépendantes du temps. Les conditions de Newman sont imposées aux frontières avec un flux d'eau nul (frontières latérales et substratum) ou un flux d'infiltration/évaporation (surface du sol).

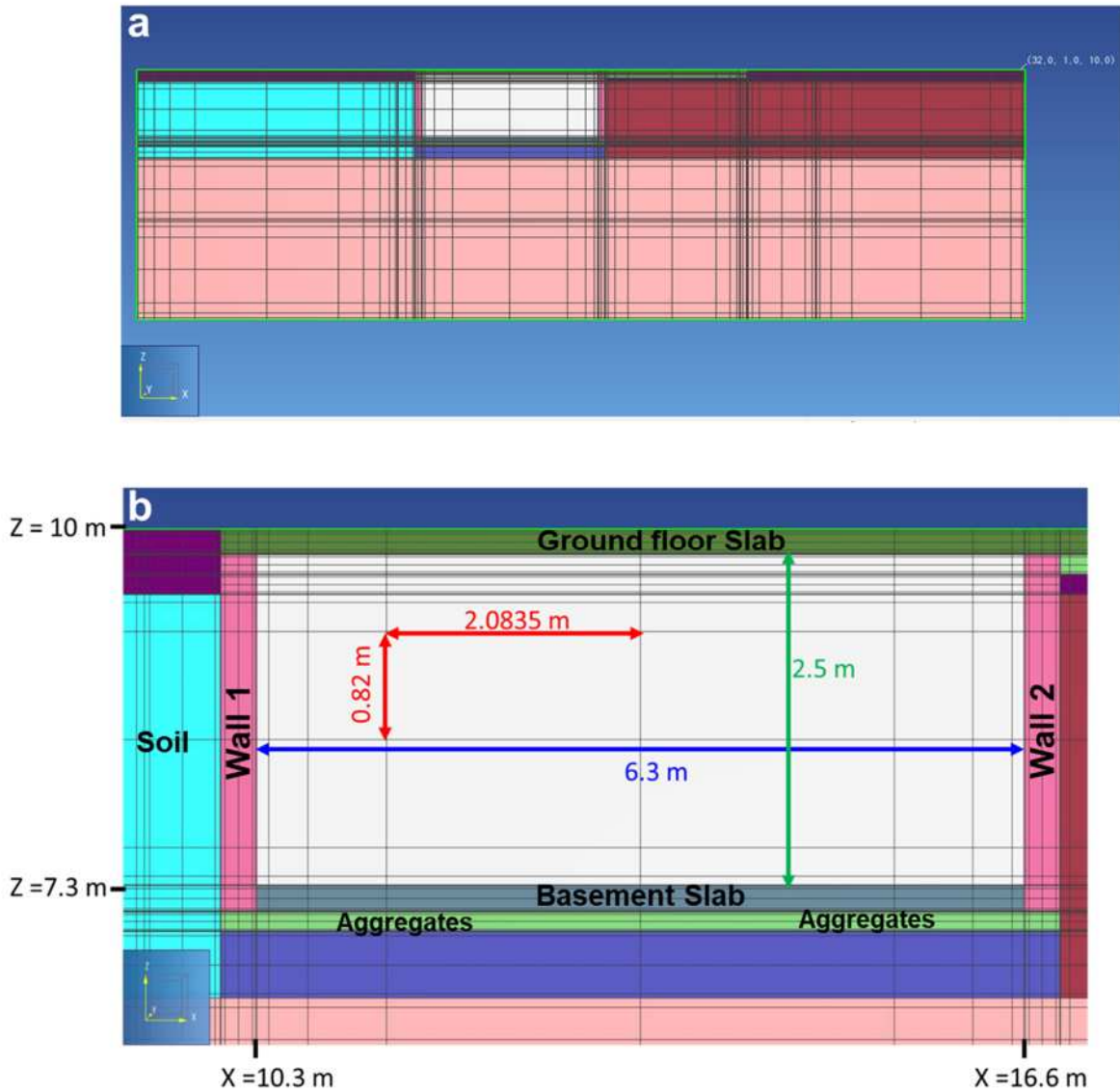


Figure 3-5 – a/ Maillage 2D du domaine, et les propriétés du sol et des matériaux de la fondation affectées aux éléments du maillage ; b/ Zoom sur le maillage de la cave (blanc) et du plancher de la dalle de la cuisine et du cellier (vert foncé) au-dessus de la cave, ainsi que les éléments du sol (Sable1: violet; Sable2 avec différents teneurs massiques en radium égales à 6.8, 8.8, and 7.8  $\text{Bq.g}^{-1}$  : cyan, marron et bleu ardoise moyen) et des matériaux de la fondation (murs : rose vif; dalles de la cave et du garage : gris ardoise clair et vert foncé, respectivement; agrégats : vert clair).

### 3.2.6 Etude en régime stationnaire

Cette étude est rendue simple par l'utilisation du modèle de cave BM2, en considérant certaines hypothèses sur les propriétés physiques des matériaux de la fondation, cela afin d'avoir une première estimation des paramètres souvent inconnus dans le modèle.

#### ➤ Hypothèses

- On suppose la présence des fissures de retrait le long de la périphérie des planchers des dalles de la cave et du garage formées par du béton coulé où elles coupent les semelles ou pieds (footings) des murs. Les fissures sont supposées également se former aux périphéries des murs à travers le plafond et les coins en intersection



avec le sol. On suppose que ces fissures sont sèches et que l'écoulement de l'air au sein de ces fissures est régi par un écoulement laminaire de Poiseuille entre deux plaques parallèles. Ainsi, la perméabilité intrinsèque de la fissure,  $k_c$  ( $m^2$ ), est calculée par l'équation suivante :

$$(3-3) \quad k_c = \frac{(w_c)^2}{12}$$

Où  $w_c$  est l'ouverture ou l'épaisseur de la fissure (m).

- ii. Les caractéristiques physiques des murs et des dalles fissurés, telles que la porosité et la perméabilité, sont modélisées par des propriétés effectives (i.e.,  $\phi_E$  (-) et  $k_E$  ( $m^2$ ), respectivement) représentatives d'un milieu poreux homogène équivalent, et qui sont estimées par les équations suivantes :

$$(3-4) \quad \phi_E = F_c = \frac{V_c}{V}$$

$$(3-5) \quad k_E = F_m \times k_m + F_c \times k_c$$

Où  $V$  est le volume de la dalle ou du mur ( $m^3$ ) ;  $F_c$  est la fraction volumique de l'ouverture de la fissure dans la dalle ou dans le mur (-) ; et  $F_m$  est la fraction volumique de la matrice solide de la dalle ou du mur (-). Cette dernière est calculée par l'équation suivante :

$$(3-6) \quad F_m = \frac{V_m}{V} = 1 - F_c$$

- iii. Seule la dépression est considérée dans la cave et le garage (i.e.,  $\Delta P_B$  et  $\Delta P_G$  sont des incréments négatifs) et est supposée constante dans le temps.

#### ➤ Propriétés physiques des matériaux de la fondation

Les premières estimations de la porosité et de la perméabilité effectives des dalles et des murs fissurés sont obtenues à partir des valeurs par défaut de la porosité et de la perméabilité intrinsèque de la matrice poreuse de ces matériaux et de la valeur par défaut de l'ouverture de la fissure  $w_c = 1 \times 10^{-4}$  m (100  $\mu$ m), Tableau 3-5. Ces valeurs sont typiques des matériaux de fondations des maisons dans la région. Les propriétés de la dalle sont celles d'un béton généralement utilisé dans les constructions de BTP (bâtiments et travaux publics).

Selon les hypothèses (i) and (ii), les longueurs des lignes de fissures ( $L_c$ ) formées le long de la périphérie du plancher de la dalle et des surfaces des murs qui recourent le sol, sont estimées à partir du plan architectural de la maison (Figure 3-1). L'ouverture de la fissure ( $w_c$ ) est supposée semblable dans la dalle et dans les blocs de murs, avec une porosité égale à 1. Pour la valeur par défaut  $w_c = 1 \times 10^{-4}$  m (100  $\mu$ m), la perméabilité intrinsèque,  $k_c$ , est calculé par l'Eq. (3-3) (Tableau 3-5). Puisque les calculs sont réduits à des surfaces 2D, la longueur de la fissure  $L_c$  est réduite à  $L_{c/Y} = L_c/LY$  (unité de longueur de la fissure par unité de longueur le long de l'axe OY), Tableau 3-5. Suit ainsi le calcul des fractions volumiques des fissures et de la matrice solide des dalles et des murs fissurés, i.e.  $F_c$  et  $F_m$  calculés par les Eqs. (3-4) et (3-6), respectivement, ainsi que leurs porosités et perméabilités intrinsèques,  $\phi_E$  et  $k_E$ , calculées par les Eqs. (3-4) et (3-5), respectivement.

**Tableau 3-5 – Caractéristiques physiques par défaut de la matrice solide et des fissures de la dalle et des murs, ainsi que leurs porosités et perméabilités équivalentes calculées par homogénéisation (moyenne volumique - *volume averaging*).**

	Garage		Basement
	Slab	Slab	Walls
Thickness, d (m)	0.2	0.2	0.3
Dry bulk density, $\rho_d$ (kg/m <sup>3</sup> )	2040	2040	2040
Solid matrix porosity (concrete), $\phi_m$ (-)	0.2304	0.2304	0.2304
Solid matrix permeability (concrete), $k_m$ (m <sup>2</sup> )	1E-20	1E-20	1E-17
Crack aperture, $w_c$ ( $\mu\text{m}$ ) <sup>a</sup>	100	100	100
Crack length, $L_c$ (m)	10.47	35.36	38.64
Crack length per unit length along Y-axis, $L_{c/Y}$ (m/m)	1.43	3.39	3.7
Crack porosity, $\phi_c$ (-)	1	1	1
Volumetric fraction of cracks, $F_c$ (-)	2.98E-05	5.35E-05	5.85E-05
Volumetric fraction of the solid matrix, $F_m$ (-)	0.999782	0.999441	0.999390
Crack permeability, $k_c$ (m <sup>2</sup> )	8.33E-10	8.33E-10	8.33E-10
<b>ECM-effective characteristics</b>			
Effective porosity, $\phi_E$ (-)	2.98E-05	5.35E-05	5.85E-05
Effective permeability, $k_E$ (m <sup>2</sup> )	2.49E-14	4.46E-14	4.87E-14

<sup>a</sup> Sensitive parameter (to be calibrated)

#### ➤ Analyse de sensibilité

Je décris ici la première approche réalisée pour l'optimisation des paramètres inconnus du modèle stationnaire. Pour plus de détails sur cette première approche, se référer à l'article de Saâdi et Marie (2017). Ces paramètres serviront par la suite comme premières estimations pour une optimisation par le modèle transitoire.

L'analyse de sensibilité des paramètres du modèle 2D est réduite aux quatre paramètres  $\lambda_B$ ,  $w_c$ ,  $\Delta P_B$  et  $\Delta P_G$ . En effet, 21 scénarios ont été simulés pour chaque valeur de  $\lambda_B$  (0 et 0.1 h<sup>-1</sup>), en combinant trois valeurs de  $w_c$  (10, 100, 1000  $\mu\text{m}$ ), et sept valeurs de la paire  $(\Delta P_B, \Delta P_G) = (0, 0), (-2, 0), (-5, 0), (-5, -2), (-7.5, -2), (-10, -0.5), (-15, -0.5)$  Pa (Tableau 3-6), ce qui est équivalent à 42 combinaisons de valeurs de paramètres  $\lambda_B$ ,  $w_c$  et  $(\Delta P_B, \Delta P_G)$ . La valeur de  $\Delta P_G$  est choisie plus grande que celle de  $\Delta P_B$  puisque le garage est plus ventilé par l'atmosphère. En réalité,  $\lambda_B$  et  $\Delta P_{\gamma=B,G}$  sont des paramètres dépendant du temps (Nazaroff et al., 1985). Toutefois, l'optimisation de ces paramètres par une analyse de sensibilité est possible et pourra estimer leur domaine de variations dans le temps.

**Tableau 3-6 – Les 21 scénarios simulés pour les différentes combinaisons de paramètres  $(\Delta P_B, \Delta P_G)$  et  $w_c$ , et pour deux valeurs de  $\lambda_B$  (0 et 0.1 h<sup>-1</sup>).**

Scenario#	$w_c$ ( $\mu\text{m}$ )	$(\Delta P_B, \Delta P_G)$ (Pa)	Scenario#	$w_c$ ( $\mu\text{m}$ )	$(\Delta P_B, \Delta P_G)$ (Pa)	Scenario#	$w_c$ ( $\mu\text{m}$ )	$(\Delta P_B, \Delta P_G)$ (Pa)
1		(0,0)	8		(0,0)	15		(0,0)
2		(-2,0)	9		(-2,0)	16		(-2,0)
3		(-5,0)	10		<b>(-5,0)</b>	17		(-5,0)
4	10	(-5,-2)	11	100	(-5,-2)	18	1000	(-5,-2)
5		(-7.5,-2)	12		<b>(-7.5,-2)</b>	19		<b>(-7.5,-2)</b>
6		(-10, -0.5)	13		<b>(-10, -0.5)</b>	20		(-10, -0.5)
7		(-15,-0.5)	14		(-15,-0.5)	21		(-15,-0.5)

La solution atteinte en régime stationnaire doit approcher les deux valeurs de la concentration en radon moyenne mesurée ponctuellement dans la cave (107 779 Bq.m<sup>-3</sup>) et le flux d'entrée du radon moyen mesuré au plancher de

la cave (cf. § 3.2.1). Les simulations sont réalisées en considérant la pression et la température moyenne de l'air atmosphérique.

- Simulation de flux du radon à l'interface cave-sol et de la concentration en radon dans la cave

Les erreurs relatives sur les valeurs simulées de la concentration en radon et de flux ont montré que les paramètres du modèle qui ajustent au mieux les données mesurées correspondent aux scénarios avec une ouverture de fissure moyenne  $w_c = 100 \mu\text{m}$ , une dépression entre -10 et -5 Pa, et un faible taux de renouvellement d'air ( $\lambda_B \approx 0$ ). Les valeurs de  $\Delta P_G$  pour ces scénarios (entre -2 et 0 Pa) sont consistantes avec les faibles valeurs de flux d'exhalation du radon mesuré au plancher du garage (cf. § 3.2.1).

La Figure 3-6 montre la comparaison entre les flux de radon simulés à l'état stationnaire et ceux mesurés au plancher de la cave pour les paramètres optimaux du modèle (scénarios#10, 12-13 avec  $\lambda_B = 0$ ). Même si l'erreur relative sur ce flux est importante pour le scénario#13 avec  $\lambda_B = 0$  (69.7 %), elle est très faible pour la concentration en radon (1%). Ces incertitudes sont essentiellement attribuées à la surestimation de flux du radon mesuré au mur 2 (*Wall 2*). Il y a deux raisons pour expliquer ces incertitudes. La première est la variabilité spatiale des propriétés du sol autour de la cave, qui est très difficile à contrôler : les caractéristiques physiques et du terme source radon mesurées aux points EB et CA dans le premier mètre du sol (Tableau 3-4) ont été attribuées aux profils verticaux de sols adjacents à chaque côté des deux murs 1 & 2 (*Walls 1 & 2*). La seconde raison est l'incertitude importante sur la teneur en radium mesurée en ces points (Tableau 3-4).

Des exemples de simulation de la perturbation de la pression de gaz par rapport à l'état initial (en valeur absolue) et de la concentration en radon sont montrés dans la Figure 3-7A et la Figure 3-7B, respectivement (scénario#11). La zone de succion de gaz du sol peut être étendue jusqu'à la frange capillaire en dessous de la cave. La concentration en radon du sol peut atteindre plus que  $1 \text{ MBq.m}^{-3}$  excepté au voisinage de la surface du sol. Elle est très élevée dans le sol au voisinage du mur 2 (*Wall 2*) que celles au voisinage du mur 1 (*Wall 1*) et de la dalle de la cave, à cause de sa valeur élevée de la teneur massique en radium (Tableau 3-4). Ceci est également vrai pour le flux d'exhalation du radon simulé.

Les erreurs relatives sur la concentration en radon simulée sont très élevées pour une aération permanente de la cave avec une valeur  $\lambda_B = 0.1 \text{ h}^{-1}$ , ce qui démontre que cette cave n'échange pas des volumes d'air importants avec de l'extérieur (peut-être plus durant certains intervalles de temps très courts).

Les scénarios avec la faible valeur de  $w_c$  ( $10 \mu\text{m}$ ) ne peuvent pas expliquer les valeurs de flux et de concentration en radon élevés mesurés dans la cave, et cela quelque soient les valeurs de  $\Delta P_B$  et de  $\Delta P_G$ . Même si l'erreur relative sur la concentration en radon est faible pour les valeurs élevées de  $w_c = 1000 \mu\text{m}$  et de  $\lambda_B = 0.1 \text{ h}^{-1}$ , elle était substantielle pour le flux d'exhalation du radon, quel que soit les valeurs de  $\Delta P_B$  et de  $\Delta P_G$  (e.g., scénario#19). Un autre résultat important est que le phénomène de diffusion tout seul ne pourra pas expliquer les concentrations en radon élevées mesurées dans la cave, quel que soit la valeur de  $w_c$  (e.g., scénarios#1,8,15 avec  $\lambda_B = 0$ ). Ce résultat est semblable à celui trouvé par Nazaroff (1992).

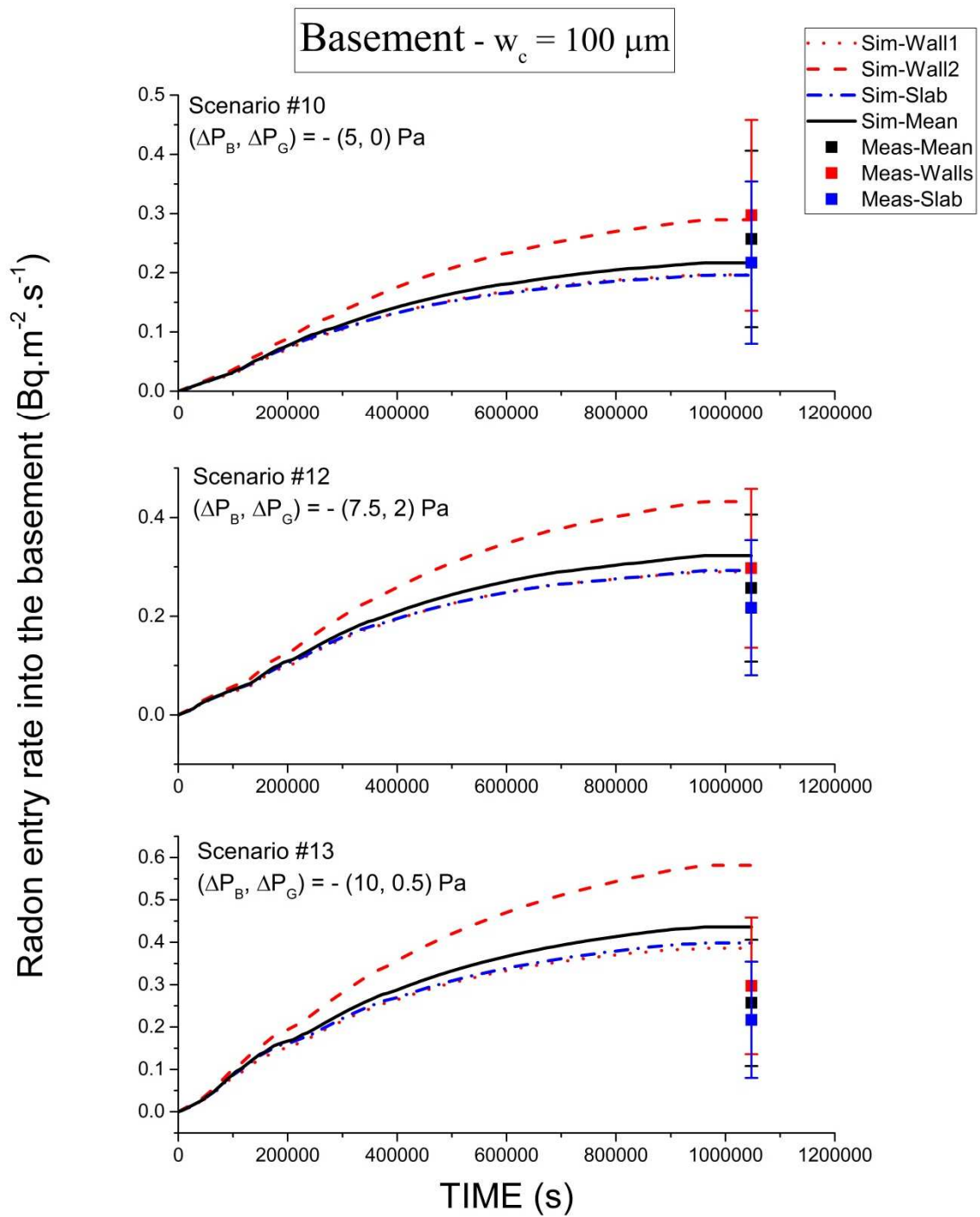


Figure 3-6 – Flux d'exhalation du radon mesuré et simulé à la surface de la dalle et des murs de la cave pour les paramètres optimaux.

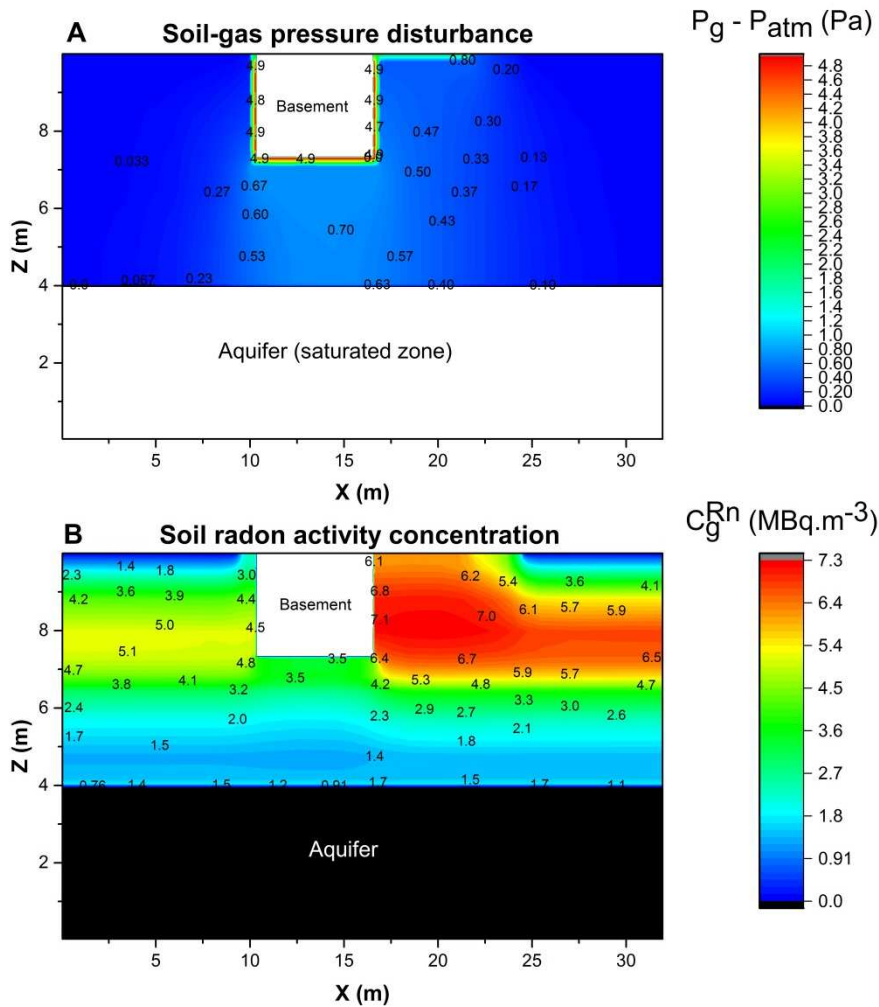
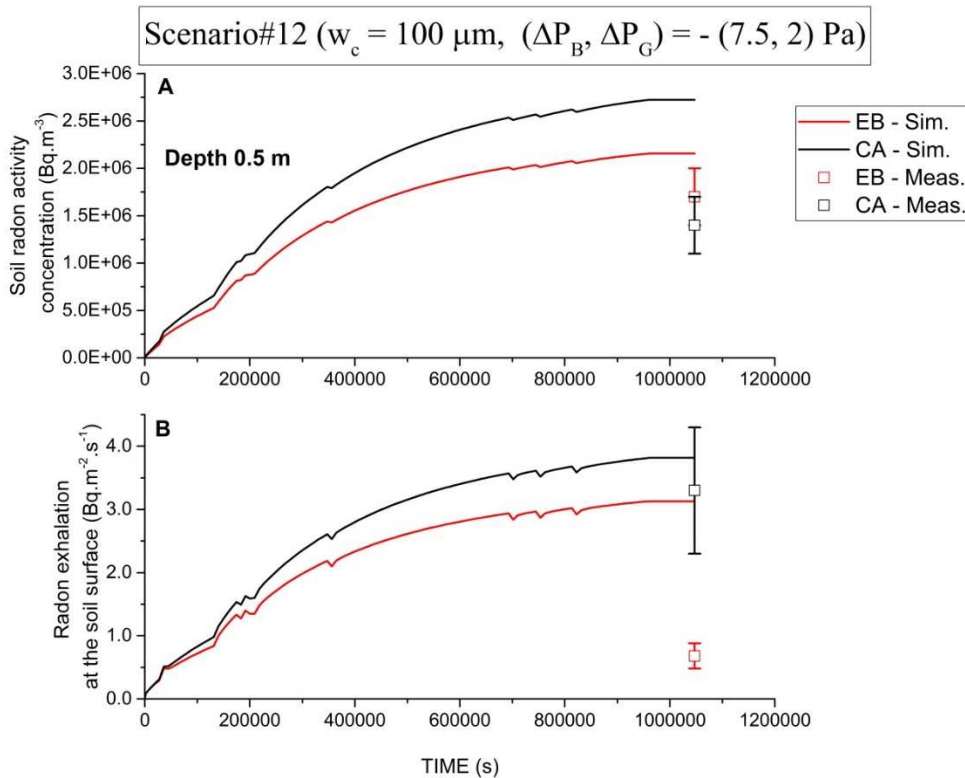


Figure 3-7 – Profils 2D stationnaires : A/ Perturbations de la pression de gaz du sol par rapport à sa valeur à l'état initial. B/ Concentration en radon dans le gaz du sol (scénario#11).

- Simulation de flux et de la concentration en radon de l'air du sol

Pour tous les scénarios avec  $w_c = 100 \mu m$ , la dépression de la cave à un faible impact sur la concentration en radon simulée à 0.5 m de profondeur ainsi que sur le flux d'exhalation du radon vers l'atmosphère aux points EB et CA. La Figure 3-8A montre que la concentration en radon simulée surestime celle mesurée à 0.5 m de profondeur (e.g., scénario#12). Ceci peut être expliqué par l'incertitude sur la teneur massique en radium mesurée aux points EB et CA (Tableau 3-4).

Un accord remarquable est trouvé entre les flux d'exhalation du radon simulé et mesuré au point CA (Figure 3-8B), alors que ce n'est pas le cas pour le point CB. Ceci s'explique, d'une part, par l'attribution des mêmes propriétés physiques et du terme source radon aux deux points, et d'autre part, par l'assignement des valeurs mesurées de la perméabilité à 1 m de profondeur et de la teneur en radium au point AA à celles de la couche du sable 1 de 0.5 m d'épaisseur.



**Figure 3-8 – Comparaison modèle-mesure : A/ concentration en radon à 0.5 m de profondeur. B/ flux d'exhalation du radon aux points EB et CA.**

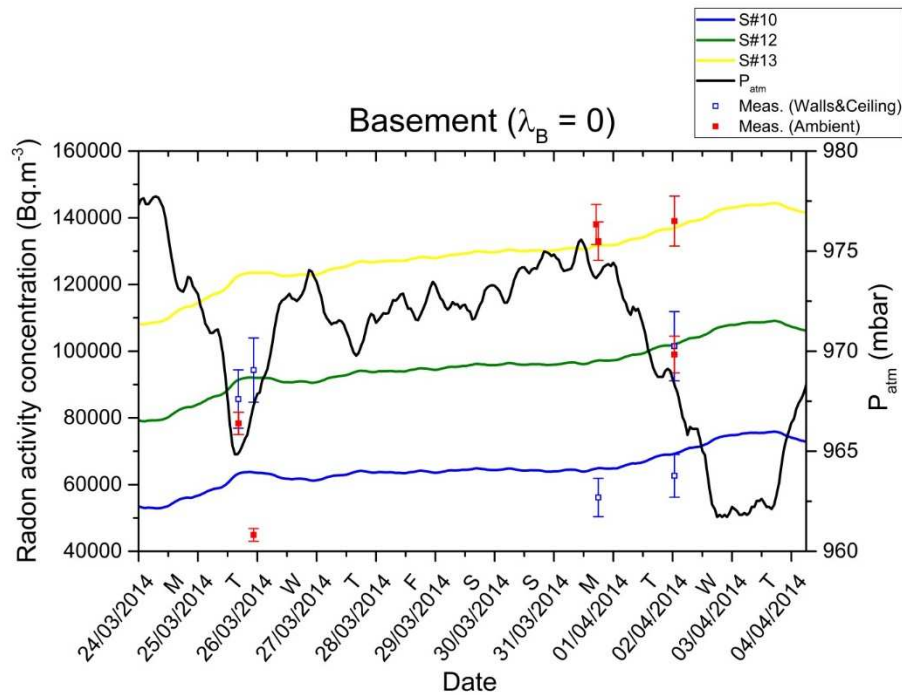
### 3.2.7 Étude du régime transitoire

Si on réalise des simulations avec les paramètres optimisés à travers une étude de sensibilité en régime stationnaire, comme décrit dans le paragraphe § 3.2.6 (i.e., scénarios#10-13 avec  $\lambda_B = 0$ ), en considérant les fluctuations de la pluie efficace à la surface du sol et les différences de pression  $\Delta P_B$  et  $\Delta P_G$  par rapport à la pression atmosphérique externe à la maison, on obtient les courbes de concentration en radon dans la cave montrées, Figure 3-9. On constate que pour le domaine de variation des valeurs de  $\Delta P_B$  optimisées, le modèle couvre complètement le domaine de variation des concentrations en radon mesurées d'une manière ponctuelle. Même si le modèle BM2 ne peut pas reproduire les fluctuations dans le temps de la concentration en radon, il permet d'avoir une idée sur les ordres de grandeurs des paramètres inconnus et leur éventuelle variation dans le temps. Les valeurs de ces paramètres peuvent être considérées comme premières estimations pour une étude en régime d'écoulement transitoire.

En réalité, il y a plusieurs raisons pour cette limitation de BM2 :

- Les différences de pression  $\Delta P_B$  et  $\Delta P_G$ , et  $\lambda_B$  ne sont pas constants dans le temps, et leur dépendance dans le temps doit être prise en considération dans un régime d'écoulement transitoire ;
- La concentration en radon dans la cave n'est pas homogène, et donc BM2 n'est pas convenable pour prédire l'évolution temporelle de la concentration en radon aux différentes positions au sein de la cave. L'utilisation de la géométrie de BM1 pour la cave (Figure 3-5) peut être une alternative pour résoudre ce problème ;
- L'ouverture de la fissure  $w_c = 100 \mu\text{m}$  a été supposée identique pour les murs et les dalles, et que les fissures se forment uniquement sur la périphérie des murs et des dalles, ce qui n'est pas souvent le cas.

Afin de prendre en compte ces limitations, certaines hypothèses discutées dans le § 3.2.6 ont été revues et améliorées, et de nouvelles hypothèses ont été considérées dans les calculs, comme sera montré par la suite.



**Figure 3-9 – Comparaison des concentrations en radon transitoires simulées dans la cave par le modèle BM2 avec celles mesurées d'une manière ponctuelle durant la période de campagne de mesure du radon par l'IRSN. Simulations avec les paramètres optimisés des scénarios#10,12-13 à l'état stationnaire.**

➤ **Nouvelles hypothèses**

- On suppose que les lignes de fissures se forment également au centre des murs et des dalles ;
- Puisque aucune information n'est donnée sur les épaisseurs, les longueurs et les positions des fissures, ainsi que leur variabilité spatiale au sein des matériaux de la fondation, l'hypothèse d'un milieu poreux homogène équivalent représenté par une porosité et perméabilité effectives des matériaux poreux constituant les murs et les dalles fissurés est une très bonne alternative. Cette hypothèse a été bien confirmée par Saâdi (2018) pour une configuration de maison avec cave semblable à celle de la maison étudiée ici (Figure 3-4) ;
- L'effet cheminée (stack effect : SE) dû à la convection thermique du gaz du sol vers la cave est modélisé par une dépression ou surpression à travers des valeurs négatives ou positives des incréments  $\Delta P_{G-SE}$  (Pa) et  $\Delta P_{B-SE}$  (Pa) dans le garage et dans les chambres au-dessus de la cave, respectivement. En effet, la différence de pression à travers les murs du RDC de la maison due à l'effet cheminée induit par la différence de température entre l'air externe et interne des deux côtés des murs, i.e.,  $T_{out}$  (K) et  $T_{in}$  (K) respectivement, est calculée par :

$$(3-7) \quad \Delta P_{SE} = \rho_0 T_0 g h (1/T_{in} - 1/T_{out})$$

Où  $\rho_0$  est la masse volumique de l'air ( $\text{kg.m}^{-3}$ ) en conditions normales de température et de pression, soient  $P_0 = 1 \text{ atm.}$  (101325 Pa), et  $T_0 = 273.15 \text{ K}$ , respectivement. Le produit  $\rho_0 T_0$  est tout simplement égal à  $M_a P_0 / R$  avec  $M_a$  est la masse molaire de l'air ( $0.029 \text{ kg.mol}^{-1}$ ),  $R$  est la constante universelle des gaz ( $8.31 \text{ J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ) ;  $g$  est l'accélération de la pesanteur ( $9.81 \text{ m.s}^{-2}$ ) ;  $h$  est la hauteur de l'interface à partir d'une hauteur de référence (surface du sol), prise égale à 2 m dans cette étude ;



- d) En plus du mécanisme c), la différence de pression induite par le vent (augmentation de la pression à la surface du mur) est considérée. Celle-ci est calculée connaissant la vitesse de vent  $V$  (m/s) et un coefficient de pression adimensionnel noté  $C_p$ , comme suit :

$$(3-8) \quad \Delta P_W = \rho_{ext} \cdot C_p \cdot V^2 / 2$$

Avec  $\rho_{ext}$  est la masse volumique de l'air ( $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ ). Le coefficient de pression  $C_p$  est déterminé empiriquement. Il est déterminé en fonction de la force du vent (*Wind buoyancy*) et sa direction. La valeur de  $C_p$  utilisée dans cette étude est obtenue à partir des données AIVC (Liddament, 1996) et est considérée souvent égale à 0.4 ;

- e) La cave est supposée en permanence mal aérée ( $\lambda_B \approx 0$  ; cf. § 3.2.6), excepté durant les périodes de l'ouverture de sa porte (Tableau 3-7) où  $\lambda_B \approx 0.5 \text{ h}^{-1}$ . Durant trois périodes de mesure en continu dans la cave, l'AlphaGuard a été purgée pour l'évacuation de gaz, ce qui fait chuter fortement la concentration en radon dans la chambre de mesure de l'AG (**! pas à l'intérieur de la cave**). Pour modéliser cette chute brutale avec le modèle de cave BM1, une méthode astucieuse a été utilisée en considérant des valeurs infinies de  $\lambda_B$  (Tableau 3-7) uniquement aux éléments du maillage où se positionne l'AG dans la cave (i.e., quatre éléments situés à  $X = 0.05, 0.26 \text{ m}$  à partir du mur 1 (Wall 1), et à deux hauteurs différentes,  $Z = 0.69, 1.51 \text{ m}$  à partir du plancher de la cave).

Finalement, l'incrément global  $\Delta P_\beta$  (Pa) ( $\beta \equiv G$  or  $B$ ) pour le garage ou les chambres au-dessus de la cave est égal à la somme de  $\Delta P_{\beta-SE}$  et  $\Delta P_{\beta-W}$ .

Avec ces nouvelles hypothèses le nombre de paramètres est réduit à deux, i.e., porosité et perméabilité effectives de chaque matériau de la fondation (murs et dalles).

Dans ce qui suit, je présente la calibration et la validation du modèle de cave BM1 pour la simulation de la concentration en radon mesurée par l'AlphaGuard (cf. § 3.2.1) ainsi que sa comparaison avec le modèle BM2.

**Tableau 3-7 – Périodes temporelles de l'ouverture de la porte de la cave et de la purge de l'appareil AlphaGuard (AG), ainsi que les taux de renouvellement d'air associés.**

	Initial time	Final time	Period (h)	$\lambda_B$ ( $\text{h}^{-1}$ )
	2014/3/26 5:00	2014/3/26 13:00	8	0.5
Basement door opening	2014/4/2 6:00	2014/4/2 17:00	11	0.5
	2014/4/2 20:00	2014/4/3 1:00	5	0.5
AG gas purge	2014/3/26 13:00	2014/3/26 17:00	4	100
	2014/3/27 17:00	2014/3/27 20:00	3	20
	2014/3/28 9:00	2014/3/28 12:00	3	10

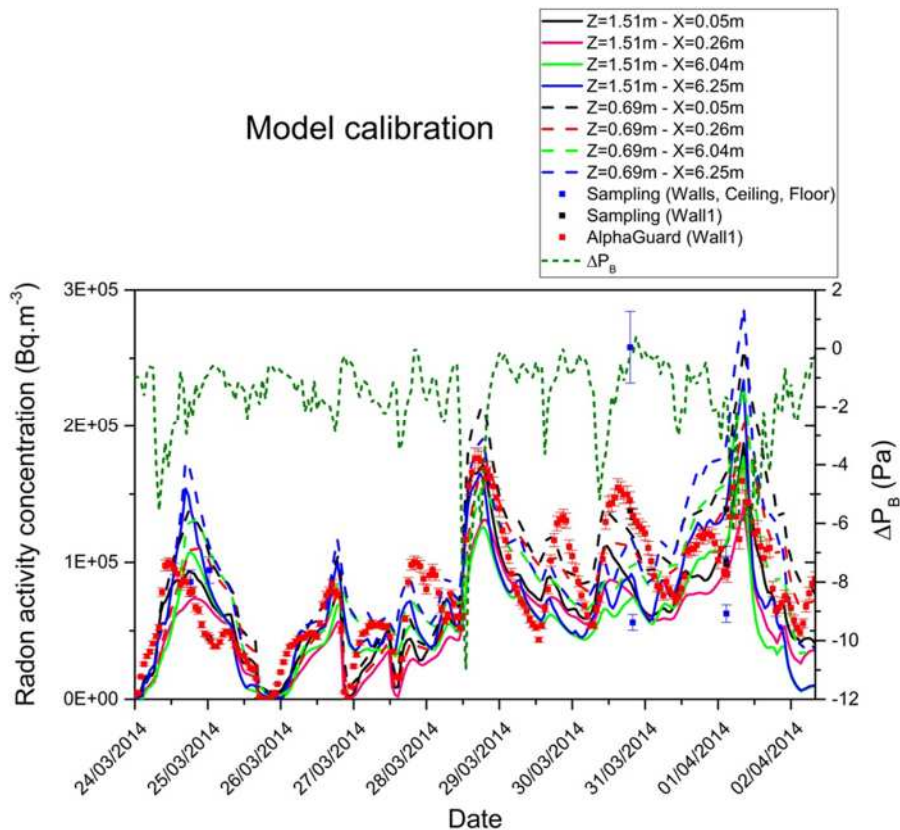
#### ➤ Calibration de BM1

L'analyse de sensibilité des paramètres du modèle de cave BM1 a été réduite à la porosité et à la perméabilité effective du béton fissuré de la dalle du plancher et des murs de la cave, ainsi que celui de la dalle du garage, soit six paramètres au total. Dans un premier temps, les simulations ont été réalisées avec les paramètres optimisés lors de l'étude précédente en régime stationnaire, puis ces derniers ont été variés de telle sorte à minimiser les écarts entre les concentrations en radon mesurées en continu par l'AG et celles simulées aux positions proches du mur 1 (Wall 1) où se situe l'AG. En effet, la porosité effective de la dalle du garage, et celles de la dalle et des murs 1 &



2 (walls 1&2) de la cave ont été variées dans les intervalles  $[2.98 \times 10^{-5}, 2.98 \times 10^{-3}]$ ,  $[5.35 \times 10^{-5}, 5.35 \times 10^{-3}]$  et  $[5.85 \times 10^{-5}, 5.85 \times 10^{-3}]$ , respectivement. Les perméabilités intrinsèques correspondant ont été variées également dans les intervalles  $[2.49 \times 10^{-14}, 2.49 \times 10^{-11}]$ ,  $[4.46 \times 10^{-14}, 4.46 \times 10^{-11}]$ , et  $[4.87 \times 10^{-13}, 4.87 \times 10^{-11}] \text{ m}^2$ .

La Figure 3-10 montre un très bon accord entre les concentrations en radon mesurées et simulées durant toute la durée de la campagne de mesure du radon dans la maison Jusiak pour les paramètres effectifs  $\phi_E$  et  $k_E$  de la dalle du garage, et de la dalle et des murs 1&2 (Walls 1&2) de la cave (Tableau 3-8). Les variations temporelles des pics du radon simulés sont en accord avec celles mesurées durant les périodes de chutes de pression importantes dans le RDC de la maison,  $\Delta P_B$ , calculées par les Eqs. (3-7) et (3-8). Les valeurs optimisées de la perméabilité effective confirment de nouveau les résultats de Saâdi et Marie (2017) selon lesquels les flux d'exhalation du radon à travers les murs sont plus importants que ceux à travers la dalle de la cave (perméabilité du mur plus élevée que celle de la dalle). En outre, les valeurs de  $\Delta P_B$  varient entre -11 et +0.4 Pa. Ces valeurs sont consistantes avec celles optimisées en supposant  $\Delta P_B$  comme un paramètre inconnu en régime d'écoulement stationnaire (cf. § 3.2.6 ; valeurs optimisées  $\Delta P_B$  du modèle BM2, variant entre -10 et -5 Pa, i.e., Scénarios#10-13).



**Figure 3-10 – Comparaison des concentrations en radon mesurées en continu par l'AG au point ( $Z \sim 1 \text{ m}$ ,  $X \sim 0.2 \text{ m}$ ) avec celles simulées par BM1 à différentes hauteurs  $Z$  à partir du plancher de la cave et différentes distances  $X$  à partir du mur 1 (Wall 1) de la cave – Phase de calibration.**

Comme montré dans la Figure 3-10, la chute brutale des trois premiers pics de concentration en radon mesurés n'est pas due à la surpression de la cave. Elle n'aurait pas pu être simulée par BM1 si la purge du gaz de l'AG aux différents temps n'avait pas été modélisée en considérant des valeurs infinies de  $\lambda_B(t)$  uniquement aux points de mesure (Tableau 3-7).

Les valeurs de la perméabilité intrinsèque et de la porosité effective optimisées ici regroupent toute l'information nécessaire sur la géométrie des fissures (i.e., épaisseur, longueur) au sein de chaque partie de la fondation (murs,

dalles). En effet, si on considère les hypothèses (i) et (ii) décrites dans la section 3.2.6, alors la perméabilité de la fissure,  $k_c$  ( $m^2$ ), son ouverture,  $w_c$  (m), et sa longueur effective  $L_c$  (m) peuvent être estimées en combinant les équations (3-3)-(3-6) comme suit :

$$(3-9) \quad k_c = \frac{(w_c)^2}{12} = k_E / \phi_E - (1/\phi_E - 1) \times k_m$$

$$(3-10) \quad L_c = S \times \phi_E / w_c$$

Où  $k_m$  est la perméabilité intrinsèque de la matrice solide constituant la dalle ou le mur ( $m^2$ ); S est la surface du plancher de la dalle ou du mur.

Le Tableau 3-8 récapitule les valeurs des trois paramètres effectifs ( $k_c$ ,  $L_c$ ,  $w_c$ ) obtenues à partir des valeurs optimisées de la porosité et de la perméabilité effectives des matériaux des fondations de la cave et du garage. Les valeurs de  $w_c$  calculées ne sont pas très différentes de la valeur 100  $\mu m$  optimisée par plusieurs auteurs (e.g., Yu et al., 2009). En revanche, une information importante est obtenue à partir des valeurs de  $L_c$ . En effet, ces valeurs sont beaucoup plus élevées que celles dues uniquement aux fissures de retrait ( $L_{c,shrinkage}$ , Tableau 3-8) formées le long de la périphérie du plancher et des surfaces des murs qui recourent le sol. Les valeurs de  $L_{c,shrinkage}$  sont de 42%, 9% et 33 % inférieures à celles de  $L_c$  pour la dalle et les murs de la cave, et la dalle du garage, respectivement. Ce résultat prouve que la majeure contribution des lignes de fissures à l'entrée du radon dans la cave provient essentiellement de celles créées à la surface plutôt qu'à la périphérie des matériaux de la fondation.

**Tableau 3-8 – Paramètres effectifs des fissures (épaisseur, longueur, perméabilité) dans les éléments de la fondation de la cave et du garage (murs et dalles), déduits de leurs porosités et perméabilités effectives optimisées.**

	Basement		Garage
	Walls	Slab	Slab
Matrix permeability, $k_m$ ( $m^2$ )	1.0E-17	1.0E-20	1.0E-20
Effective permeability, $k_E$ ( $m^2$ )	1.37E-12	4.46E-13	4.90E-13
Effective porosity, $\phi_E$ (-)	5.85E-04	5.35E-04	2.98E-04
Surface area, S ( $m^2$ )	26.1	66.1	35.1
Crack length due to shrinkage, $L_{c,shrinkage}$ (m)	38.54	33.54	24.22
Effective crack aperture, $w_c$ ( $\mu m$ )	168	100	140
Effective crack length, $L_c$ (m)	91	353	74
Effective crack permeability, $k_c$ ( $m^2$ )	2.34E-09	8.34E-10	1.64E-09

#### ➤ Validation de BM1 et sa comparaison avec BM2

Cette fois-ci les valeurs de  $\lambda_B$  aux éléments du maillage où se situe l'AG (i.e., les 4 éléments à côté du mur 1 (*Wall 1*) et à mi-hauteur de la cave, soient  $X = 0.05, 0.26$  m, et  $Z = 0.69, 1.51$  m) sont rendues finies (Tableau 3-7), et les simulations ont été réalisées sans changer les valeurs des trois perméabilités intrinsèques optimales de  $k_{GS}$ ,  $k_{BS}$  et  $k_{BW}$  obtenues lors de la phase de calibration du modèle BM1.

La Figure 3-11 montre en détails la comparaison entre les concentrations en radon mesurées en continu par l'AG et celles simulées par BM1 aux différentes positions X du côté du mur 1 (*Wall 1*) vers le mur 2 (*Wall 2*), et à trois hauteurs à partir du plancher de la cave. À côté du plancher ( $Z = 0.03$  m), BM1 simule des concentrations très élevées qui décroissent au fur et à mesure que l'on s'approche du plafond où la concentration en radon imposée est nulle. À mi-hauteur de la cave ( $Z$  entre 0.69 et 1.51 m) la concentration en radon est très élevée à côté des murs 1

& 2 (Walls 1 & 2) mais diminue progressivement vers le centre. Le profil 2D de la concentration en radon simulée dans la cave montré dans la Figure 3-12, confirme bien cette analyse. Les concentrations en radon élevées mesurées par l'AG sont remarquablement simulées par BM1. La Figure 3-13A montre que ces concentrations très élevées sont essentiellement dues aux fortes concentrations en radon dans le sol adjacent aux murs, qui atteignent des valeurs supérieures à  $1.0 \text{ MBq.m}^{-3}$ .

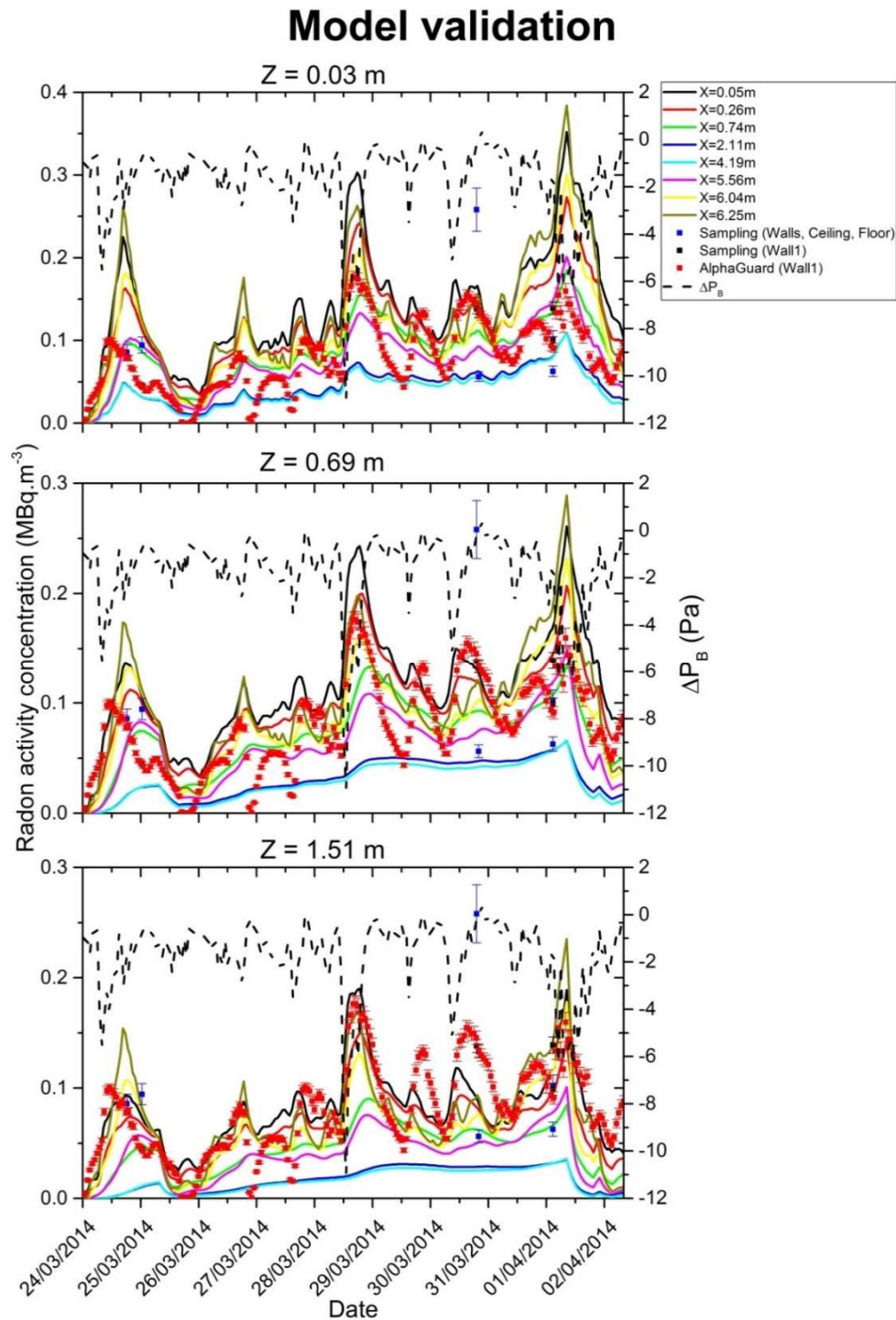


Figure 3-11 – Comparaison des concentrations en radon mesurées en continu par l'AG au point ( $Z \sim 1 \text{ m}$ ,  $X \sim 0.2 \text{ m}$ ) avec celles simulées par BM1 à différentes hauteurs  $Z$  à partir du plancher de la cave et différentes distances  $X$  à partir du mur 1 (Wall 1) de la cave - Phase de validation.

Même si la concentration en radon du sol est plus élevée dans celui adjacent au mur 2 (*Wall 2*) que dans celui adjacent au mur 1 (*Wall 1*), à cause des différences de teneur en radium entre les deux sols (voir aussi Figure 3-7b), le flux du radon entrant le mur 1 (*Wall 1*) peut être plus élevé que celui à travers le mur 2 (*Wall 2*). Ceci est expliqué par la présence du garage au-dessus du sol adjacent au mur 2 (*Wall 2*) qui pompe une partie non négligeable du radon de ce sol durant sa dépression.

On peut remarquer que les pics du radon simulés ne sont pas affectés par les changements d'une valeur infinie à une valeur finie de  $\lambda_B$  aux éléments du maillage représentant l'AG (Figure 3-11). Seules les chutes brusques de concentration en radon disparaissent lors de la purge du gaz de l'AG après les trois premiers pics. Les flux d'entrée du radon mesurés à travers la dalle et le mur 2 (*Wall 2*) de la cave (Figure 3-14), sont bien simulés par BM1 que par BM2. On note que BM2 n'arrive pas à simuler le flux du radon entrant la fondation de la cave à cause de sa surestimation du débit d'air calculé par BM1. La Figure 3-15 montre que même si BM2 sous-estime légèrement la concentration en radon moyenne simulée par BM1 (moyenne spatiale sur tous les 144 éléments de la cave), il échoue à reproduire la concentration en radon mesurée.

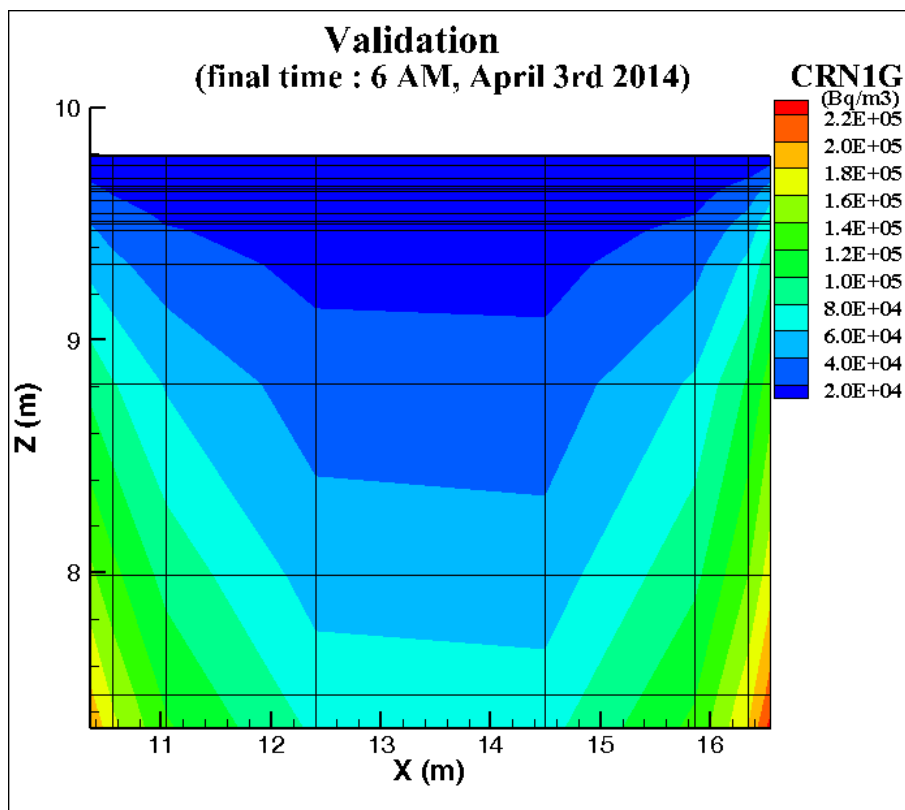


Figure 3-12 – Les profils 2D de concentration en radon simulés après 10 jours par BM1 au sein de la cave – Phase de validation.

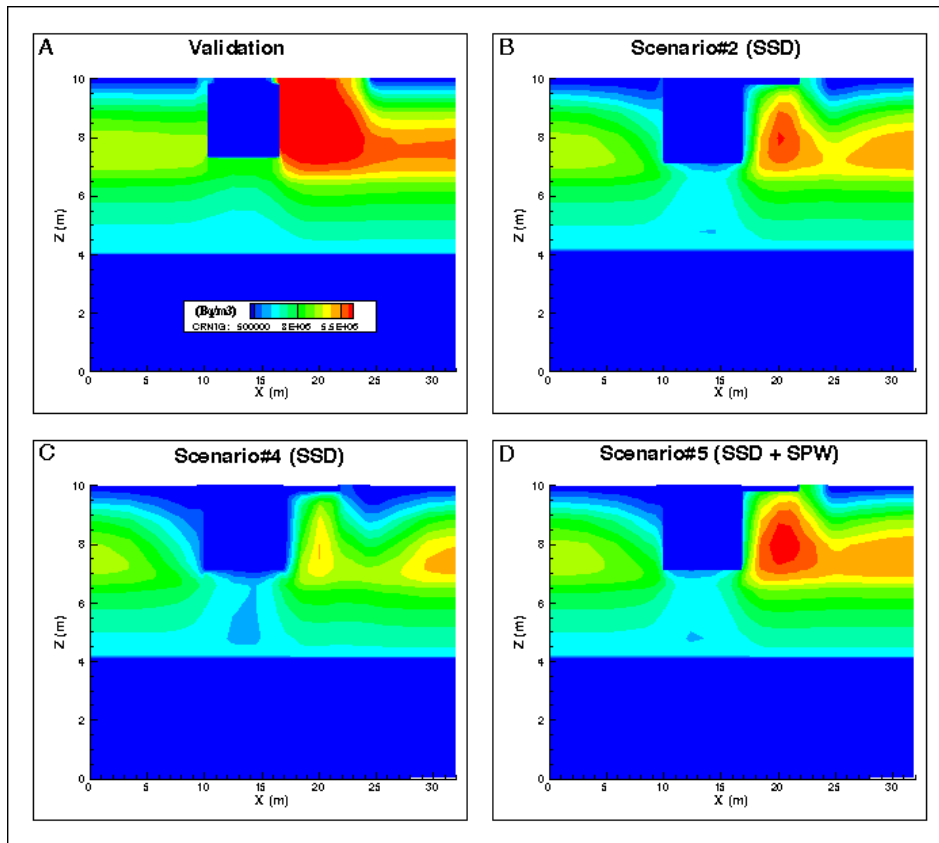


Figure 3-13 – Les profils 2D de concentration en radon simulés après 10 jours par BM1 au sein de la cave et dans le bloc de sol l’entourant. A/ Phase de validation. B/ Scénario#2. C/ Scénario#4. D/ Scénario#5.

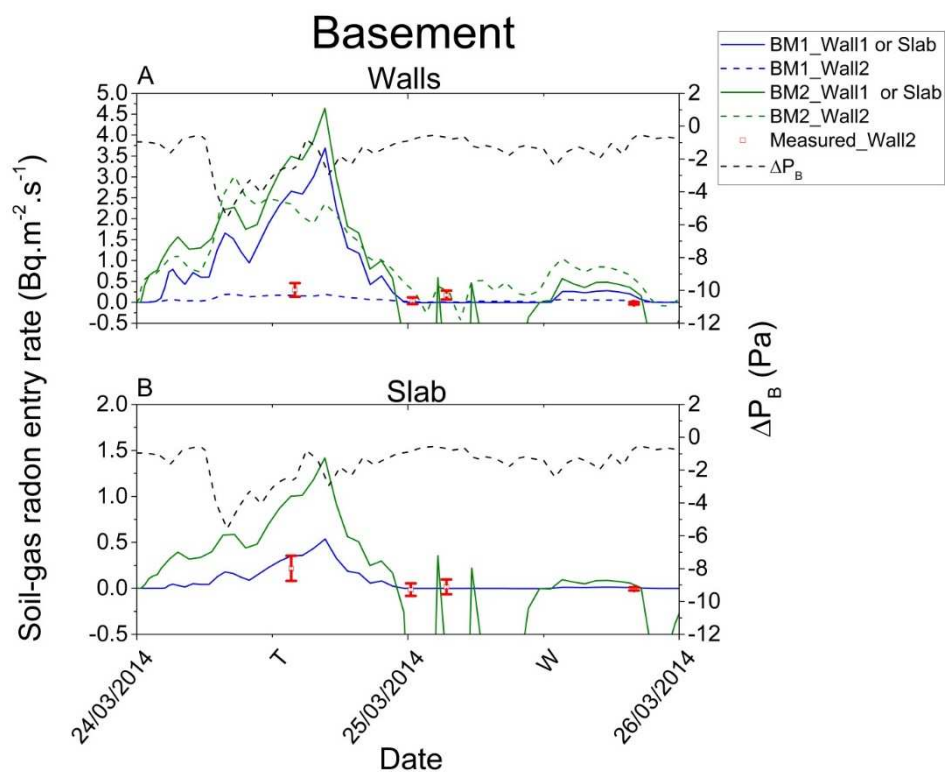


Figure 3-14 – Mesures et simulations BM1 et BM2 de flux d’exhalation du radon à l’interface cave-sol durant la campagne de mesure du radon dans la mesure. A/ Murs 1 & 2 (Walls 1&2). B/ Dalle (Slab).

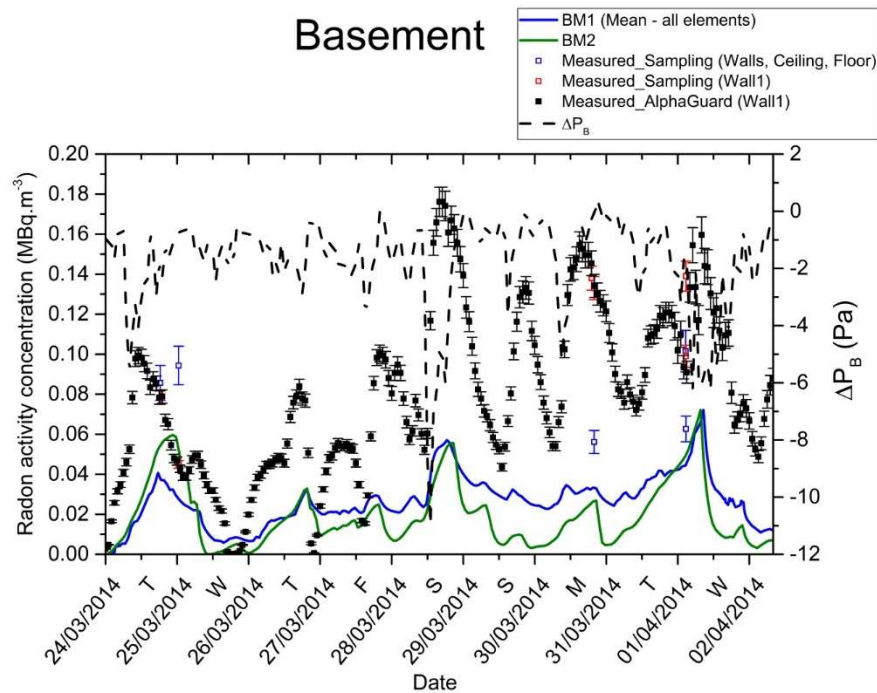


Figure 3-15 – Courbe de mesures transitoires par l’AG de la concentration en radon et sa comparaison avec celles des concentrations en radon moyennes simulées par BM1 et BM2 dans la cave durant la période de campagne de mesure du radon dans la maison Jusiak.

Les variations de la pression du gaz et de la diffusion du radon au sein de la cave, introduites par BM1, ont permis, d’une part de bien comprendre l’origine des variations temporelles des concentrations mesurées par l’AG en un point donné du volume de la cave (soumise à des différences de pression variables dans le temps entre l’intérieur et l’extérieur de la maison Jusiak), et d’autre part d’améliorer les simulations de flux du radon entrant la fondation de la cave par rapport au modèle de bilan de masse classique BM2.

### 3.2.8 Étude de mitigation du radon dans la cave de la maison

Dans ce qui suit, les modèles de systèmes (concepts) de dépressurisation du sol (*SDS : Soil Depressurization Systems*) seront basés sur BM1 et les meilleurs paramètres d’ajustement obtenus durant les phases de sa calibration et de sa validation.

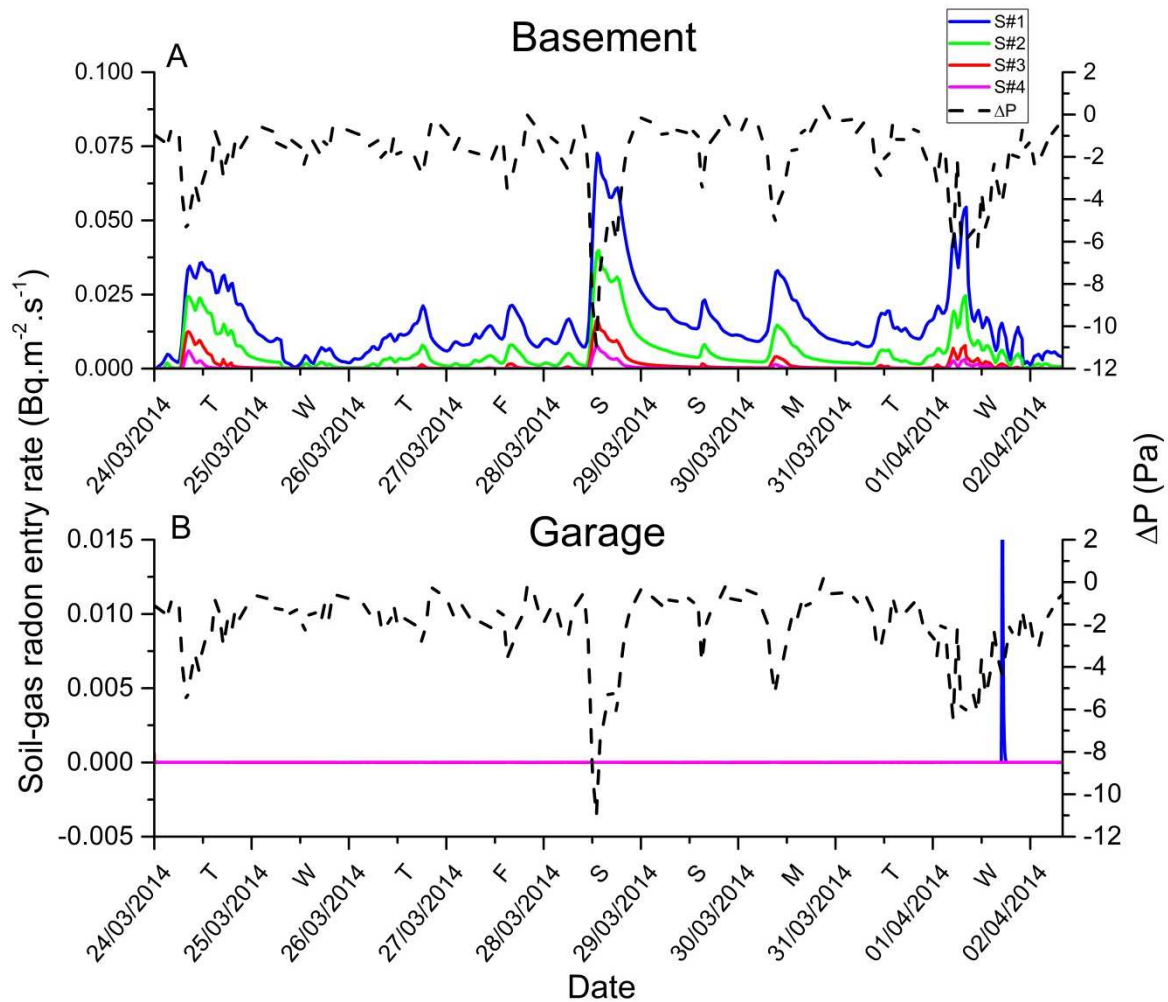
#### ➤ *Systèmes de dépressurisation sous la dalle du plancher (SSD : sub-slab depressurization systems)*

Quatre scénarios (#1-4) avec le concept SSD ont été simulés pour étudier la réduction de la concentration en radon dans la cave en faisant varier le taux de renouvellement d’air au sein des agrégats au-dessous de la dalle de la cave ( $\lambda_{\text{Agg/S-B}}$ ) entre 0.5 et 3.0 h<sup>-1</sup> (Tableau 3-9). Les valeurs de  $\lambda_{\text{Agg/S-B}}$  ne sont pas arbitraires mais correspondent à ceux généralement admises dans la littérature : la valeur 0.5 h<sup>-1</sup> a été utilisée pour des systèmes SSD passifs (i.e., extracteurs d’air statiques) ou actifs (i.e., extracteurs d’air mécaniques) par plusieurs auteurs (Diallo et al., 2015 ; Yu et al., 2009 ; Koffi, 2009 ; Holford et Freeman, 1996 ; Johnson et Ettinger, 1991 ; Nero, 1989 ; Mowris 1986). Les valeurs 1.0, 2.0, 3.0 h<sup>-1</sup> pour les systèmes SSD ont été également utilisées pour des extracteurs d’air mécaniques (e.g., Diallo et al., 2015). Les taux de ventilation dépendants du temps pour des systèmes SSD passifs, calculés à partir de la pression atmosphérique de l’air et de la vitesse du vent, ne seront pas testés dans cette étude.



**Tableau 3-9 – Les scénarios SSD et SSD-SPW pour l'étude de mitigation du radon dans la cave en faisant varier le taux de ventilation de l'air des agrégats au-dessous des dalles de la cave et du garage (i.e.,  $\lambda_{\text{Agg/S-B}}$  et  $\lambda_{\text{Agg/S-G}}$ , respectivement), et celui du sol à côté du mur 1 (Wall 1) (i.e.,  $\lambda_{\text{Soil/W1}}$ ).**

	Scenario #	$\lambda_{\text{Agg/S-B}}$ (h <sup>-1</sup> )	$\lambda_{\text{Agg/S-G}}$ (h <sup>-1</sup> )	$\lambda_{\text{Soil/W1}}$ (h <sup>-1</sup> )
SSD	1	0.5	0.0	0.0
	2	1.0	0.0	0.0
	3	2.0	0.0	0.0
	4	3.0	0.0	0.0
SSD + SPW	5	0.5	0.5	0.5
	6	0.5	1.5	0.5
	7	0.5	2.5	0.5
	8	1.0	3.0	1.0



**Figure 3-16 – Flux d'entrée du radon transitoires simulés par BM1 pour les scénarios SSD #1-4. A/ à travers la fondation de la cave (murs et dalle). B/ à travers la dalle du garage.**



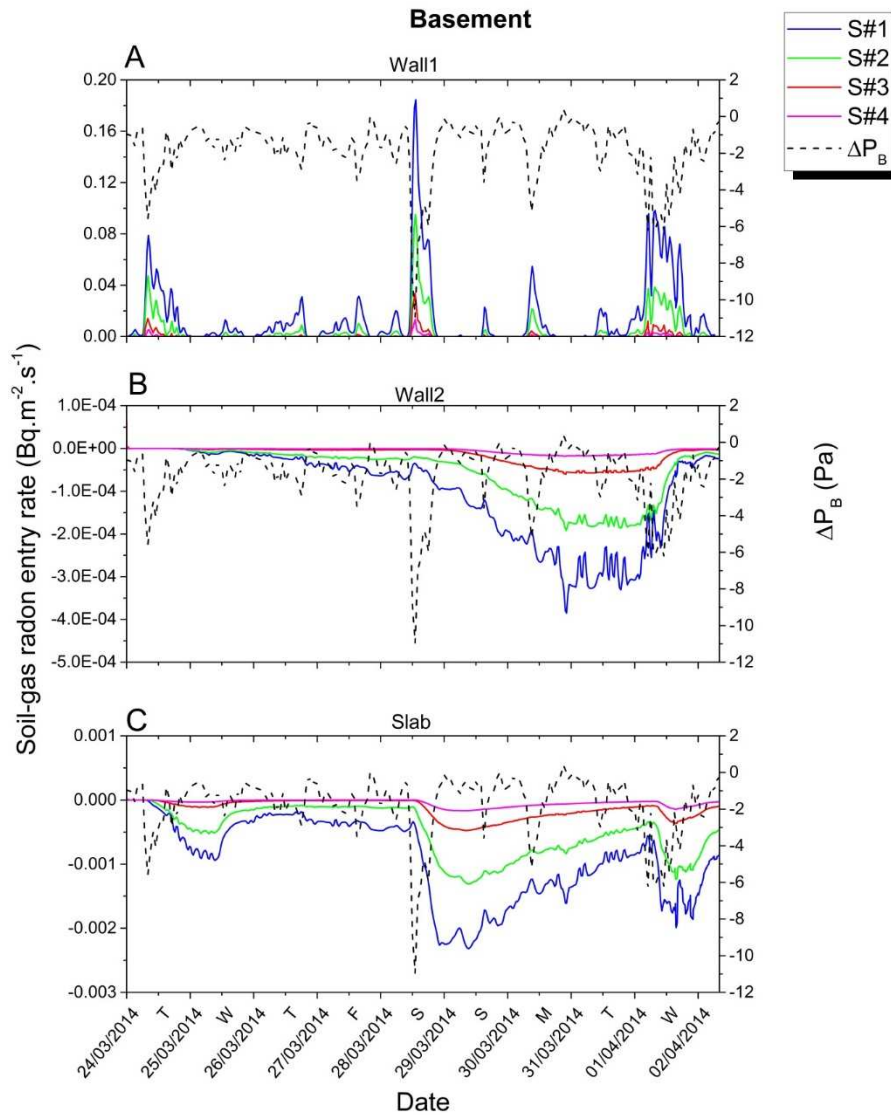


Figure 3-17 – Flux d'entrée du radon transitoires simulés par BM1 à travers les différents éléments de la fondation de la cave pour les scénarios SSD #1-4. A/ Mur 1 (Wall 1). B/ Mur 2 (Wall 2). C/ Dalle (Slab).

L'augmentation de  $\lambda_{\text{Agg/S-B}}$  réduit le débit d'air et par conséquent le flux du radon entrant le garage et la cave (Figure 3-16). Le flux du radon entrant le garage est réduit à néant, mais des pics de flux du radon entrant la cave sont simulés durant les périodes de fortes dépressions même pour des valeurs très élevées du taux de ventilation de l'air ( $\lambda_{\text{Agg/S-B}} = 3.0 \text{ h}^{-1}$ , scénario#4). La majeure contribution à ce flux provient du mur 1 (Wall 1) (Figure 3-17A). La contribution du mur 2 (Wall 2) et de la dalle (Figure 3-17B et Figure 3-17C, respectivement) est très faible pour tous les scénarios. Ces résultats sont en accord avec la réduction de la concentration en radon simulée dans le sol (e.g., Figure 3-13B et Figure 3-13C pour les scénarios #2 et #4, respectivement) autour de la fondation de la cave (i.e., murs 1 & 2 et dalle).

Les forts pics de flux du radon entrant simulés sont à l'origine des pics de concentration en radon simulés dans la cave (e.g., scénario#4, Figure 3-18). En effet, pour une valeur  $\lambda_{\text{Agg/S-B}} = 2.0 \text{ h}^{-1}$  (scénario#3), généralement produite par un extracteur d'air mécanique (i.e., Koffi, 2009; Diallo et al., 2015), les pics de concentration en radon dans la cave à une distance horizontale  $X$  inférieure à 0.74 m à partir du mur 1 (Wall 1), et à une hauteur  $Z$  comprise entre 1.5 et 2.0 m à partir du plancher de la cave (i.e., hauteur moyenne à laquelle un humain peut inhaler le radon) dépasse largement la valeur seuil de  $300 \text{ Bq.m}^{-3}$  généralement admise dans les habitations en France (pics à plus de  $2.5 \text{ kBq.m}^{-3}$ , qui peuvent atteindre  $\sim 14 \text{ kBq.m}^{-3}$  pour la forte dépression  $\Delta P_B = -11 \text{ Pa}$  calculée à 11 h du matin

le 29 mars 2014). Les concentrations en radon au centre de la cave et près du mur 2 (*Wall 2*) deviennent très faibles, ce qui est en accord avec les flux d'entrée du radon montrés dans la Figure 3-17. Les concentrations en radon des pics ont été fortement réduites au voisinage du mur 1 (*Wall 1*) pour le taux de ventilation de l'air le plus élevé  $3.0 \text{ h}^{-1}$  (scénario#4, Figure 3-18), mais elles restent très élevées à des hauteurs entre 1.5 et 2 m. En effet, les concentrations en radon des pics simulées pour la forte dépression  $\Delta P_B = -11 \text{ Pa}$  sont maintenant réduites à des valeurs comprises entre 500 et  $3000 \text{ Bq.m}^{-3}$ , et le radon disparaît complètement à une distance horizontale  $X$  supérieure à 2.11 m à partir du mur 1 (*Wall 1*). Ceci s'explique bien par la présence du garage, qui pompe le radon à partir du sol, évitant ainsi l'entrée du radon à travers le mur 2 (*Wall 2*).

Afin d'éviter les flux du radon substantiels entrant à travers le mur 1 (*Wall 1*), qui sont à l'origine des fortes concentrations en radon dans la cave, il est nécessaire de réduire la concentration en radon dans le sol adjacent au mur 1 (*Wall 1*).

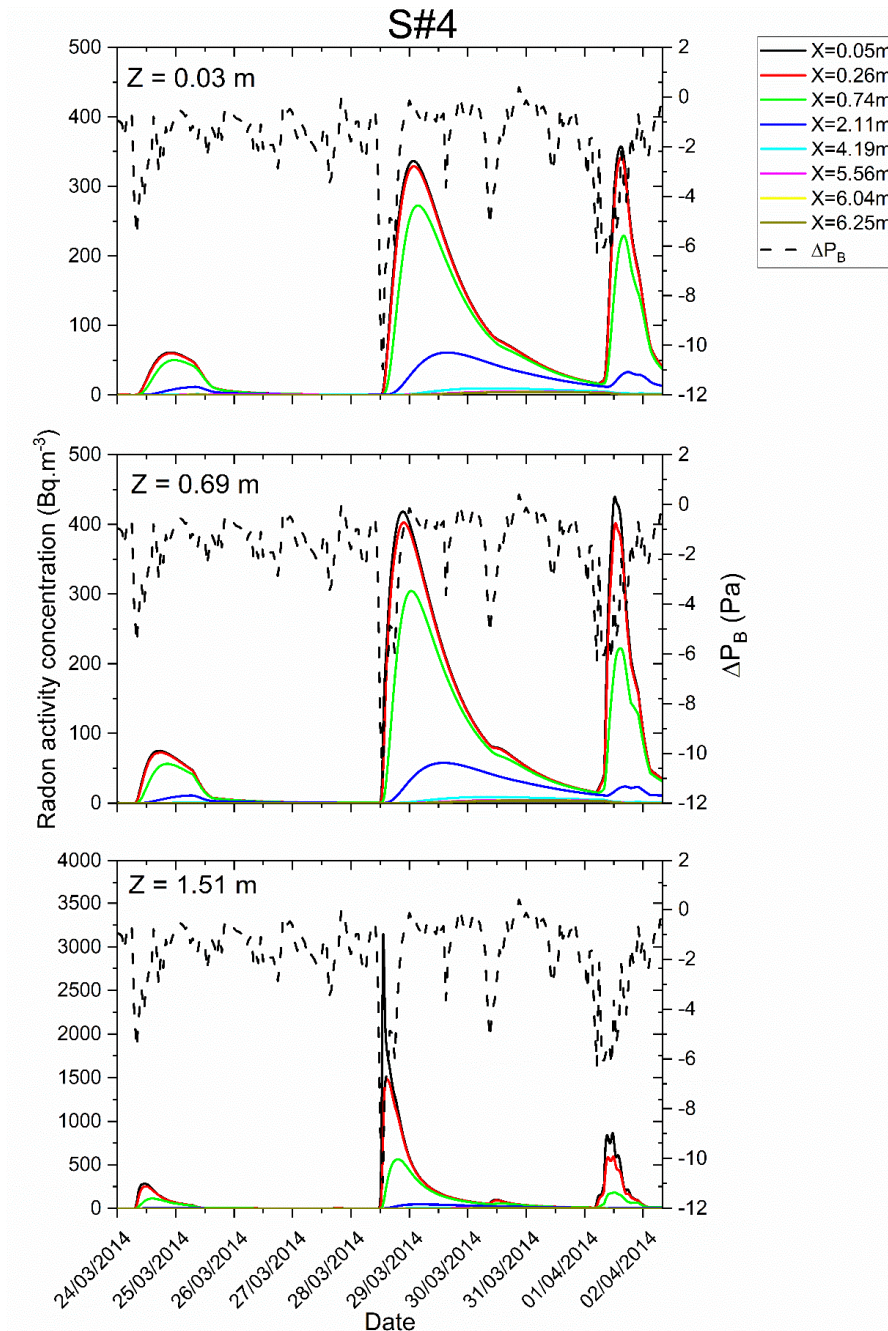
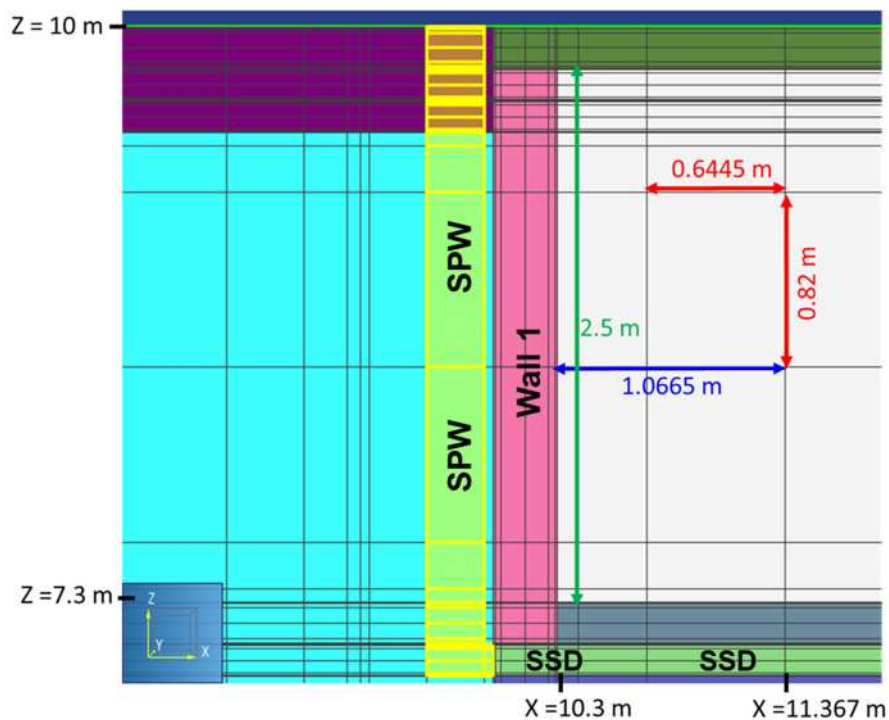


Figure 3-18 – Les simulations BM1 de la concentration en radon aux hauteurs  $Z = 0.03, 0.69, 1.51 \text{ m}$  à partir du plancher de la cave, et différentes distances  $X$  à partir du mur 1 (*Wall 1*) de la cave (scénario#4).

Le concept SSD pour la cave nécessite une énergie très élevée pour l'extraction du radon de l'air du sol vers l'atmosphère ( $>2.0 \text{ h}^{-1}$ ) afin de réduire la concentration en radon dans la cave, en particulier durant les périodes de fortes dépressions, ce qui en soi très coûteux et non pratique pour le développement des systèmes de mitigation économiques. Ainsi, des alternatives aux systèmes SSD pour la cave uniquement sont nécessaires, comme l'installation d'un puisard avec pompe (SPW : *Sump Pumping Well*) dans le sol au voisinage du mur 1 (Wall 1), afin d'évacuer le radon du sol, ce qui fera l'objet de l'étude qui suit.

➤ **Combinaison des systèmes SSD et SPW**

Quatre scénarios (#5-8) ont été simulés, qui consistent à une combinaison des systèmes SSD pour le garage et la cave, via les paramètres  $\lambda_{\text{Agg/S-B}}$  et  $\lambda_{\text{Agg/S-G}}$  dans les intervalles  $[0.5, 1.0]$  et  $[0.5, 3.0] \text{ h}^{-1}$ , respectivement, avec un système SPW (cylindre de 27 cm de diamètre et de 3.05 m de hauteur, connecté à la couche des agrégats; Figure 3-19) introduit dans le sol à une distance horizontale de 4.15 m à partir du mur 1 (Wall 1), via le paramètre  $\lambda_{\text{Soil/W1}}$  variant de  $0.5$  à  $1.0 \text{ h}^{-1}$  (Tableau 3-9).



**Figure 3-19 – Le concept de puisard à pompe (SPW : *Sump Pumping Well*) implémenté dans le sol (éléments du maillage marqués en couleur jaune) près du mur 1 (Wall 1) de la cave (couleur rose vif), connecté à la couche des agrégats (couleur vert clair) au-dessous de la dalle de la cave (couleur gris ardoise clair).**

Pour les trois scénarios#5-6-7 avec  $\lambda_{\text{Agg/S-B}} = \lambda_{\text{Soil/W1}} = 0.5 \text{ h}^{-1}$  (fixée) et  $\lambda_{\text{Agg/S-G}} = 0.5, 1.5, 2.5 \text{ h}^{-1}$  (variable) respectivement, tous les pics de flux du radon entrant la cave disparaissent, excepté ceux simulés pour la dépression la plus élevée  $\Delta P_B = -11 \text{ Pa}$ . Ces flux importants proviennent essentiellement du mur 1 (Wall 1). Il n'y avait pas besoin de faire augmenter  $\lambda_{\text{Agg/S-G}}$  au-delà de  $0.5 \text{ h}^{-1}$ , puisque de très faibles variations de pics de flux du radon ont été simulées pour les valeurs de  $\lambda_{\text{Agg/S-G}}$  supérieures à  $0.5 \text{ h}^{-1}$ . Des pics similaires de concentration en radon dans la cave près du mur 1 (Wall 1) ont été simulés (e.g., scénario#5, Figure 3-20). Cette fois, les pics de concentration en radon dans la cave à une distance horizontale  $X$  inférieure à  $0.74 \text{ m}$  du mur 1 (Wall 1), et à une hauteur  $Z$  entre  $1.5$  et  $2.0 \text{ m}$  du plancher de la cave, possèdent des valeurs inférieures à la valeur seuil admise de  $300 \text{ Bq.m}^{-3}$  (60 -



180 Bq.m<sup>-3</sup>), à cause de la diminution de la concentration en radon dans le sol adjacent au mur 1 (*Wall 1*), Figure 3-13D. On constate que le flux du radon entrant le garage est en permanence égal à zéro. Pour le dernier scénario#8 non montré ici, impliquant une énergie d'extraction d'air de sol substantielle, tous les pics de concentration en radon dans la cave disparaissent à cause de flux du radon nul entrant la cave.

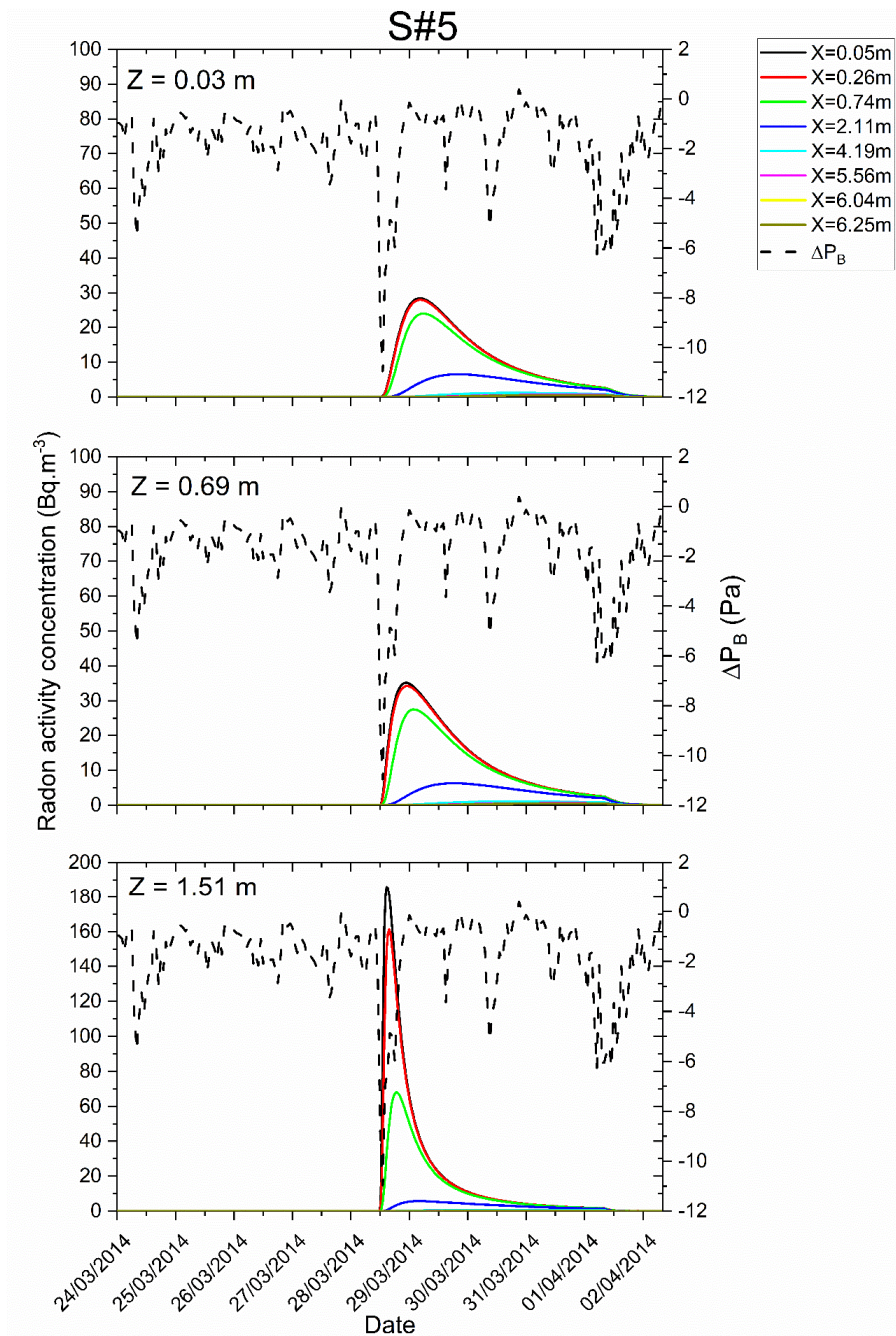


Figure 3-20 – Les simulations BM1 de la concentration en radon aux hauteurs  $Z = 0.03, 0.69, 1.51$  m à partir du plancher de la cave, et aux différentes distances  $X$  à partir du mur 1 (*Wall 1*) de la cave (scénario#5).

### 3.2.9 Conclusion

Ce qu'il faut retenir :

- Le problème complexe de transport du radon dans une habitation construite partiellement sur cave en présence d'un sol contaminé par des résidus miniers, a pu être résolu en utilisant un modèle basé sur des approches théoriques robustes, qui consistent en (i) une homogénéisation des éventuelles fissures au sein de la fondation (dalles et murs) avec sa matrice solide (milieu poreux homogène équivalent), et (ii) une simplification du modèle de la cave (BM1), où celle-ci est considérée comme étant un macroporeux (milieu libre) défini par des propriétés particulières (porosité égale à 1 et perméabilité intrinsèque très élevée) pour éviter le couplage très coûteux d'un code CFD avec le code EOS7Rn ;
- Ces approches ont permis, d'une part, de réduire le nombre de paramètres à deux pour chaque type de matériau poreux de la fondation, à savoir sa porosité et sa perméabilité effective, pour faciliter la calibration et la validation expérimentale du modèle développé, et d'autre part, de réduire le temps de calcul CPU. En effet, des simulations réalisées par Saâdi et Marie (2017) sur une durée de 465 jours, en considérant les données climatiques variables qui règnent en surface (Figure 3-3A), ont montré que le temps de calcul CPU est rapide et qu'aucun problème de non-convergence ou d'instabilité numérique n'a été observé durant ce calcul par le code EOS7Rn ;
- Ce modèle a permis d'une part de simuler remarquablement les variations spatio-temporelles de flux d'entrée du radon et de la concentration en radon mesurés dans la cave, sans perdre le sens physique de ses paramètres optimisés, et d'autre part d'identifier les chemins préférentiels de transfert du radon depuis le sol vers la cave ;
- Les méthodes de mitigation du radon par dépressurisation du sol au-dessous et au voisinage de l'habitation ont pu être implémentées dans le modèle par ajout de termes puits dans les équations d'écoulement et de transport, puis vérifiées à travers des scénarios très différents ;
- Ces scénarios ont identifié, pour cette habitation, que les murs de la cave sont des voies d'entrée du radon très importantes, contrairement aux études précédentes. D'où, l'intérêt d'installer un puisard dans le sol adjacent au mur, en plus d'un système naturel de dépressurisation au-dessous du plancher de la cave, pour d'une part réduire à néant les niveaux de radon très élevés observés (dus aux fortes dépressions de la cave), et d'autre part minimiser les énergies d'extraction du radon du sol vers l'atmosphère.

#### Ce qu'il faut améliorer de point de vue recherche :

- Réaliser des simulations 3D autour de l'habitation en considérant la variabilité spatiale des paramètres de sol et du climat autour de l'habitation. Ainsi, un calcul d'incertitudes sur les résultats de flux et de concentration en radon dans la cave serait possible. L'approche théorique développée dans cette étude pourra faciliter ces simulations en termes de réduction du temps calcul CPU ;
- Coupler un modèle aéraulique de bâtiment avec RDC et plusieurs étages avec le modèle de transport du radon dans le système poreux sol-matériaux de la fondation géré par le code EOS7Rn ou T2Rn, afin d'améliorer la condition à la limite imposée à l'interface sol-fondation du RDC.

### 3.3 Modèle d'un bâtiment construit sur une dalle portée sur terre-plein

Cette étude rentre dans le cadre d'un benchmark théorique entre le code T2Rn et les modèles analytiques et semi-empiriques du CSTB (notés tout simplement MA) sur un modèle de bâtiment construit sur une dalle portée sur terre-plein. L'objectif de ce benchmark était de fournir des comparaisons qualitatives et quantitatives entre les réponses de T2Rn et MA pour une configuration simple, contrainte par les conditions d'utilisation de chaque modèle.

Dans un premier temps, une description succincte des modèles MA est présentée. Dans un second temps, les hypothèses de modélisation sont formulées, la géométrie du système retenue est définie et les paramètres de mise en donnée sont fixés. Enfin, les résultats des simulations obtenus avec T2Rn et MA sont confrontés et discutés.

### 3.3.1 Modèles analytiques et semi-empiriques MA de CSTB

Comme décrit au § 3.1, ces modèles ont été développés par le CSTB dans le cadre des thèses d'Abdelouhab (2011) et de Diallo (2013). Ils sont appelés semi-empiriques car ils ont été obtenus par combinaison d'expériences numériques et de modèles analytiques. Les expériences numériques ont été effectuées en utilisant le code **COMSOL-Multiphysics**.

Ces modèles reposent sur une analogie entre le transfert de chaleur par conduction et l'écoulement de l'air dans un milieu poreux pour calculer les débits d'air à l'interface sol-bâtiment dus à la convection à travers le sol pour différents types de soubassement : dallage indépendant, dalle portée, vide sanitaire. La Figure 3-21 illustre l'exemple d'une dalle portée par un mur enterré où l'on représente les contours de champs de vitesses d'air dans le sol, dus à la différence de pression d'air entre l'intérieur et l'extérieur du bâtiment ainsi que les résistances mises en jeu pour le calcul des débits d'air à travers la dalle.

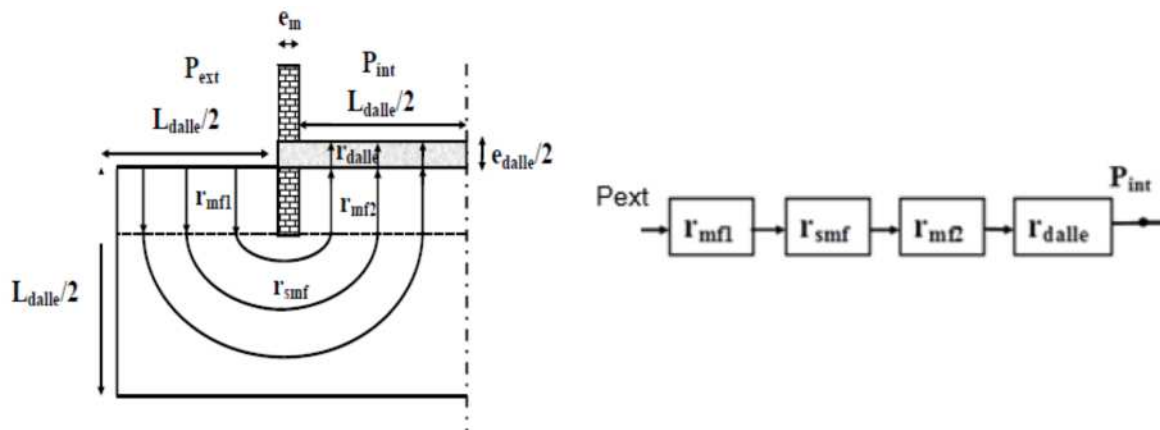


Figure 3-21 – Typologie dalle portée et réseau de résistances équivalent (Diallo, 2013).

L'évaluation de flux d'entrée de polluants dans les bâtiments est décrite par des modèles semi-empiriques en tenant en compte de transfert couplé par advection et diffusion pour ces différents types de soubassement. Ils sont basés sur une étude numérique qui a permis une meilleure compréhension du comportement des polluants à l'interface sol-bâtiment.

Les différents modèles développés ont été validés numériquement par des modèles CFD et expérimentalement à travers des données mesurées issues de la littérature (Diallo, 2013).

Pour plus de détails sur les éléments descriptifs des modèles MA, les hypothèses de leur développement ainsi que les équations de calcul de débits d'air et de flux de polluants gazeux pour les trois types de soubassement décrits ci-dessus, se référer à la thèse de Diallo (2013), et aux articles de Diallo et al. (2012, 2015).

### 3.3.2 Géométrie – hypothèses - paramètres

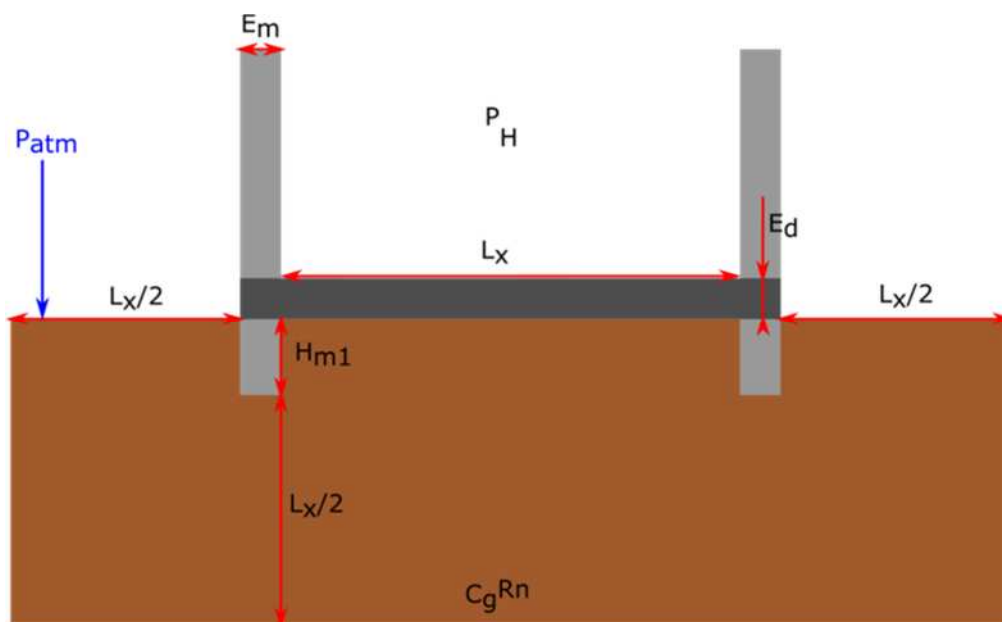
Le système sol-bâtiment à modéliser est tridimensionnel (dalle carrée), mais vue la symétrie du domaine il a été simplifié en une géométrie bidimensionnelle (2D), Figure 3-22. Les dimensions de ces différents éléments sont reportées dans le Tableau 3-10. La géométrie de la Figure 3-22 est également simplifiée pour ne considérer que le 1/4 du domaine (Figure 3-21).

Le benchmark consiste en les hypothèses suivantes :

- L'écoulement est considéré **monophasique en gaz** (degré de saturation en eau nul). Cette hypothèse est contrainte par l'impossibilité pour MA de simuler des écoulements diphasiques ;
- Le transport du radon est supposé avoir atteint le **régime stationnaire** ;
- Le sol et la dalle ont des propriétés physiques **homogènes et isotropes** ;
- L'adsorption et l'émanation du radon ne sont pas modélisées ;
- La source de radon est située à une profondeur fixe du sol en dehors de la zone advective, soit à une profondeur  $H=L_x/2$ , sous le mur de fondation (Figure 3-22). Cette hypothèse est contrainte par le potentiel d'utilisation de MA.

**Tableau 3-10 - Paramètres géométriques du système sol-bâtiment.**

$L_x$	Longueur de la dalle (m)	10
$H_{m1}$	Hauteur du mur de fondation (m)	0,5
$E_m$	Epaisseur des murs (m)	0,2
$E_d$	Epaisseur de la dalle (m)	0,2



**Figure 3-22 – Configuration géométrique du benchmark théorique (dalle portée).**

Des tests de sensibilité sont réalisés sur certains paramètres spécifiques au sol et au bâtiment, en vue d'analyser les réponses respectives des modèles T2Rn et MA. Les paramètres de sensibilité retenus sont : la **perméabilité du sol  $k_{sol}$** , la **perméabilité de la dalle  $k_{dalle}$**  et la **dépression au sol  $\Delta P$** .

Faire varier  $k_{sol}$  implique de faire varier la porosité du sol  $\phi_{sol}$ , et donc également le coefficient de diffusion  $D_{sol}^{Rn}$  du radon dans le sol. Le coefficient de diffusion du radon en milieu poreux est calculé par l'Eq. (1-22) en considérant le modèle de tortuosité MQ (Eq. (1-19)) et le coefficient de diffusion du radon dans la phase gazeuse en milieu libre  $d_g^{Rn} = 1,1 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ .



Les valeurs de ces trois paramètres sont spécifiées dans le Tableau 3-11. La porosité de la dalle  $\phi_{\text{dalle}}$  est maintenue fixe pour les différentes valeurs de  $k_{\text{dalle}}$  testées. Tout autre paramètre fixe, lié au sol ou au bâtiment est défini dans le Tableau 3-11.

La solubilité du radon  $H_c$  (inverse de la constante de Henry) est prise à  $1,65 \cdot 10^{-9} \text{ Pa}^{-1}$ . La viscosité dynamique ( $\mu_g$ ) et la masse volumique de la phase gazeuse ( $\rho_g$ ) sont prises égales à  $1,8 \cdot 10^{-5} \text{ Pa.s}$  et  $1,2 \text{ kg/m}^3$ , respectivement.

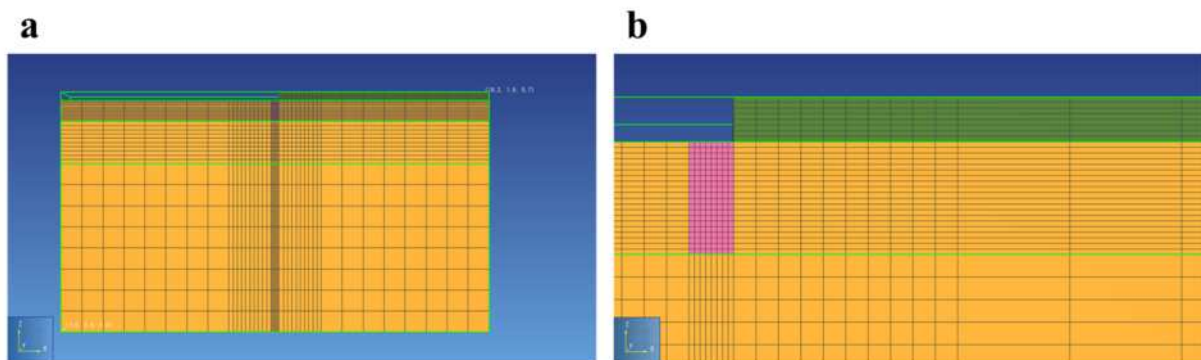
Les conditions de pression et de concentration en radon imposées en surface et en bas du domaine sont présentées, Tableau 3-11. Les flux sont considérés nuls sur les frontières latérales du domaine.

La dépression dans le bâtiment est la différence de pression entre l'air extérieur et l'air intérieur du bâtiment. Cette dépression dans le bâtiment vis-à-vis de l'extérieur du bâtiment induit également une dépression dans le sol.

**Tableau 3-11 - Paramètres du sol, paramètres de la fondation du bâtiment et de l'air intérieur ainsi que les conditions aux limites appliquées en surface et en bas du domaine étudié.**

$k_{\text{sol}}$	Perméabilité du sol ( $\text{m}^2$ )	$10^{-14}$	$10^{-12}$	$10^{-10}$
$\phi_{\text{sol}}$	Porosité du sol (-)	0,6	0,5	0,4
$D_{\text{sol}}^{\text{Rn}}$	Coefficient de diffusion du radon dans le sol ( $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ )	$5,6 \times 10^{-6}$	$4,4 \times 10^{-6}$	$3,2 \times 10^{-6}$
$k_{\text{dalle}}$	Perméabilité de la dalle ( $\text{m}^2$ )	{ $10^{-15}$ ; $10^{-13}$ ; $10^{-11}$ }		
$\phi_{\text{dalle}}$	Porosité de la dalle (-)	$5,24 \times 10^{-3}$		
$D_{\text{dalle}}^{\text{Rn}}$	Coefficient de diffusion du radon dans la dalle ( $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ )	$10^{-8}$		
$\lambda_B$	Taux de renouvellement d'air dans le bâtiment ( $\text{h}^{-1}$ )	0,5		
$\Delta P$	Dépression au sol dans le bâtiment (Pa), $\Delta P = P_{\text{atm}} - P_{\text{H}}$	{ -5; -10; -20; -50 }		
$C_{g,L}^{\text{Rn}}$	Activité volumique du radon à la limite inférieure ( $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ )	$4,2 \times 10^6$		
$C_{g,SN}^{\text{Rn}}$	Activité volumique du radon en surface du sol nu ( $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ )	0		
$C_{g,B}^{\text{Rn}}$	Activité volumique du radon à l'interface sol-bâtiment ( $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ )	0		
$P_{\text{atm}}$	Pression de l'air extérieur au bâtiment appliquée en surface (Pa)	$10^5$		
$P_{\text{H}}$	Pression de l'air intérieur du bâtiment (Pa), $P_{\text{H}} = P_{\text{atm}} + \Delta P$	-		

Le maillage du domaine est présenté, Figure 3-23. Le nombre d'éléments est de 1816. Les dimensions caractéristiques  $\Delta x$  et  $\Delta z$  des mailles élémentaires sont conditionnées par les critères de majoration du nombre de Péclet  $Pe_g$  à 2 suivant les deux directions (OX et OZ) de l'espace.



**Figure 3-23 – a/ Maillage du domaine ; b/ Zoom sur le maillage du mur (couleur magenta) et de la dalle (couleur vert foncé).**

### 3.3.3 Étude comparative entre T2Rn et MA pour différents scénarios de paramètres

Les résultats des modèles T2Rn et MA sont présentés sur la base de tests de sensibilité à  $k_{sol}$ ,  $k_{dalle}$  et  $\Delta P$ . Les variables de sortie observées sont : le **débit d'air** entrant dans le bâtiment estimé à l'interface dalle-bâtiment noté  $Q_{dalle}$  ( $m^3.s^{-1}$ ), et le flux d'exhalation du radon à l'interface dalle-bâtiment noté  $FRn$  ( $mBq.m^{-2}.s^{-1}$ ).

Les résultats obtenus avec T2Rn et MA sont confrontés et discutés d'un point de vue phénoménologique (reproduction de la physique) d'une part, et quantitatif d'autre part.

#### ➤ Phénoménologie des modèles

La Figure 3-24 illustre un exemple de calcul des profils de concentration et de flux du radon simulés par T2Rn. La physique des transferts du radon est bien simulée : les flux du radon provenant de la source située en profondeur sont dirigés essentiellement vers le bâtiment en dépression, et leur intensité est d'autant plus importante au voisinage de la surface. Les contours des champs de vitesses simulées sont similaires à ceux préconisés par les modèles MA (Figure 3-21).

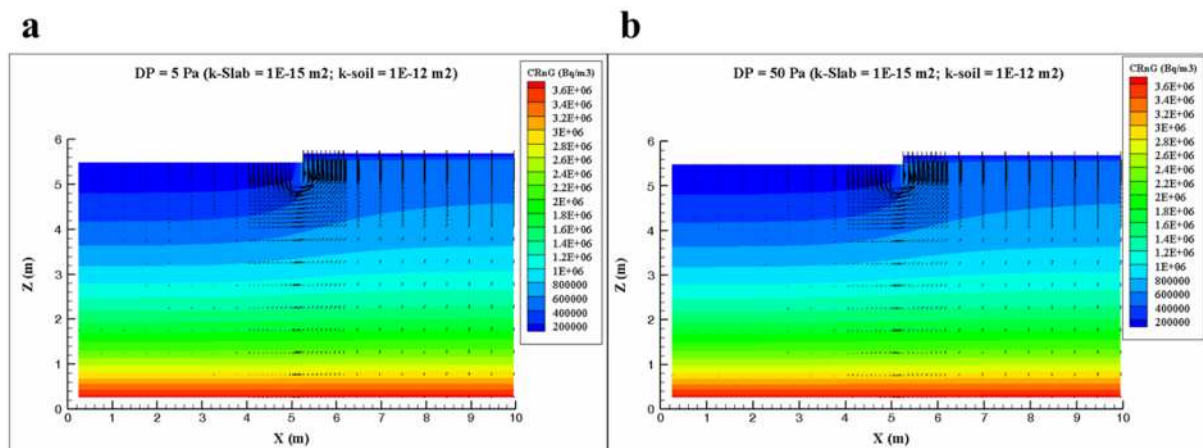


Figure 3-24 – Profils de concentration en radon et de flux de gaz simulés par T2Rn en régime d'écoulement stationnaire de la phase gazeuse pour un scénario de référence du modèle de bâtiment construit sur une dalle portée sur terre-plein ( $k_{dalle} = 1 \times 10^{-15} m^2$ ,  $k_{sol} = 1 \times 10^{-12} m^2$ ) en considérant deux valeurs de dépression du bâtiment (en valeur absolue) : a/ 5 Pa ; b/ 50 Pa.

- Sensibilité à la perméabilité du sol ( $k_{sol}$ )

Pour toute paire  $\{k_{dalle} ; \Delta P\}$  fixe, les résultats des calculs T2Rn et MA indiquent que  $Q_{dalle}$  augmente avec  $k_{sol}$  (Figure 3-25a, c, e) : cette tendance est bien conforme à la loi de Darcy dont dépend  $Q_{dalle}$  (Eq. (1-3)). Néanmoins, pour une perméabilité de dalle faible ( $k_{dalle} = 10^{-15} m^2$ ),  $Q_{dalle}$  est peu sensible à  $k_{sol}$  si  $k_{sol} \geq 10^{-12} m^2$  (Figure 3-25a) : cette réponse s'observe pour les deux modèles, et traduit un transport de la phase gazeuse par diffusion prédominant par rapport au transport par convection au voisinage de l'interface sol-dalle.

Pour une perméabilité de dalle *faible* ( $k_{dalle} = 10^{-15} m^2$ ),  $FRn$  diminue avec l'augmentation de  $k_{sol}$  (Figure 3-25b) : cela traduit de nouveau une prédominance du transport du radon dans le sol par diffusion, puisque l'augmentation de  $k_{sol}$  entraîne la diminution de la porosité du sol  $\phi_{sol}$  et donc aussi celle du coefficient de diffusion du radon dans le sol  $D_{sol}^{Rn}$  (Tableau 3-11). Cette observation est par ailleurs cohérente avec la faible sensibilité de  $Q_{dalle}$  mise en évidence ci-avant pour  $k_{sol} \geq 10^{-12} m^2$ . Pour une perméabilité de dalle *forte* ( $k_{dalle} \geq 10^{-13} m^2$ ),  $FRn$  augmente avec  $k_{sol}$  (Figure 3-25d et Figure 3-25f) : cela traduit une prédominance du transport du radon dans le sol par advection, puisque l'augmentation de  $k_{sol}$  entraîne l'augmentation de la vitesse de Darcy dans le sol (Eq. (1-3)).

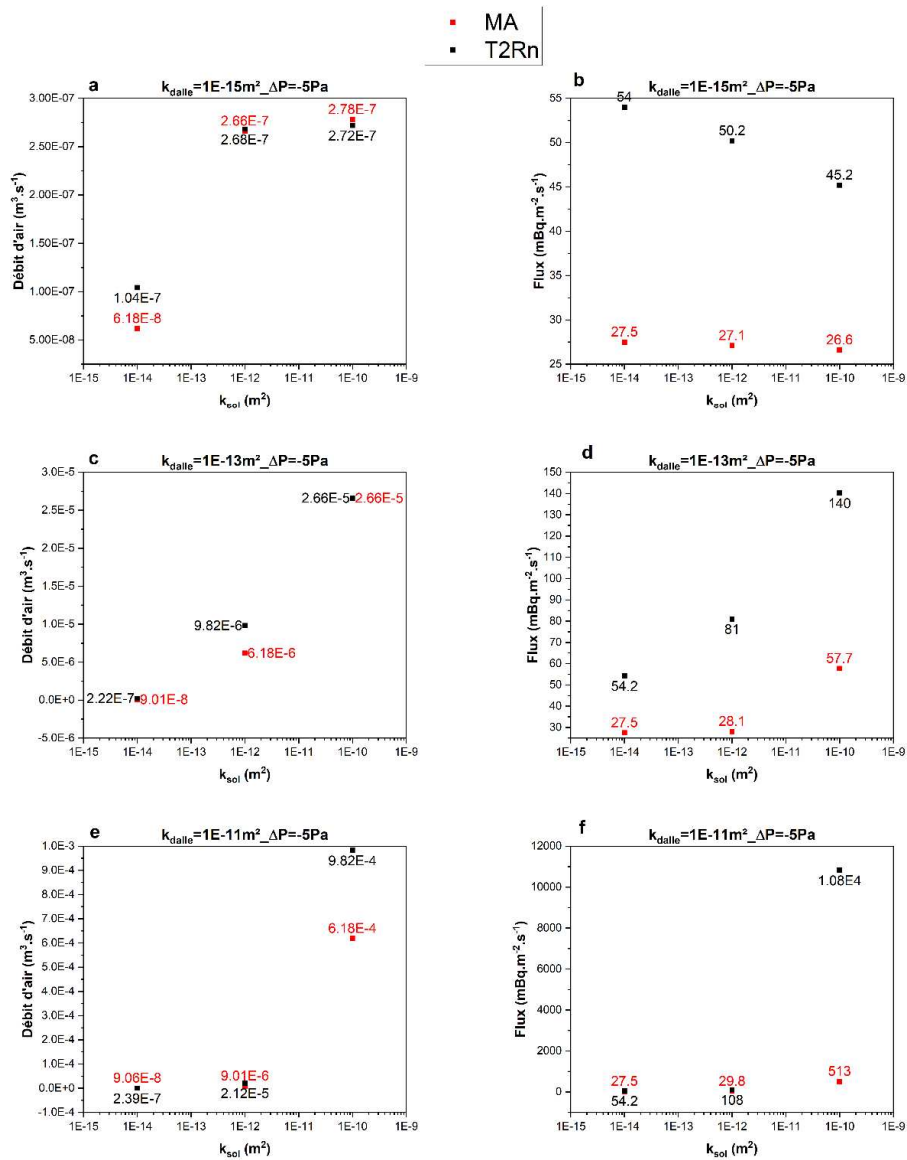


Figure 3-25 – Sensibilité des modèles à la perméabilité du sol  $k_{sol}$  pour les 3 valeurs de  $k_{dalle} = 10^{-15}$  (a,b),  $10^{-13}$  (c,d),  $10^{-11} m^2$  (e,f).  $\Delta P = -5 Pa$ .

- Sensibilité à la perméabilité de la dalle ( $k_{dalle}$ )

D'une manière générale, pour les différents couples de paramètres fixes  $\{k_{sol}; \Delta P\}$  testés, les résultats des calculs T2Rn et MA montrent que  $Q_{dalle}$  et FRn augmentent avec  $k_{dalle}$ . Les couples fixes testés sont les suivants :  $\{k_{sol} = 1E-14 m^2; \Delta P = -5 Pa\}$ ,  $\{k_{sol} = 1E-12 m^2; \Delta P = -5 Pa\}$ ,  $\{k_{sol} = 1E-10 m^2; \Delta P = -5 Pa\}$ ,  $\{k_{sol} = 1E-14 m^2; \Delta P = -10 Pa\}$ ,  $\{k_{sol} = 1E-12 m^2; \Delta P = 10 Pa\}$ ,  $\{k_{sol} = 1E-10 m^2; \Delta P = -10 Pa\}$ ,  $\{k_{sol} = 1E-14 m^2; \Delta P = -20 Pa\}$ ,  $\{k_{sol} = 1E-12 m^2; \Delta P = -20 Pa\}$ ,  $\{k_{sol} = 1E-10 m^2; \Delta P = -20 Pa\}$ .

La Figure 3-26a et la Figure 3-26b présentent les résultats obtenus pour  $\{k_{sol} = 10^{-12} m^2; \Delta P = -5 Pa\}$ . L'augmentation de  $k_{dalle}$  induit une vitesse de Darcy plus forte dans la dalle, et par conséquent, des valeurs de FRn plus importantes. La porosité de la dalle étant invariable, les résultats de sensibilité à  $k_{dalle}$  sont cohérents d'un

point de vue phénoménologique pour les modèles T2Rn et MA. Cette observation se fait pour tous les couples de paramètres fixes  $\{k_{sol}; \Delta P\}$ .

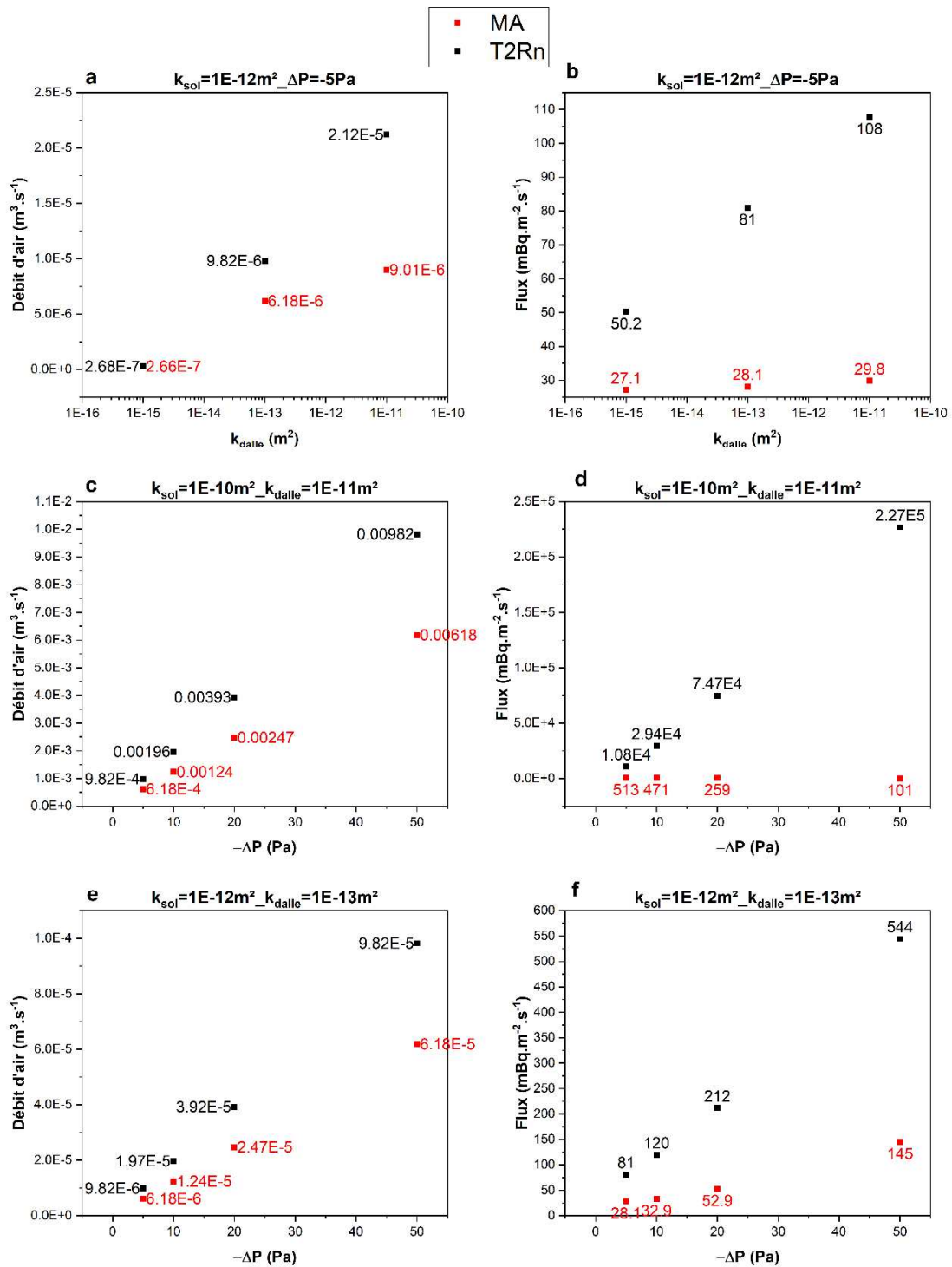


Figure 3-26 – Sensibilité des modèles à la perméabilité de la dalle  $k_{dalle}$  pour la paire  $\{k_{sol} = 10^{-12} m^2 ; \Delta P = -5 Pa\}$  (a,b) et à la dépression  $\Delta P$  au sol pour les paires  $\{k_{sol} = 10^{-10} m^2 ; k_{dalle} = 10^{-11} m^2\}$  (c,d) et  $\{k_{sol} = 10^{-12} m^2 ; k_{dalle} = 10^{-13} m^2\}$  (e,f).

- Sensibilité à la dépression dans le bâtiment ( $\Delta P$ )

Les résultats des tests réalisés avec T2Rn et MA montrent que  $Q_{dalle}$  et FRn augmentent avec la dépression ( $\Delta P$ ) pour tous les tests, sauf celui réalisé avec le couple de paramètres fixes  $\{k_{sol}= 10^{-10} \text{ m}^2 ; k_{dalle}= 10^{-11} \text{ m}^2\}$ . La Figure 3-26e et la Figure 3-26f présentent en exemple les résultats obtenus pour le couple de paramètres fixes  $\{k_{sol} = 10^{-12} \text{ m}^2 ; k_{dalle}= 10^{-13} \text{ m}^2\}$ .

Pour un sol et une dalle de très fortes perméabilités, soit le couple de paramètres fixes  $\{k_{sol}= 10^{-10} \text{ m}^2 ; k_{dalle}= 10^{-11} \text{ m}^2\}$ , le modèle MA montre une diminution de FRn avec l'augmentation de  $\Delta P$  (Figure 3-26d).

L'augmentation de la dépression induit une vitesse de Darcy plus forte, et par conséquent, devrait donner lieu à des valeurs de FRn plus importantes. Ainsi, les résultats de sensibilité au paramètre  $\Delta P$  issus du modèle MA montrent un comportement inverse d'un point de vue phénoménologique pour un sol et une dalle de très fortes perméabilités. Cette différence de comportement pour des valeurs extrêmes reste inexpliquée.

➤ **Réponses quantitatives des modèles**

Pour l'ensemble des tests réalisés, T2Rn et MA présentent des débits d'air entrant dans le bâtiment  $Q_{dalle}$  du même ordre de grandeur. Néanmoins, les débits calculés avec T2Rn sont généralement supérieurs à ceux calculés par MA, notamment pour de grandes perméabilités de dalle et/ou de faibles perméabilités de sol où la différence entre les modèles peut aller jusqu'à un facteur 2.8. Les écarts les plus importants s'observent pour les triplets de paramètres suivants :

- $k_{dalle} = 10^{-11} \text{ m}^2$ ,  $k_{sol} = 10^{-14} \text{ m}^2$  et  $\Delta P = - 5 \text{ Pa}$  donne un écart d'un facteur **2,6**
- $k_{dalle} = 10^{-11} \text{ m}^2$ ,  $k_{sol} = 10^{-14} \text{ m}^2$  et  $\Delta P = - 10 \text{ Pa}$  donne un écart d'un facteur **2,8**
- $k_{dalle} = 10^{-11} \text{ m}^2$ ,  $k_{sol} = 10^{-14} \text{ m}^2$  et  $\Delta P = - 20 \text{ Pa}$  donne un écart d'un facteur **2,7**

Concernant les flux d'exhalation du radon (FRn), ceux calculés par T2Rn sont généralement supérieurs à ceux calculés par MA, d'un facteur le plus souvent compris entre 1,0 et 4,2 (Figure 3-25(b, d, f) et Figure 3-26(b, f)). Pour un sol et une dalle de très fortes perméabilités, les tests de sensibilité à la dépression au sol  $\Delta P$  donnent lieu à des écarts particulièrement importants (Figure 3-26d) : pour ce test, les écarts entre T2Rn et MA présentent un facteur (croissant) compris entre 21 et 290.

➤ **Interprétations des écarts observés entre les réponses des outils**

Afin d'expliquer les écarts observés entre les réponses (qualitatives et quantitatives) des deux outils, plusieurs pistes et hypothèses ont été discutées et sont les suivantes :

- Concernant les différences observées sur les débits d'air entrant, elles peuvent être dues à la prise en compte de la porosité dans le calcul T2Rn. La désintégration radioactive du radon est simulée dans T2Rn, et non dans MA. La prise en compte de la désintégration entraîne une diminution de la masse de radon transportée. De ce fait, il est attendu que les flux d'exhalation du radon estimés par T2Rn soient plus faibles que ceux estimés par MA. Or, le contraire est observé (Figure 3-25(b, d, f) et Figure 3-26**Erreur ! Source du renvoi introuvable.**(b, d, f)). La non prise en compte de la désintégration du radon dans MA ne permet donc pas d'expliquer les écarts de valeurs observés entre T2Rn et MA.
- Le débit de renouvellement d'air du bâtiment ( $Q_{bât}$ ) est pris en compte dans MA à 0,5 vol/h pour l'équilibre du terme de flux diffusif. Dans T2Rn, le flux diffusif est déterminé à partir d'une concentration nulle dans le bâtiment, i.e. un renouvellement d'air infini.

### 3.3.4 Conclusion

Ce cas d'étude théorique visait à donner des aperçus qualitatifs et quantitatifs des réponses respectives de T2Rn et MA, pour une configuration simple de bâtiment avec dalle portée sur terre-plein. Les réponses des modèles T2Rn et MA (i.e., **débit d'air** et **flux d'exhalation du radon** entrant dans le bâtiment) ont été confrontées dans le cadre de tests de sensibilité à  $k_{sol}$ ,  $k_{dalle}$  et  $\Delta P$ .

L'ensemble des tests de sensibilité réalisés avec T2Rn traduit des réponses en cohérence avec la phénoménologie attendue. Le même constat est fait pour les débits estimés par MA. Seuls, les flux de radon estimés par MA ont présenté une tendance opposée à T2Rn pour le couple de paramètres fixes  $\{k_{sol}= 10^{-10} \text{ m}^2 ; k_{dalle}= 10^{-11} \text{ m}^2\}$  : Le flux du radon diminue tandis que de la dépression  $\Delta P$  augmente.

Des écarts quantitatifs importants sont observés entre T2Rn et MA : jusqu'à un facteur de 2,8 pour les débits et jusqu'à un facteur de 290 pour les flux d'exhalation du radon. Des hypothèses ont été formulées pour expliquer ces écarts, notamment sur la différence de prise en compte de la perméabilité du sol entre les deux outils. En effet, pour l'outil T2Rn, la perméabilité à l'air du sol est un calcul intermédiaire qui dépend des niveaux d'advection dans le sol, dépendant lui de la dépression du bâtiment et de la porosité du sol. Ainsi, il est possible que la prise en compte de la perméabilité ne soit pas identique entre les deux outils pouvant en partie expliquer les différences de débit d'air. Un travail complémentaire pourrait être conduit afin de pousser plus avant cette analyse.

## 3.4 Modèle d'une habitation construite sur terre-plein

### 3.4.1 L'habitation et son instrumentation

Dans cette étude on présente la confrontation des deux codes T2Rn et MA aux données expérimentales de flux de radon ponctuels mesurés à l'intérieur d'une habitation construite sur terre-plein (propriété de Mr. et Mme Allemand-Morault), d'une superficie de 3 500 m<sup>2</sup> environ (Rapport IRSN, 2016 ; Figure 3-27a). Cette habitation, située dans le département de Maine-et-Loire (49), a fait l'objet d'une investigation (expertise) par l'IRSN et le CSTB, qui s'est déroulée au printemps 2016 afin d'identifier les différentes sources et voies d'entrée du radon dans certaines pièces de vie.

A l'extérieur de la maison, les mesures réalisées par l'IRSN aux points **P2**, **P3**, **P4** et **P5** (étoiles rouges dans la Figure 3-27a) concernaient essentiellement les propriétés des sols de la parcelle habitée (activités massiques du radium-226 dans les sols et le remblai ; perméabilité du sol à l'air) et le flux d'exhalation du radon à la surface du sol.

A l'intérieur de l'habitation, les flux d'exhalation du radon ont été mesurés en deux points au rez-de-chaussée : dans le petit salon et à l'entrée du débarras (étoiles violettes dans la Figure 3-27b). Une activité volumique du radon de l'ordre de 2 381 Bq.m<sup>-3</sup> a été mesurée notamment dans le petit salon à l'aide de dosimètres passifs sur une durée d'un mois.

Pour plus de détails sur les profondeurs de mesure des propriétés des sols aux points **P2**, **P3**, **P4** et **P5** ainsi que les valeurs mesurées des différents paramètres, se référer au Rapport IRSN 2016.

Dans le cadre de cette étude, la question de représentativité s'est posée sur différents aspects de la modélisation, notamment sur la géométrie du système à considérer et sur les paramètres inconnus et requis pour la mise en données des modèles.



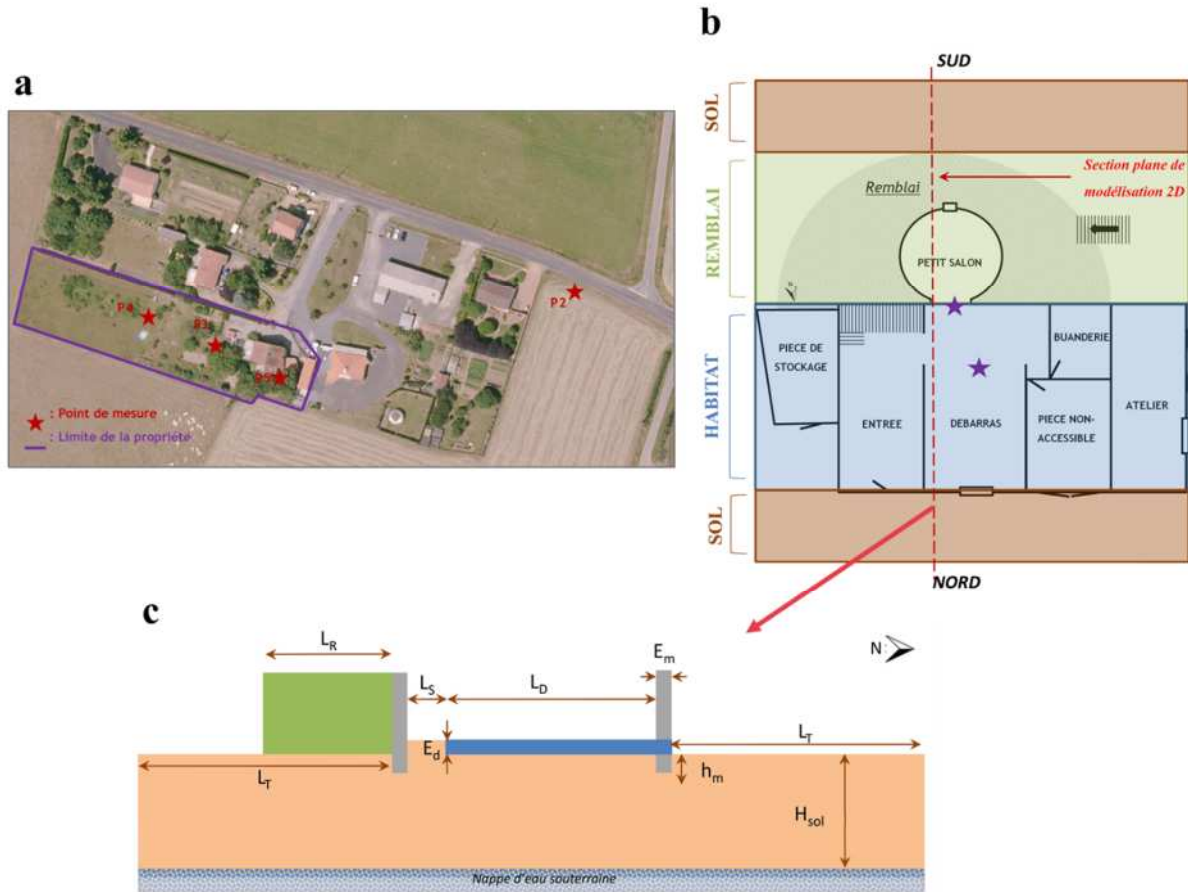


Figure 3-27 – a/ Localisation des points de mesures à l'extérieur de l'habitation ; b/ Hypothèse de configuration du système {sol-habitat-remblai} : vue de dessus ; c/ Configuration géométrique du système {sol-remblai-habitat} à modéliser : vue façade Est (voir Gineau, Saâdi et al., 2018, pour les paramètres de dimensionnement de ce système).

### 3.4.2 Modèle de transport du radon à l'interface sol/bâtiment

#### ➤ Géométrie du domaine étudié - hypothèses

Ce cas d'application présente une géométrie relativement complexe à modéliser avec notamment la présence d'un remblai et un type de sol hétérogène au-dessous du rez-de-chaussée de l'habitation. La structure du système sol/roche sous-jacent l'habitation était également à prendre en compte dans le modèle (structure en 3 couches) ainsi que la présence d'une nappe d'eau souterraine peu profonde. Pour modéliser ce cas d'étude expérimentale, une configuration bidimensionnelle (2D) a été nécessaire (Figure 3-27c) afin de tenir compte des singularités géométriques présumées déterminantes sur la phénoménologie de transport du radon vers l'intérieur de l'habitat, à savoir :

- La présence d'un remblai jouxtant la façade extérieure sud de l'habitation ;
- Le revêtement partiel de la surface intérieure de l'habitation (avec ~13% de sol nu) ;
- Les 3 couches constituant le sol, l'arène granitique et le granite sous l'habitation.

L'outil T2Rn n'a présenté aucune difficulté pour tenir compte des singularités géométriques mentionnées. Néanmoins, des précautions doivent être prises concernant la construction du maillage à retenir pour l'ensemble des simulations. Ce dernier doit vérifier un critère sur le nombre de Péclet (Saâdi et al., 2014) et garantir des résultats invariants en cas de raffinement (test de convergence en maillage).



L'utilisation du modèle analytique MA nécessite de formuler des hypothèses visant à simplifier la géométrie du système d'étude {sol-remblai-habitat}. En effet, il n'est pas possible de modéliser un soubassement mixte ou un sol hétérogène. Ainsi, le rez-de-chaussée a été représenté comme un unique espace clos entièrement recouvert d'une dalle (e.g., Figure 3-22). La présence du remblai n'est pas prise en compte. Le sol est considéré homogène tout autour du bâtiment. La modélisation du système {sol-remblai-habitat} est également bidimensionnelle (2D), comme dans le cas du benchmark théorique (cf. § 3.3.2).

#### ➤ *Etude de sensibilité des paramètres*

Certains paramètres nécessaires à la mise en données de T2Rn et MA ne sont pas fournis par les mesures de terrain<sup>4</sup>. Certaines données d'entrée ont été fixées à partir des informations disponibles dans la littérature et de la connaissance du terrain. L'importance présumée de certains paramètres non mesurés sur l'estimation des flux de radon ne permettant pas de se fier uniquement à la littérature, des **tests de sensibilité** ont donc été réalisés en complément. Les paramètres d'ajustement à déterminer dans le cadre du benchmark expérimental sont rappelés ci-dessous pour T2Rn et MA :

- **T2Rn** : 5 paramètres, à savoir : coefficient d'émanation des matériaux {remblai-sol-arène-granite}, porosité du granite, perméabilité à l'air de la dalle, porosité de la dalle, et la dépression au sol du bâtiment.
- **MA** : 3 paramètres, à savoir : perméabilité de la dalle à l'air, porosité de la dalle et dépression au sol du bâtiment.

La source de radon dans le sol est un paramètre d'entrée initialement inconnu pour MA, mais n'a pas fait l'objet d'une étude de sensibilité.

La capacité des outils MA et du code T2Rn à reproduire les flux d'exhalation du radon mesurés a été évaluée dans le cadre de tests de sensibilité.

Il ressort de cette étude comparative, complémentaire au premier cas théorique (cf. § 3.3), les différents points suivants :

- Concernant T2Rn, tout paramètre retenu pour un ajustement satisfaisant du modèle était cohérent avec les gammes de valeurs mesurées issues de la littérature. Ces résultats ont montré la bonne capacité du modèle T2Rn à modéliser le système de ce cas réel et à simuler les flux d'exhalation du radon, aussi bien à l'intérieur de l'habitation qu'à la surface du terrain environnant (Tableau 3-12). Concernant MA, il est apparu que les résultats s'approchaient des mesures expérimentales de flux entrant de radon dans l'habitation, lorsque la porosité de la dalle était fixée entre 10 et 13 % et lorsque la perméabilité à l'air de la dalle était située entre  $10^{-13}$  et  $10^{-11}$  m<sup>2</sup> (Figure 3-28). Ces gammes de valeurs se situent dans ce que l'on peut trouver dans la littérature ;
- Par ailleurs, le souci de représentativité des modèles vis-à-vis de la réalité du terrain s'est posé pour la géométrie du système à considérer qui était relativement complexe (présence d'un remblai jouxtant un coté de la maison, sol hétérogène au-dessous du rez-de-chaussée de l'habitation). Pour cette situation, la géométrie asymétrique du domaine d'étude a été prise en charge par T2Rn mais n'a pas pu l'être par le modèle MA. Cette limite de MA ne permet pas de modéliser des configurations complexes telles que notamment avec la présence de sources hétérogènes (naturelles ou anthropiques), dont les localisations n'induisent pas nécessairement une symétrie du domaine d'étude. Par ailleurs, l'utilisation de T2Rn a permis de tenir compte d'une structure représentative du milieu naturel sous-jacent l'habitation constituée du sol, d'une arène granitique et de la roche granitique. Cette configuration type du milieu naturel est la plus communément rencontrée dans les régions les plus concernées par des niveaux élevés de radon (Massif central, Massif armoricain ...) et par la problématique de la réutilisation de stériles miniers.

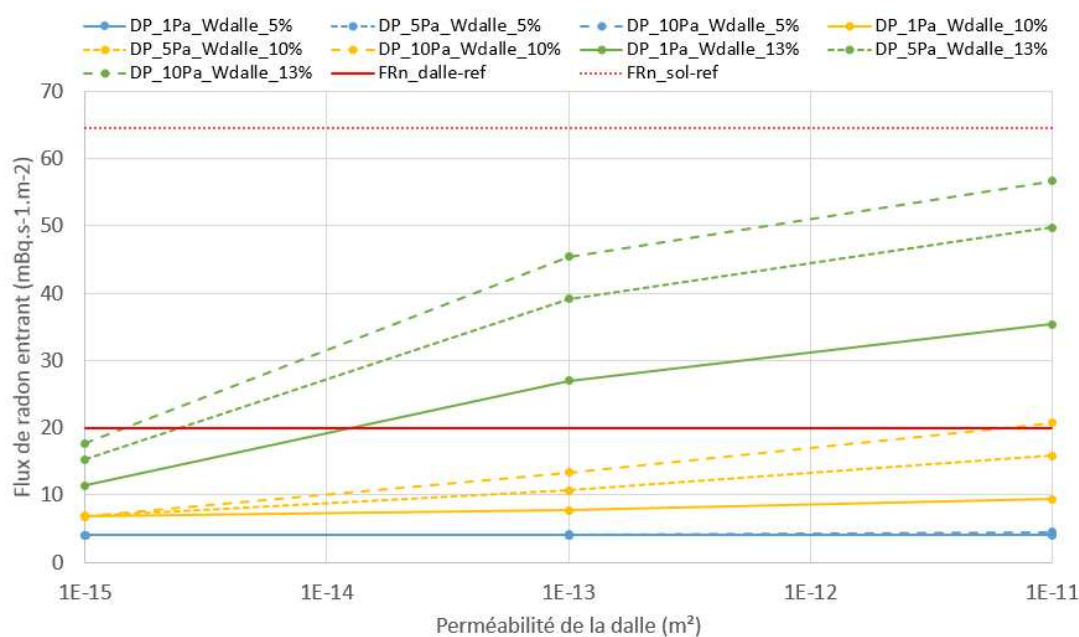
Le Tableau 3-13 recense les capacités et limites de T2Rn et MA identifiées suite à leur application à ce cas d'étude

<sup>4</sup> Aussi, il convient de rappeler que le nombre et la nature des paramètres d'entrée manquants sont régis par l'environnement d'étude et les mesures effectivement réalisées, donc étroitement liés au cas d'étude considéré.

expérimental.

**Tableau 3-12 - Résultats de calcul T2Rn avec les paramètres ajustés  $k_{dalle} = 10^{-14} \text{ m}^2$ ,  $\phi_{dalle} = 13\%$  et  $\Delta P = -1 \text{ Pa}$ .**

	Sur sol nu	Sur sol avec dalle
<b>Flux mesurés (<math>\text{mBq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}</math>)</b>	20	$64,6 \pm 19$
<b>Flux calculés (<math>\text{mBq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}</math>)</b>	<b>19,3</b>	<b>78,6</b>
<b>Erreur</b>	3,5 %	+ 14 $\text{mBq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$



**Figure 3-28 – Résultats des tests de sensibilité par MA pour le calcul du flux entrant de radon (Wdalle dans la légende représente la porosité de la dalle).**

**Tableau 3-13 - Capacités et limites des outils T2Rn et MA identifiées dans le cadre du benchmark. ✓ Pris en compte, ✗ Non pris en compte.**

	T2Rn	MA
Prise en compte de singularités géométriques (remblai, dallage partiel)	✓	✗
Prise en compte de la désintégration radioactive du radon	✓	✗
Prise en compte de l'émanation du radon dans l'eau et l'air des pores	✓	✗
Prise en compte de sources de radon définies par l'activité massique en $^{226}\text{Ra}$	✓	✗
Calcul de flux d'exhalation du radon sur des surfaces intérieures mixtes	✓	✗
Prise en compte de typologies de soubassement	✓	✓

### 3.4.3 Conclusion

Cette étude a permis de montrer les limites d'utilisation des modèles MA (voir également § 3.1) et a mis en évidence les différences conceptuelles entre les modèles T2Rn et MA ainsi que leurs potentiels descriptifs à simuler le transfert du radon dans les sols jusque dans un bâtiment.

Les conclusions retenues sur ce cas d'étude indiquent que le code T2Rn est plus adapté pour la simulation du transport du radon depuis le sol jusqu'à l'interface sol-bâtiment, quelle que soit la situation à modéliser. En effet, le modèle semi-analytique empirique MA, contrairement au modèle physique T2Rn, s'appuie sur des hypothèses très simplificatrices pour décrire les phénomènes physiques de transport du radon dans le sol et à l'interface sol-bâtiment, et n'est pas en mesure de traiter ces phénomènes dans leur globalité. En outre, contrairement à MA, T2Rn peut tenir compte d'un milieu naturel plus ou moins complexe (prise en compte d'hétérogénéités verticales ou latérales dans le sol et dans la roche, de l'asymétrie du système, mais aussi de la fracturation, de la présence d'une nappe souterraine, d'une cavité naturelle...), de configurations de bâtiment avec une ou plusieurs pièces enterrées (e.g. cave), ou de situations mettant en jeu des sources anthropiques radifères dans diverses configurations (présence de stériles/résidus en soubassement ou à proximité d'une habitation, construction sur un stockage...). Enfin, la structure du modèle MA ne permet pas de modéliser des géométries complexes représentatives de situations réelles, pour l'estimation du flux de radon entrant dans un bâtiment.



## 4. Etude de l'influence des cavités souterraines naturelles karstiques sur le potentiel radon géogénique

### Abstract

*This chapter describes studies of radon transport from underground karstic cave to the soil surface. The choice focused on an instrumented study area located at a karstic site Fourbanne (25) in Franche-Comté region (France). First, the experimental set-up conducted during two field campaigns in 2015-2016 (Ielsch, Saâdi and Bertrand, 2017) is presented. This helped us, on the one hand, to characterize properties of soils and rocks above the karst network, as well as radon concentrations in both soils (top one meter depth) and underground cave of the study area, and on the other hand to study correlations (using principal component analysis PCA) between time-series of radon activity concentrations in the soil and in the cave, and meteorological and hydrological parameters measured in the study area. Second, a numerical modelling study is presented. Although of restricted hypotheses of the model developed, the latter was able to demonstrate that the pressure gradient between the soil surface and the cave is behind the high amplitudes of 1 m- depth radon activity concentration below the sinkhole during a given monthly period of 2016. Finally, this study enabled us to identify the new research directions to be followed in order to improve our knowledge on abnormal observations during the dry periods of the year that the correlation analysis (PCA) well identified.*

Ce chapitre décrit des études de transferts du radon depuis une cavité souterraine karstique jusqu'en surface. Le choix a porté sur une zone pilote instrumentée située sur le site karstique de Fourbanne (25) en Franche-Comté. Dans un premier temps, un volet métrologique, décrivant le protocole expérimental durant deux campagnes de mesures en 2015 et 2016 (Ielsch, Saâdi et Bertrand, 2017), est présenté. Ce premier volet a permis, d'une part de caractériser les propriétés des sols et de la roche situés à l'aplomb du réseau karstique étudié, ainsi que les activités volumiques du radon dans les sols et les cavités souterraines sous-jacentes, et d'autre part de réaliser une analyse ACP des corrélations entre les séries temporelles des concentrations en radon dans le sol et dans la cavité, et les paramètres météorologiques et hydrologiques mesurés sur cette zone d'étude. Dans un second temps, un volet modélisation a été présenté. Malgré la simplicité du modèle développé, celui-ci a permis d'expliquer que la différence de pression du gaz entre la surface du sol et la cavité est à l'origine des amplitudes de pics de concentrations en radon mesurées durant une période mensuelle de l'année 2016 dans le premier mètre du sol au-dessous d'une doline. In fine, cette étude a permis d'identifier les voies de recherche à suivre pour expliquer l'origine des concentrations en radon anormales observées durant d'autres périodes sèches de l'année, que l'analyse ACP a permis également de les manifester.

### 4.1 Introduction

Les cavités souterraines, naturelles ou anthropiques, telles que les tunnels, les galeries d'anciennes mines et des systèmes karstiques... sont souvent suffisamment confinées pour qu'une accumulation de radon soit observée. L'activité volumique du radon (*ou concentration en radon*) dans ces vides souterrains peut en effet atteindre des milliers, voire des millions de becquerels par mètre cube. A titre d'exemple, au Royaume-Uni, des valeurs de l'ordre de  $7.1 \times 10^6$  Bq.m<sup>-3</sup> issues de mesures ponctuelles ont été relevées dans une **mine de fer** située dans un contexte géologique granitique (Gillmore et al., 2001). Lorsque de tels vides souterrains sont surmontés par des formations géologiques très perméables (fractures, failles...), ils peuvent être à l'origine de flux d'exhalation de radon importants en surface, et sont dès lors susceptibles de conduire à des niveaux d'activité volumique de radon élevés à l'intérieur des bâtiments situés à leur aplomb.

**En France**, la question de l'influence des vides souterrains sur les flux d'exhalation de radon en surface a fait et fait actuellement l'objet de nombreux travaux de recherche compte tenu des enjeux sanitaires importants qui lui sont associés. En effet, les anciens **sites miniers d'uranium** ainsi que l'ensemble des anciens **bassins miniers** ont été les premiers ciblés à l'IRSN (e.g., Améon et Marie, 2010 ; Marie, 2014). A titre d'exemple, des mesures de l'activité volumique du radon sur les concessions de « La Houve », « De Wendel » et « Sarre et Moselle » du bassin houiller lorrain ont été réalisées au cours de deux campagnes hivernales (2009/2010 et 2013/2014) pour étudier

l'impact de l'ennoyage des galeries minières sur le radon émis en surface (Marie, 2014). Ces mesures n'ont pas mis en évidence de variations significatives du radon émis en surface à la suite de l'ennoyage des vides miniers, à l'exception notable de la diminution constatée dans l'exutoire du puits lui-même pour la concession «De Wendel».

Les études de recherche effectuées au laboratoire souterrain du **tunnel** Roselend (tunnel à une seule entrée, situé à 55 m de profondeur) en **France** (Perrier et al., 2005, 2007 ; Richon, 2011 ; Wassermann et al., 2011 ; Guillon, 2013) sont très importantes puisqu'elles s'intéressent au transport du radon depuis le tunnel jusqu'en surface ainsi qu'à la caractérisation des fractures de l'EDZ et de la roche saine en interaction avec le sous-sol et le sol. Ces travaux montrent bien la nécessité de réaliser des études de traitement de signal (analyse spectrale avec séries de Fourier) pour déterminer les corrélations entre les variations temporelles des concentrations en radon dans le tunnel, et celles des paramètres thermodynamiques/météorologiques des atmosphères internes et externes au tunnel (pression, température, humidité relative, vent...) et hydrologiques (infiltration en surface, hauteur de la nappe). Ces corrélations sont parfois difficiles à établir et ne peuvent pas souvent aboutir à des conclusions sur la nature transitoire de transfert du radon dans le système **cavité-roche-sol** dans sa globalité. Des tentatives de modélisation ont été proposées par la suite par Guillon (2013) pour la caractérisation de la perméabilité de la roche fracturée et de l'EDZ et pour la simulation de transport du radon depuis le tunnel vers la surface. Cependant, son approche est très limitée puisqu'elle considère un modèle simplifié avec un écoulement vertical monodimensionnel de la phase gazeuse uniquement (phase liquide considérée immobile). Une telle simplification ne permet pas de simuler l'écoulement diphasique eau-air et le transport de radon dans le tunnel en considérant les conditions climatiques variables qui règnent à son entrée et à la surface du sol qui le surmonte, ainsi que les variations saisonnières de remontée ou de baisse du niveau de la nappe qui peut être au-dessus ou au-dessous du lit du tunnel.

De même, Perrier et al. (2005) proposèrent une approche, dite en cascades, simple à mettre en œuvre qui peut être appliquée à travers les différents compartiments résultant du découpage spatial du volume du tunnel, pour éviter l'utilisation d'un schéma CFD fortement non linéaire. Cette approche consiste à introduire la notion de taux de renouvellement d'air pour décrire la circulation de l'air et le transport du radon dans le tunnel et leur échange éventuel avec l'atmosphère externe. La simplicité de leur modèle ne permet pas de prendre en compte la nature transitoire de l'écoulement de la phase gazeuse ni l'échange d'air et de radon avec les parois fracturées du tunnel et la nappe sous-jacente, et reste limité à un problème de circulation du radon dans le tunnel uniquement.

Depuis lors, la prise en compte de l'interaction **cavité-roche-sol** dans une modélisation 3D prenant en compte les variations saisonnières des paramètres climatiques et hydrologiques qui délimitent le tunnel n'a jamais eu lieu.

En **milieu karstique**, la plupart des études de transport du radon à l'échelle internationale concernent des zones touristiques où les cavités sont mal aérées et présentant des concentrations en radon très élevées par rapport à la norme, selon chaque pays (e.g., 300 Bq/m<sup>3</sup> en France). Ces études se focalisent en particulier sur les mesures de concentration en radon dans les cavités souterraines afin d'évaluer leurs variations saisonnières et de proposer des techniques de ventilation de ces cavités en vue de la réduction de ces concentrations en présence des touristes, qui peuvent être y exposés sur plusieurs heures durant la journée (e.g., Hakl et al., 1997 ; Przylibski, 1999 ; Friend et Gooding, 2002 ; Vaupotic, 2008). Peu d'études s'intéressent à l'origine de ces concentrations élevées. A titre d'exemple, dans les aquifères des roches carbonatées de la région *Apulia* au sud d'Italie, ces concentrations sont attribuées au radon dissous dans la nappe en interaction avec une roche à teneur massique en <sup>226</sup>Ra très élevée (Spizzico, 2005 ; Tadolini et Spizzico, 1998).

**En France**, les karsts couvrent environ 50% du territoire métropolitain et peuvent être des sources importantes du radon dans les bâtiments, c'est le cas de la région karstique de Franche-Comté où une proportion importante de niveaux de radon élevés dans les bâtiments est constatée (saisine de la Direction Générale de la Santé DGS ; courrier du 28/07/2014, référencé DGS/EA2 n°132).

Si la métrologie du radon est suffisamment développée pour évaluer les concentrations en radon et les flux dans les sols/roches et les karsts, la modélisation de transport du radon à l'échelle d'un système karstique est quasi-inexistante. La plupart des modèles de recherche développés sont destinés à étudier l'hydraulique de l'eau et le transport de traces géochimiques et du radon dissous dans les nappes souterraines (e.g., Duran et Gill, 2021 ; Chengxin et al., 2016 ; Renard et Bertrand, 2016). A part les difficultés liées à la quantification de la géométrie complexe 3D du réseau karstique avec ses entrées et ses sorties, et des caractéristiques hydrodynamiques et de transferts de la roche fracturée et du sol (souvent hétérogènes), la grande difficulté réside dans le développement

d'un modèle unique capable de simuler l'écoulement transitoire diphasique liquide-gaz et le transport de radon dans les cavités et les milieux poreux ou fracturés simultanément (Saâdi, 2017a). Cette difficulté peut être résolue par le couplage d'un code CFD de transport du radon en milieu libre avec un code de transport de radon en milieu poreux, mais cette résolution reste toujours très complexe à réaliser pour un système diphasique liquide-gaz (Ghezzehei et al., 2004 ; Shavit, 2009 ; Mosthaf et al., 2011 ; Baber et al., 2012).

Etant donné que les karsts sont différents d'une région à l'autre et compte tenu du peu de connaissances dans le domaine d'une manière générale, il est difficile d'évaluer l'impact des environnements karstiques sur le potentiel radon géogénique. Pour cela, une étude de recherche est nécessaire afin de mieux comprendre les phénomènes régissant les niveaux de radon observés dans les environnements karstiques et les conditions favorisant des niveaux de radon élevés dans ces environnements, à savoir :

- La source anormale du radon dans les sols ;
- La perméabilité de la roche fracturée ou d'une éventuelle faille en interaction avec la cavité souterraine favorisant significativement le transfert du radon vers la surface ;
- La structure spécifique du karst en particulier les tailles de ses cavités, sa fracturation et sa profondeur ;
- Le type de connexion entre les cavités et la surface ;
- Le régime hydrologique...

Pour donner suite à la saisine de la DGS, l'IRSN a initié une étude qui a fait l'objet d'une fiche action du Plan National d'Actions 2016-2019 pour la gestion du risque lié au radon. Cette étude a fait également l'objet d'un accord spécifique de collaboration de recherche (réf. DAFJ/SJ/-LS20086) établi entre l'IRSN et le Laboratoire Chrono-Environnement (LCE, UMR 6249 CNRS-UFC) de l'Université de Franche-Comté à Besançon pour la caractérisation du réseau karstique d'une **zone pilote**, et a bénéficié des subventions du fonds européen de développement régional (FEDER) de la Commission Européenne dans le cadre du projet « JURAD-BAT » du programme Interreg France-Suisse 2014-2020. Ce projet était ciblé sur le territoire pilote de l'arc jurassien, zone transfrontalière franco-suisse particulièrement concernée par la problématique radon. Par ailleurs, l'IRSN a bénéficié d'un appui sur le terrain de l'ASDC (Association Spéléologique Doubs Central) pour l'accès aux cavités souterraines.

L'objectif de cette étude, que je présente dans le cadre de cette HDR, est de comprendre les mécanismes des transferts du radon dans un système karstique, depuis les cavités souterraines jusqu'en surface, et d'évaluer l'influence potentielle des terrains karstiques sur les niveaux de radon dans le sol et son exhalation en surface. Les résultats de ces travaux de recherche permettront, d'une part, d'apprécier la nécessité de préciser la cartographie du potentiel radon de certaines régions en tenant compte de la présence de ces cavités naturelles, et d'autre part, de tirer les enseignements nécessaires permettant d'améliorer les études réalisées dans d'autres contextes semblables (tunnels, vides miniers...).

L'étude comprend l'acquisition de données sur le terrain, un traitement des signaux enregistrés *in situ* et une modélisation de l'émanation et des transferts du radon dans le système karstique avec le code T2Rn. Enfin, les enseignements issus de cette étude et les propositions de perspectives pour améliorer la compréhension des transferts de radon en milieu karstique seront présentés en conclusion.

## 4.2 Systèmes karstiques en Franche-Comté et choix du domaine d'étude

### 4.2.1 Contexte géologique local

La région Franche-Comté est occupée par le massif jurassien qui forme un croissant, du Rhône au Rhin, sur une longueur de 250 km et se situe sur la bordure Nord-Ouest des Alpes. Plusieurs grands ensembles structuraux sont distingués du Sud-Est au Nord-Ouest (Figure 4-1) : le Jura plissé, les plateaux jurassiens, les faisceaux du Jura externe, la couverture épivarisque déformée, la couverture épivarisque et les massifs varisques.



Le Jura est séparé des Alpes par une zone affaissée, le plateau molassique suisse. Au nord de la Franche-Comté, les Vosges Saônoises représentent une partie du massif vosgien. Deux fossés d'effondrement bordent la Franche-Comté : au Nord-Est, le fossé rhénan qui forme la plaine d'Alsace entre Vosges et Forêt Noire, à l'Ouest le fossé bressan.

Le Jura s'est mis en place au cours du cycle orogénique alpin. Il constitue une chaîne de couverture sédimentaire décollée de son socle sous-jacent au niveau des argiles et des dépôts évaporitiques du Trias supérieur. Cette couverture s'est plissée à la suite de déformations du socle. Le Jura est essentiellement constitué de formations carbonatées marno-calcaires.

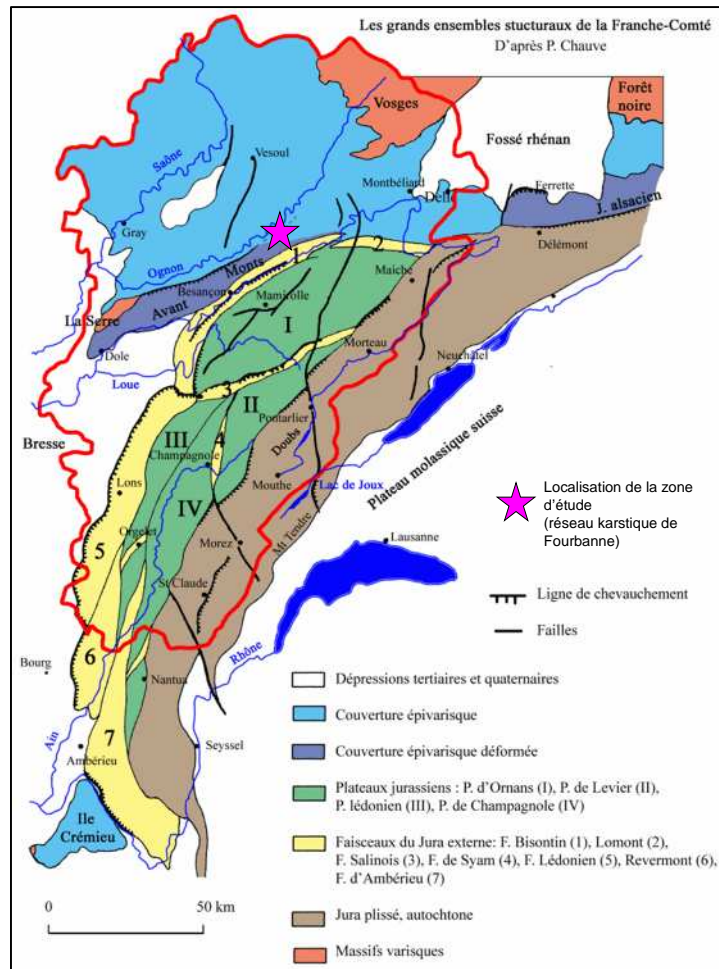


Figure 4-1 – Carte géologique simplifiée de la Franche-Comté indiquant les grands ensembles structuraux (source : Chauve 1975).

Sur une coupe géologique à travers le Jura central, trois ensembles lithologiques peuvent être distingués :

- Les formations anciennes qui constituent le socle hercynien de la chaîne hercynienne,
- La couverture sédimentaire secondaire qui s'est déposée dans une mer épicontinentale,
- Les terrains alluviaux ou détritiques qui remplissent les fossés creusés lors de la surrection du Jura ou qui tapissent le fond des vallées actuelles ou fossiles.

La région Franche-Comté constitue le massif karstique le plus étendu du nord de la France. Les formations karstiques sont observées essentiellement dans le Doubs et le Jura. L'ensemble des phénomènes karstiques y sont

observés tels que lapiaz, dolines, bassins fermés, pertes, grottes, gouffres, sources vauclusiennes, glaciers... A ce jour, ce sont plusieurs centaines de kilomètres de galeries et plusieurs milliers de cavités, qui ont été explorés, répertoriés, cartographiés par les spéléologues francs-comtois.

#### 4.2.2 Le radon en Franche-Comté

La carte du potentiel radon géogénique de la région Franche-Comté est reportée sur la Figure 4-2. Elle est extraite de la cartographie réalisée à l'échelle nationale (Rapport IRSN, 2009). Les potentiels les plus élevés sont liés à des formations riches en uranium appartenant au Massif vosgien (Figure 4-1). Les formations géologiques présentant un potentiel moyen sont des formations plutoniques et volcaniques moins uranifères ainsi que les formations sédimentaires détritiques des bassins carbonifères et permien. Ces formations sont observées surtout dans les départements de Haute-Saône (70) et du Territoire de Belfort (90). Le potentiel moyen ou élevé de certaines zones est lié à la présence de failles ou d'ouvrages miniers. Enfin, l'impact des formations karstiques sur le potentiel radon géogénique n'a pu être estimé pour la réalisation de la cartographie à l'échelle nationale, compte tenu de l'hétérogénéité de la typologie des karsts d'une région à l'autre et du peu de connaissances actuelles sur les transferts du radon au sein de formations karstiques.

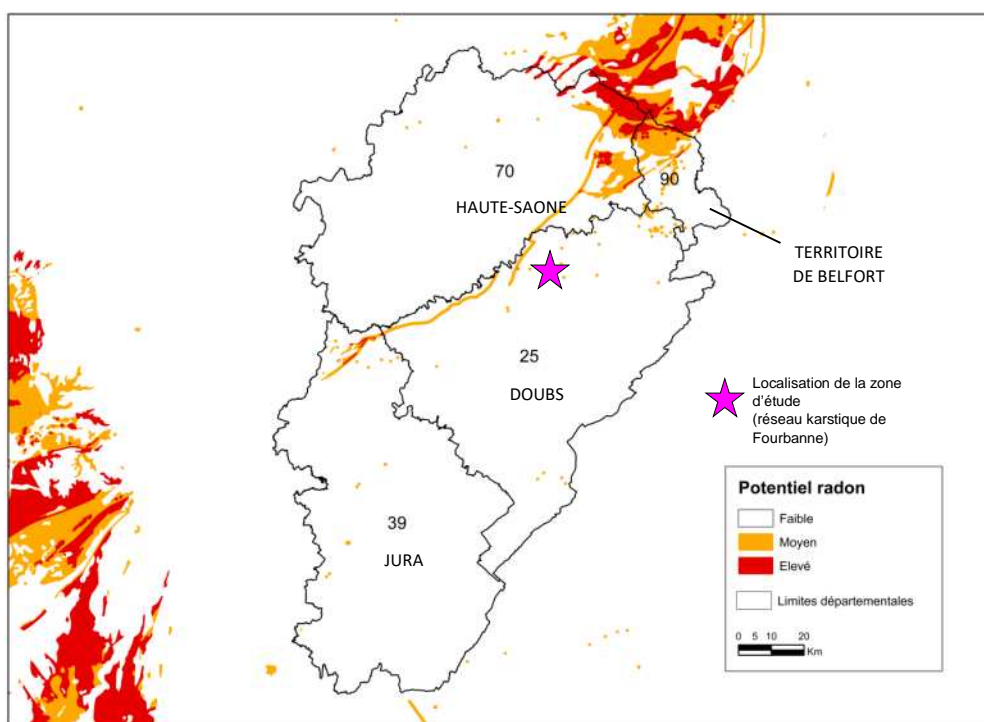


Figure 4-2 – Cartographie du potentiel radon géogénique de la région Franche-Comté avec localisation du secteur d'étude (extrait du rapport IRSN 2009)

Les données extraites de la base de données issue de la campagne nationale de mesure de l'activité volumique du radon dans l'habitat IRSN/DGS (1983-2003)<sup>5</sup> pour les départements de Franche-Comté sont synthétisées dans le Tableau 4-1. Le nombre de mesures est hétérogène d'un département à l'autre ; le plus faible étant de 15 pour le Territoire de Belfort, 59 résultats sont disponibles pour le Jura et environ une centaine pour le Doubs et pour la Haute-Saône. La concentration en radon par habitation est fortement variable dans chaque département, de quelques dizaines à plusieurs centaines de Bq/m<sup>3</sup>. Elle est globalement comprise entre 13 et 1 897 Bq/m<sup>3</sup>. La plus

<sup>5</sup> Cette base a été consolidée en 2012 par un tri des données (suppression de certains résultats obtenus selon une méthode non conforme à la norme de référence) et le géo référencement de la majorité des résultats de mesure à l'adresse (Demoury et al., 2013)

forte variabilité est observée dans le Doubs. Le pourcentage, par département, de valeurs supérieures à 300 Bq/m<sup>3</sup> est proche de 10%, excepté pour le Territoire de Belfort où il est de 20%.

A l'initiative de la DRASS et de l'ARS de Franche-Comté, une seconde campagne de mesures des concentrations en radon dans l'habitat domestique a été réalisée en octobre-novembre 2005 dans les quatre départements de la région. Deux dosimètres passifs ont enregistré pendant 2 mois l'activité volumique du radon dans la pièce de vie et dans une chambre, pour 443 logements. Les résultats sont synthétisés dans le Tableau 4-2. Les concentrations mesurées sont comprises entre 4 et 2 100 Bq/m<sup>3</sup>. Pour chaque département, 10 à 20% des logements de la campagne présentent une concentration moyenne supérieure à 300 Bq/m<sup>3</sup> et quel que soit le département, 2% des habitations présentent des concentrations moyennes supérieures à 1 000 Bq/m<sup>3</sup>.

**Tableau 4-1 - Résultats de mesures de la concentration en radon dans l'air intérieur des habitations issus de la campagne nationale IRSN/DGS.**

Mesures de l'activité volumique du radon dans l'habitat	Doubs (25)	Jura (39)	Haute-Saône (70)	Territoire de Belfort (90)
Nombre d'habitations	130	59	124	15
Gamme de résultats (Bq.m <sup>-3</sup> )	13 - 1 896	13 - 529	17 - 756	19 - 483
Moyenne (Bq.m <sup>-3</sup> )	167	114	131	138
N résultats > 300 Bq.m <sup>-3</sup>	16 (12%)	6 (10%)	10 (8%)	3 (20%)
N résultats > 1 000 Bq.m <sup>-3</sup>	2 (1,5%)	0	0	0

**Tableau 4-2 - Résultats de la concentration moyenne en radon dans l'air intérieur des habitations issus de la campagne de 2005 (source : ARS Franche -Comté).**

Mesures de l'activité volumique du radon dans l'habitat (valeur moyenne par logement)	Doubs (25)	Jura (39)	Haute-Saône (70)	Territoire de Belfort (90)
Nombre de logements	161	116	110	56
Gamme de résultats (Bq.m <sup>-3</sup> )	5 – 1 795	10 – 1 121	20 – 1 203	30 – 1 605
Moyenne (Bq.m <sup>-3</sup> )	168	134	181	226
N résultats > 300 Bq.m <sup>-3</sup>	23 (14%)	14 (12%)	13 (12%)	11 (20%)
N résultats > 1000 Bq.m <sup>-3</sup>	4 (2%)	2 (2%)	2 (2%)	1 (2%)

Ainsi, les résultats de mesure du radon dans les bâtiments de Franche-Comté montrent des niveaux très variables de quelques dizaines à plusieurs milliers de Bq/m<sup>3</sup> quel que soit le département. Des niveaux élevés, supérieurs à 300 Bq/m<sup>3</sup> ou 1000 Bq/m<sup>3</sup>, sont observés non seulement dans des zones caractérisées par des roches uranifères du Massif Vosgien et des bassins carbonifères et permians (départements de Haute-Saône et du Territoire de Belfort), mais aussi dans des zones caractérisées par des formations sédimentaires essentiellement carbonatées (Doubs et Jura) dont la teneur en uranium est très faible. Ces formations carbonatées présentent une forte karstification dans ces deux départements.

Compte tenu des niveaux de radon élevés mesurés dans certains bâtiments du **Doubs** et des nombreux réseaux karstiques y existant (Ielsh, Saâdi et Bertrand, 2016), le secteur d'étude a été sélectionné dans ce département.

#### 4.2.3 Site d'étude : système karstique de Fourbanne

**La source de Fourbanne** se situe à 23 km à l'Est de Besançon et 5 km à l'Ouest de Baume-Les-Dames. Elle émerge à une altitude de 262 m dans la plaine alluviale du Doubs et donne naissance à un petit ruisseau qui se jette

dans le Doubs, à quelques centaines de mètres de l'émergence. Son bassin est estimé à 30 m<sup>2</sup>. Il est localisé dans la structure géologique des Avants-Monts dans le Jura tabulaire, correspondant à des calcaires d'âge du Jurassique moyen (Figure 4-3). Ces calcaires sont légèrement plissés et entrecoupés par un réseau de failles méridiennes d'axe nord-sud. De nombreuses dolines sont observées sur le secteur de Fourbanne. Leur cartographie (Figure 4-4) montre le lien fort existant entre leur localisation et la géologie structurale. En effet, la plupart des dolines sont alignées le long des failles du secteur selon une orientation N-S ou NNE-SSW. La formation et la morphologie du réseau karstique souterrain de Fourbanne sont également liées à ce réseau de failles.

La longueur topographiée actuelle du système karstique actif (présence d'une rivière souterraine) de Fourbanne s'établit à 9 km. Ce réseau possède plusieurs **salles**, **galeries** et **siphons**. Il est alimenté par deux pertes principales, celle de Verne et celle de Luxiol. De nombreuses **dolines** viennent aussi alimenter la résurgence. La source de Fourbanne est le seul exutoire du système. L'accès naturel au réseau karstique se fait par la grotte d'En Versenne, après le franchissement de plusieurs siphons noyés qui imposent une progression subaquatique. Le conduit karstique à l'aplomb du Village de Fontenotte est accessible grâce à un puits vertical d'une profondeur de 20 m, creusé par les spéléologues de l'ASDC. La réalisation de ce puits artificiel permet d'accéder à la majeure partie du réseau souterrain sans équipement spécifique. Ce puits débouche dans la salle de Fontenotte.

Le système karstique de Fourbanne a été choisi pour sa taille relativement restreinte comparativement à d'autres systèmes de la région, pour son accessibilité et donc son potentiel en termes d'instrumentation, de caractérisation, et pour les connaissances déjà acquises sur celui-ci par les spéléologues de l'ASDC et le LCE.

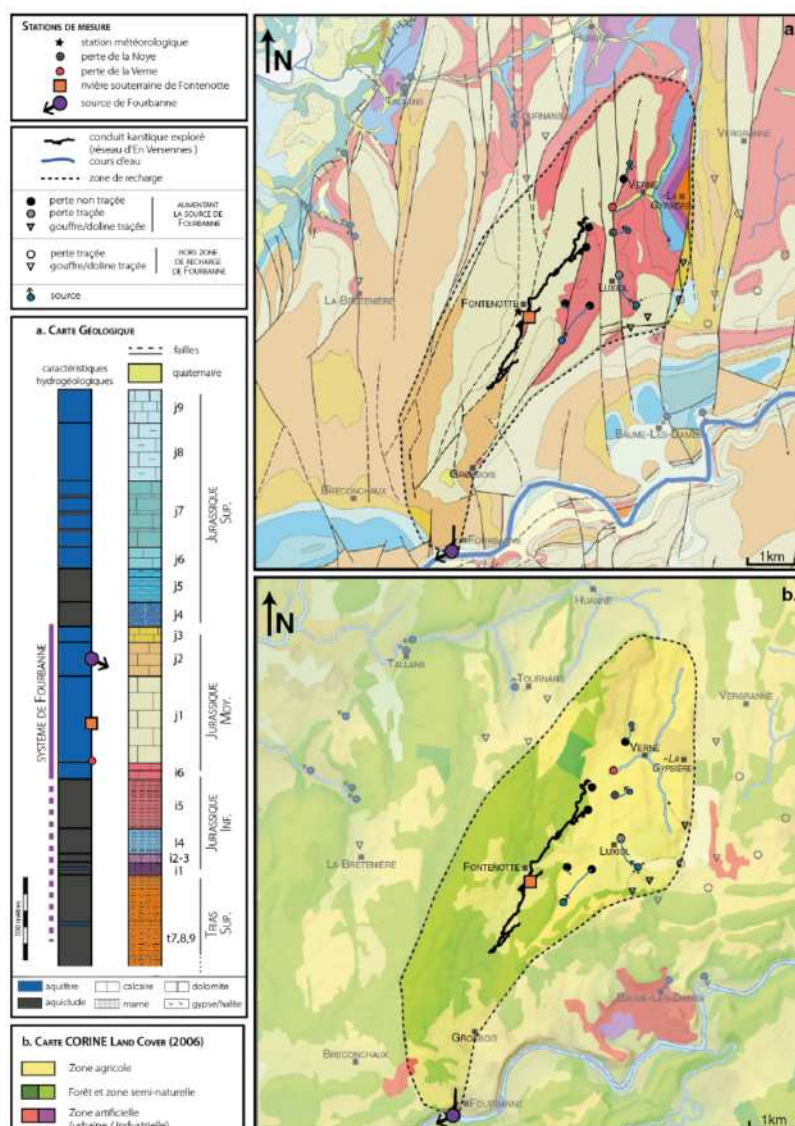


Figure 4-3 – Description de la zone de recharge du système karstique de Fourbanne avec (a) la carte géologique et (b) la carte de l'occupation des sols (planche issue de Cholet, 2017).

Depuis plusieurs années, le LCE a développé une approche pluri-scalaire des aquifères karstiques, mise au point sur le site de Fourbanne. Les études menées sur ce site ont permis d'établir un modèle conceptuel de transfert des fluides à travers l'aquifère. Cette méthodologie est actuellement utilisée sur les sites expérimentaux qui font partie du système Jurassien Karst, intégré au Service National d'Observatoire des Bassins Versants. Les travaux de la thèse de Cholet (2017) ont été réalisés sur trois des sites suivis par ce réseau (dont Fourbanne) afin de caractériser les transferts au sein des systèmes karstiques du massif du Jura, notamment en se focalisant sur le rôle de l'infiltration dans le processus de karstification. Les résultats des recherches menées par le LCE lui ont permis d'acquérir des connaissances précises sur le réseau karstique de Fourbanne et les transferts des fluides dans ce système depuis la surface jusque dans la zone saturée, ainsi que sur les manifestations surfaciques du karst (Charmoille, 2005). Cette connaissance hydrogéologique et les données encore actuellement acquises sur l'aquifère par le LCE serviront à l'interprétation des transferts du radon dans le système karstique.

L'instrumentation du site karstique de Fourbanne est décrite en détails dans Ielsh, Saâdi et Bertrand (2016). L'interprétation des résultats de mesures ainsi que la modélisation d'une zone d'étude sur ce site ont fait l'objet d'un **post-doc** de recherche mené par Mme Nahla Mansouri que j'ai supervisée pour une durée de 1 an (février 2017 à février 2018). Elles sont détaillées dans le rapport IRSN 2018 (Mansouri et Gréau, 2018).



Dans les deux sections qui suivent, je présente brièvement le protocole expérimental qui a eu lieu durant plusieurs campagnes de mesures entre 2015 et 2016 ainsi que l'interprétation des résultats de ces mesures. La modélisation de transport du radon depuis les cavités souterraines vers la surface sera présentée dans la dernière section de ce chapitre.

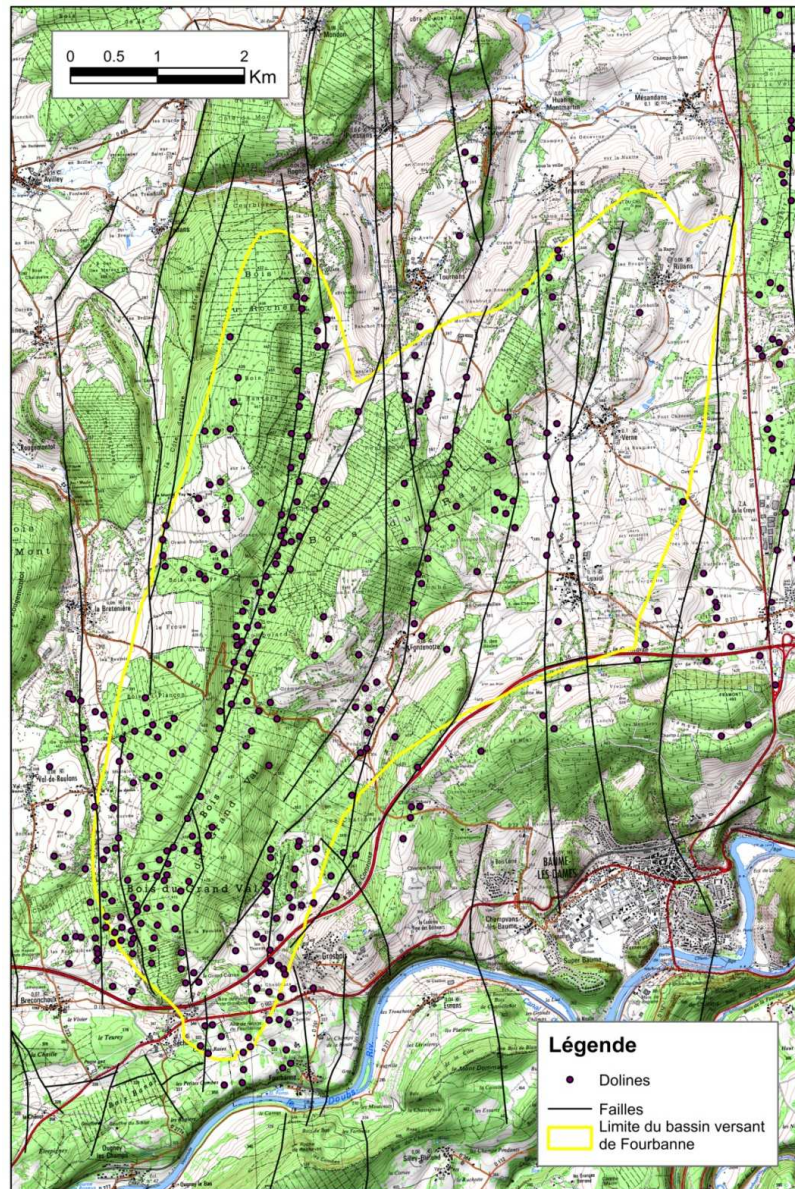


Figure 4-4 – Cartographie des dolines et des failles reportées sur la carte topographique au 1 : 25 000 (IGN).

### 4.3 Instrumentation du site de Fourbanne et analyse des résultats de mesure

#### 4.3.1 Mesures des propriétés physiques et radiologiques des sols

La Figure 4-5 montre l'ensemble des points de mesure de ces propriétés sur le site de Fourbanne. Pour les échantillons de sol prélevés, **une analyse granulométrique** a été réalisée au laboratoire pour les diamètres moyens de particules solides du sol ( $d$ ) inférieures et supérieures à 2 mm. Pour  $d < 2$  mm, l'analyse a été effectuée pour cinq fractions massiques : Argile :  $d \leq 2 \mu\text{m}$  ; Limon fin :  $2 < d \leq 20 \mu\text{m}$  ; Limon grossier :  $20 < d \leq 50 \mu\text{m}$  ; Sable fin :  $50 < d \leq 200 \mu\text{m}$  ; Sable grossier :  $200 < d \leq 2000 \mu\text{m}$ . Pour  $d > 2$  mm, les fractions sont déterminées

manuellement, par pesée et tamisage. Cette analyse granulométrique a été complétée par une analyse de la surface spécifique et de la distribution de la taille et du volume des pores.

**La teneur volumique en eau** de chaque échantillon du sol prélevé a été mesurée par une double pesée de l'échantillon à l'état humide (au moment du prélèvement) et à l'état sec (au laboratoire après séchage en étuve).

**La masse volumique sèche** est déterminée à partir de la masse sèche de l'échantillon et du volume de prélèvement (cylindre de volume de 100 cm<sup>3</sup>).

**La porosité** est déduite de la masse volumique sèche en considérant une masse volumique des particules solides de l'ordre de 2650 kg/m<sup>3</sup>.

**La perméabilité du sol au gaz** est mesurée au moyen de l'appareil RADON-JOK (cf. Annexe A.1) sur tous les sites de mesure ponctuelle de l'activité volumique du radon dans l'air du sol.

**L'activité massique du Ra-226 et de l'U-238** dans le sol a été mesurée par spectrométrie gamma, et cela pour chaque échantillon de sol prélevé. La teneur en Ra-226 est déduite de la mesure du Pb-214 et celle de l'U-238 du Th-234.

Un exemple des résultats de mesure de la granulométrie et de la porosité des échantillons de sol aux 12 points de mesure FO#1-12 (FO : désigne Fourbanne) ainsi que ceux de la perméabilité au gaz sont reportés dans la Figure 4-6. La texture du sol ne varie pas énormément et est généralement limoneuse (Figure 4-6a). La porosité des sols varie entre environ 0,31 et 0,51 (Figure 4-6c). La perméabilité au gaz des sols montre une variabilité importante sur le secteur d'étude avec des valeurs mesurées comprises entre  $3,65 \times 10^{-14}$  et  $2,85 \times 10^{-11}$  m<sup>2</sup> (Figure 4-6c). Ces mesures ont été réalisées en période sèche, entre le 29 juin et le 1<sup>er</sup> juillet 2015, simultanément à des mesures de l'activité volumique de radon dans l'air du sol. Aucune corrélation n'est observée entre les valeurs de perméabilité et la topographie du site mesuré (Figure 4-7a). Ces résultats confirment toujours le caractère normal des propriétés de la texture des sols et le caractère log-normal de la perméabilité (Haverkamp et al., 2016 ; Saâdi et al., 2000).

Les résultats de mesures d'activités massiques du radium-226 et de l'uranium-238 obtenus pour 28 échantillons de sol prélevés ont montré une assez grande variabilité pour des échantillons naturels avec des activités massiques comprises entre 27 et 96 Bq/kg pour le radium-226 et entre environ 19 et 66 Bq/kg pour l'uranium-238. Toutefois, aucune relation n'a été observée entre la topographie et les activités massiques de radium-226 ou d'uranium-238 (Figure 4-7b, Figure 4-7d).



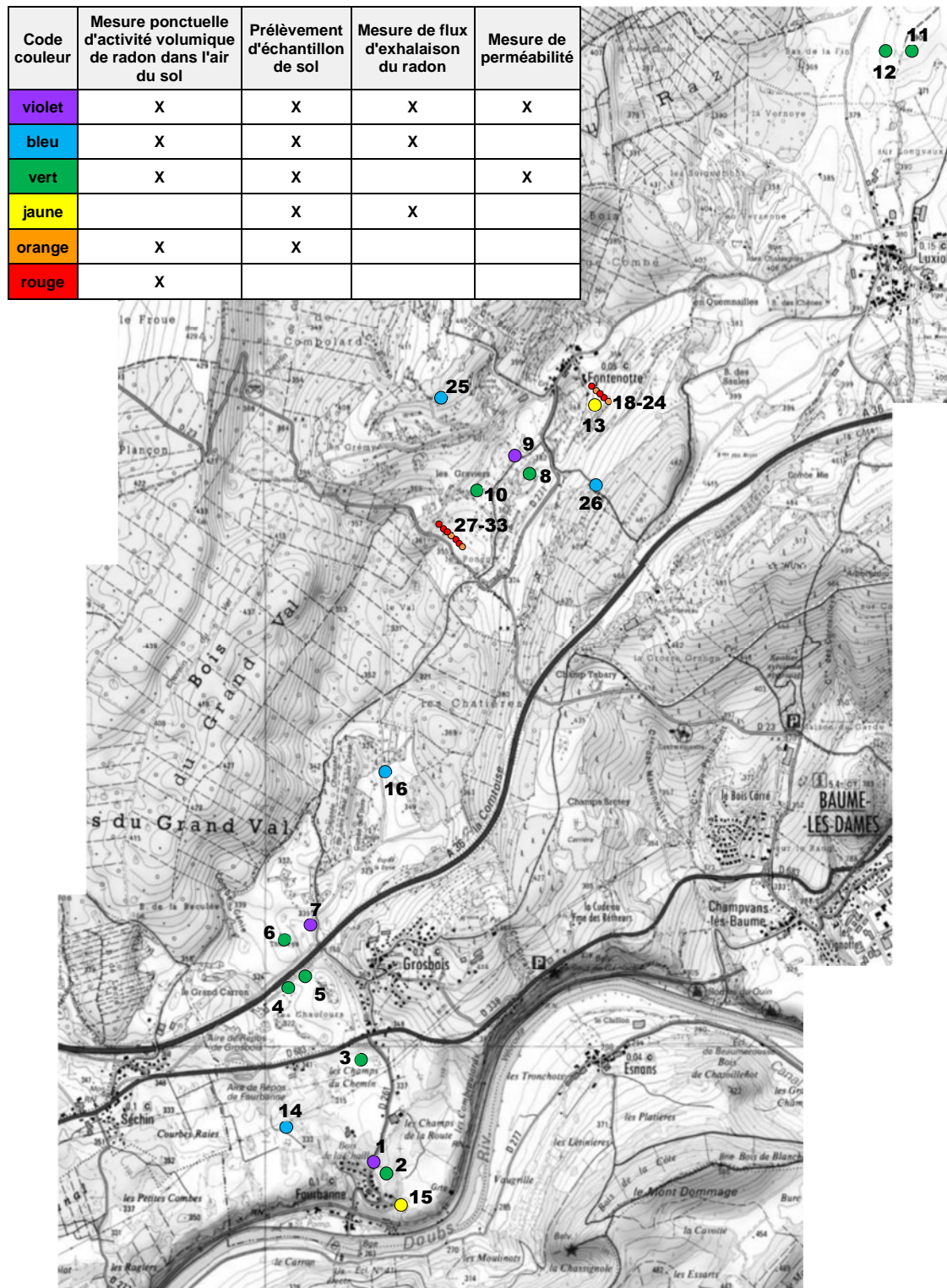


Figure 4-5 – Localisation des différents points ayant fait l'objet de mesure de l'activité volumique de radon dans l'air du sol et/ou de mesure du flux surfacique d'exhalaison du radon et/ou de mesure de perméabilité des sols et/ou de prélèvement d'échantillons de sols pour analyse de la granulométrie et des propriétés d'émanation.

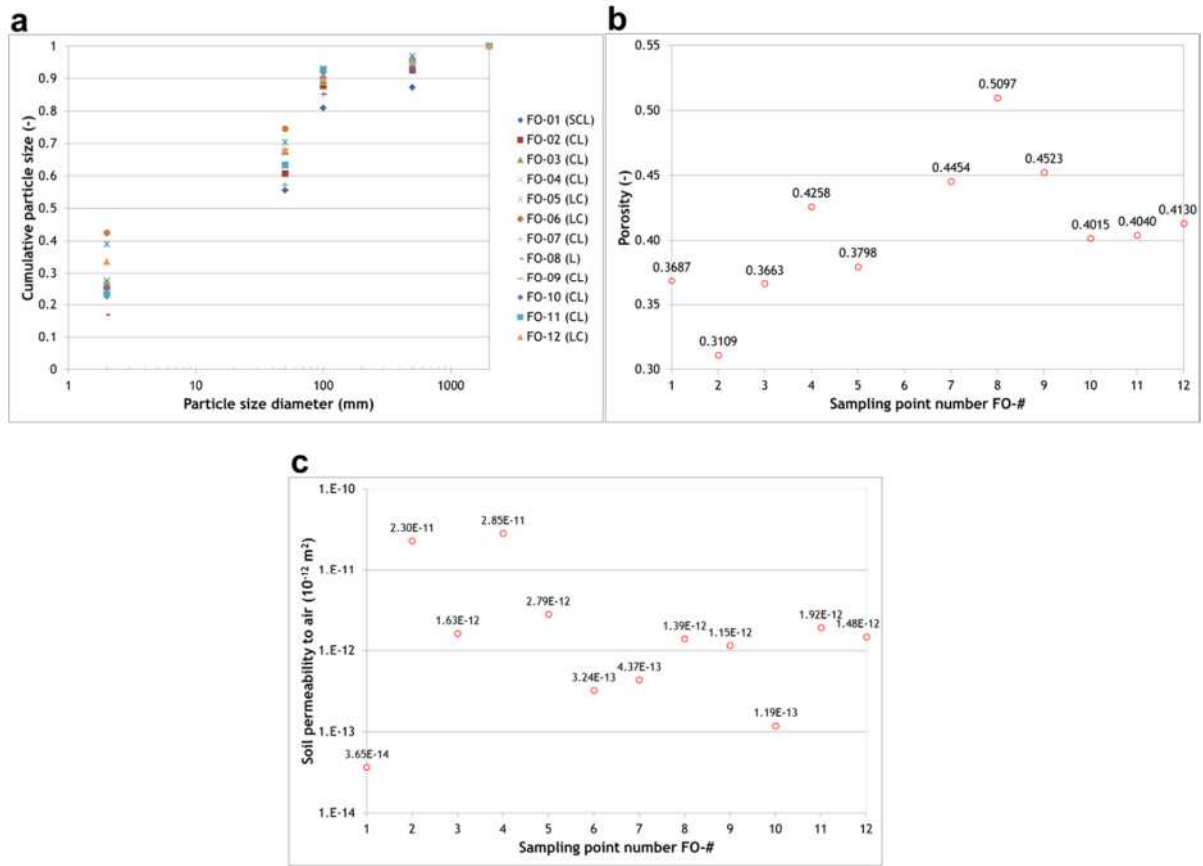


Figure 4-6 – Répartition des résultats de mesure de : a/ la granulométrie, b/ la porosité, et c/ la perméabilité à l'air du sol aux points de mesure FO#1-12 (FO désigne Fourbanne).

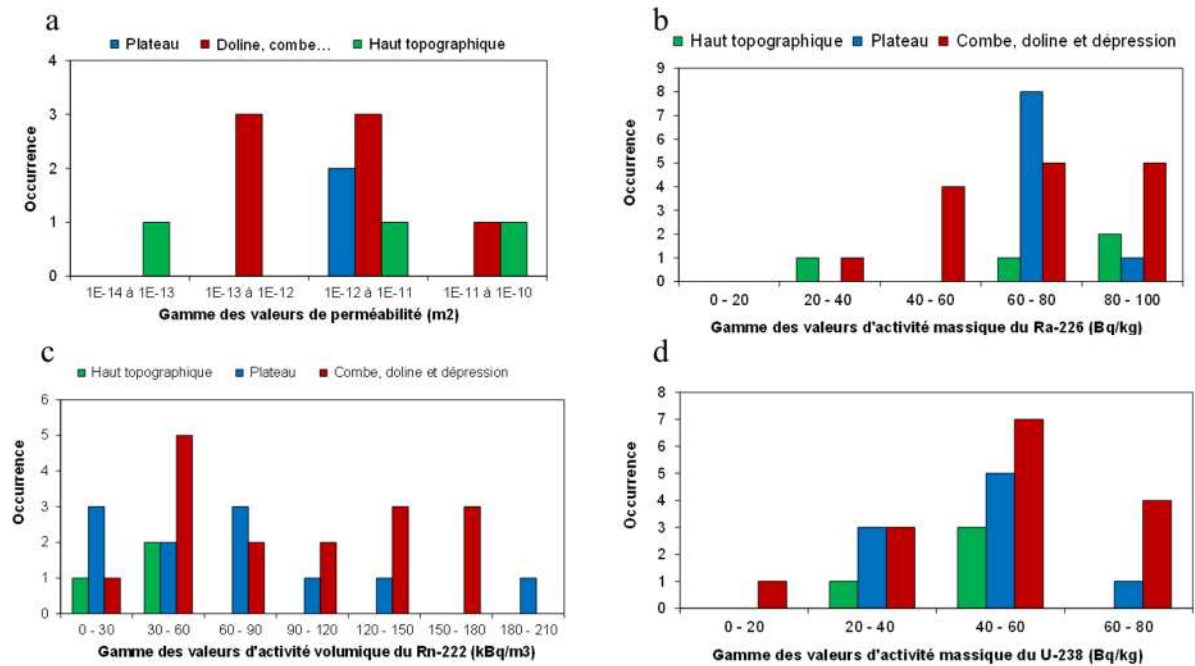


Figure 4-7 – Histogramme des différents paramètres mesurés en fonction de la topographie du point de mesure (28 échantillons) : a/ perméabilité à l'air du sol, b/ activité massique de radium-226, c/ activité volumique du radon-222 dans l'air du sol (mesure ponctuelle), d/ activité massique d'uranium-238.

### 4.3.2 Mesures du radon dans les sols

#### ➤ Mesures ponctuelles de la concentration en radon dans l'air du sol

Des mesures ponctuelles de la concentration en radon dans l'air du sol ont été effectuées en 30 points différents sur le secteur d'étude (Figure 4-5). La mesure a été réalisée conformément aux exigences de la norme NF ISO 11665-6. Le principe de la méthode de cette mesure est décrit en détail dans l'Annexe A.2.

Ces mesures ont été réalisées le 30 juin et le 1<sup>er</sup> juillet 2015 puis le 20 et le 21 juillet 2016. Les conditions climatiques de ces quatre jours étaient comparables (temps sec) et favorisaient des concentrations en radon dans l'air du sol élevées. Deux mesures successives ont généralement été réalisées sur chacun des sites (à l'exception de deux sites), à une profondeur d'environ 50 cm. Les deux résultats obtenus pour chacun des sites ont systématiquement le même ordre de grandeur.

Ces résultats ont montré une grande variabilité spatiale avec des valeurs comprises entre 11,2 kBq/m<sup>3</sup> (FO-25) et 197,5 kBq/m<sup>3</sup> (FO-26). Ces deux valeurs extrêmes ont été mesurés le même jour, à moins d'une heure d'intervalle, dans des secteurs proches (Figure 4-5) et dans une topographie similaire (de type plateau).

#### Lien avec la topographie

Les quelques résultats des mesures effectuées sur des hauts topographiques ont tendance à présenter des concentrations en radon dans l'air du sol relativement faibles (Figure 4-7c). Toutefois, les résultats des mesures effectuées dans des topographies de type plateau ou de type fond de doline montrent une très grande variabilité et des valeurs pouvant être comparables à celles observées en position de haut topographique. Ainsi, ces résultats ne permettent pas de déduire l'existence d'une relation entre la topographie et les concentrations en radon dans l'air du sol.

#### Estimation du coefficient d'émanation

La Figure 4-8b montre un exemple de calcul du coefficient d'émanation E (cf. § 1.2) à partir des mesures de concentration en radon dans l'air du sol (Figure 4-8a) et de la teneur en radium du sol pour l'ensemble des points FO#1-12. Un coefficient d'émanation élevé n'implique pas nécessairement une concentration en radon élevée dans le sol et vice-versa. Sa valeur dépend essentiellement de la teneur ou du degré de saturation en eau (Eqs. (1-13)-(1-14)), de la température et de la texture du sol (cf. § 1.3.1).

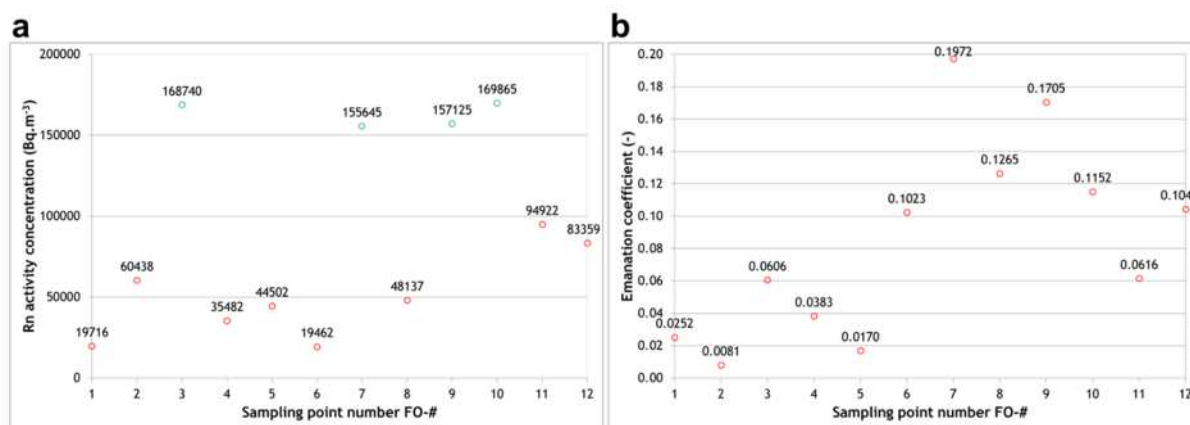


Figure 4-8 – Répartition des résultats de mesure de : a/ l'activité volumique du radon de l'air du sol (les points verts sont situés dans les dolines) et b/ coefficient d'émanation aux points de mesure FO#1-12 (FO désigne Fourbanne).

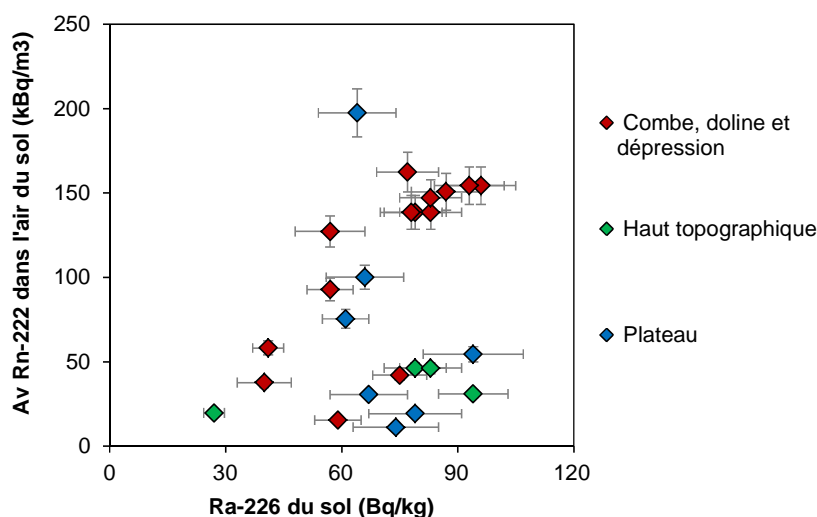
### Relation teneur en $^{226}\text{Ra}$ - concentration en radon dans le sol

La Figure 4-9 présente les résultats des mesures ponctuelles de la concentration en radon dans l'air du sol en fonction des teneurs en radium mesurées dans les échantillons de sols et en fonction de la topographie du lieu de mesure.

Pour les mesures effectuées en fond de doline, une corrélation évidente s'observe entre les concentrations en radon dans l'air du sol et les teneurs en radium-226 des sols. Seuls deux sites (FO-05 et FO-06) de type fond de doline présentent des concentrations en radon dans l'air du sol relativement faibles par rapport aux teneurs en radium-226 du sol et sortent de cette tendance.

Aucune corrélation n'est toutefois observée pour les mesures effectuées sur les sites de type haut topographique ou plateau. Les concentrations en radon dans l'air du sol mesurées sur des hauts topographiques sont faibles y compris lorsque la teneur en radium-226 du sol est pourtant élevée. Des concentrations en radon dans l'air du sol très élevées ont parfois été mesurées sur des topographies de type plateau (e.g., FO-26 avec  $197,5 \text{ kBq/m}^3$ ) mais ces valeurs ne se corrélaient pas avec des teneurs en radium-226 plus élevées dans le sol.

L'épaisseur de sol est en général beaucoup plus importante en fond de doline que sur les hauts topographiques. De ce fait, ces observations pourraient indiquer que les concentrations en radon dans l'air du sol dépendent à la fois de la teneur en radium-226 du sol et de l'épaisseur de sol.



**Figure 4-9 – Relation entre l'activité volumique de radon mesurée dans l'air du sol par rapport aux teneurs en radium-226 mesurées dans les échantillons de sol sur le secteur de Fourbanne en fonction de la topographie du site.**

La comparaison des résultats obtenus sur le secteur d'étude de Fourbanne avec des données acquises lors de précédentes études réalisées par l'IRSN dans différents contextes géologiques et dans différentes régions françaises (Ielsch, Saâdi et Bertrand, 2016) montrent que les niveaux de radon sont cohérents avec les teneurs en radium-226 des sols. Ces dernières sont toutefois similaires à celles des sols développés sur des roches granitiques riches en uranium et en radium. L'enrichissement relatif en radium-226 des sols serait lié à la dissolution des carbonates et à la fixation des radionucléides libérés sur les matériaux argileux, la matière organique ou les oxydes de fer contenus dans le sol.

### Au voisinage des failles

De plus, des mesures ponctuelles de l'activité volumique de radon dans l'air du sol ont été réalisées le long de deux profils recoupant chacune des failles principales de la zone d'étude : faille traversant un fond de doline et faille sur une topographie de type plateau (e.g., Figure 4-10a). Ces mesures ont montré que la présence d'une zone

de faille est un facteur favorisant la présence de radon dans l'air du sol à des concentrations plus importantes que celle que soit la topographie du terrain considéré (e.g., Figure 4-10b).

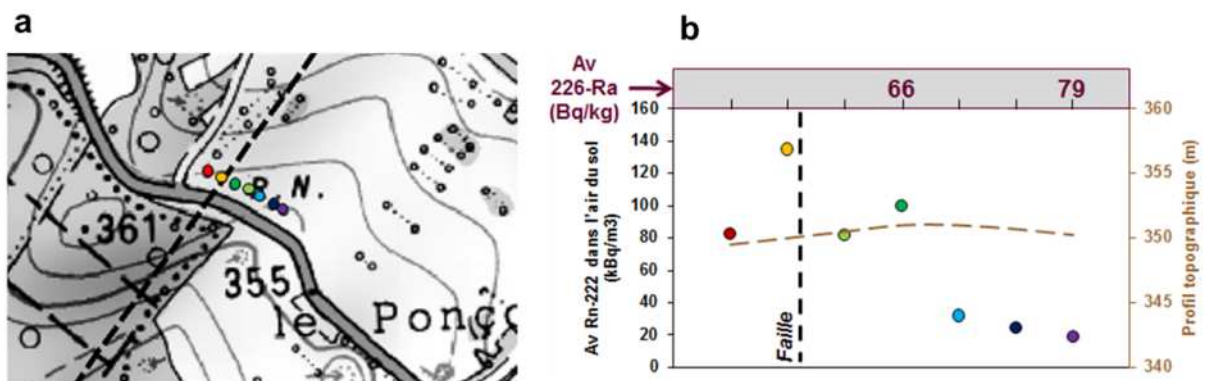


Figure 4-10 – a/ Exemple d'un profil montrant les positions des points de mesure ponctuelle de l'activité volumique de radon dans l'air du sol, de part et d'autre d'une portion de faille sur une topographie de type plateau ; b/ résultats de mesures correspondants.

#### ➤ Mesures en continu de la concentration en radon dans l'air du sol

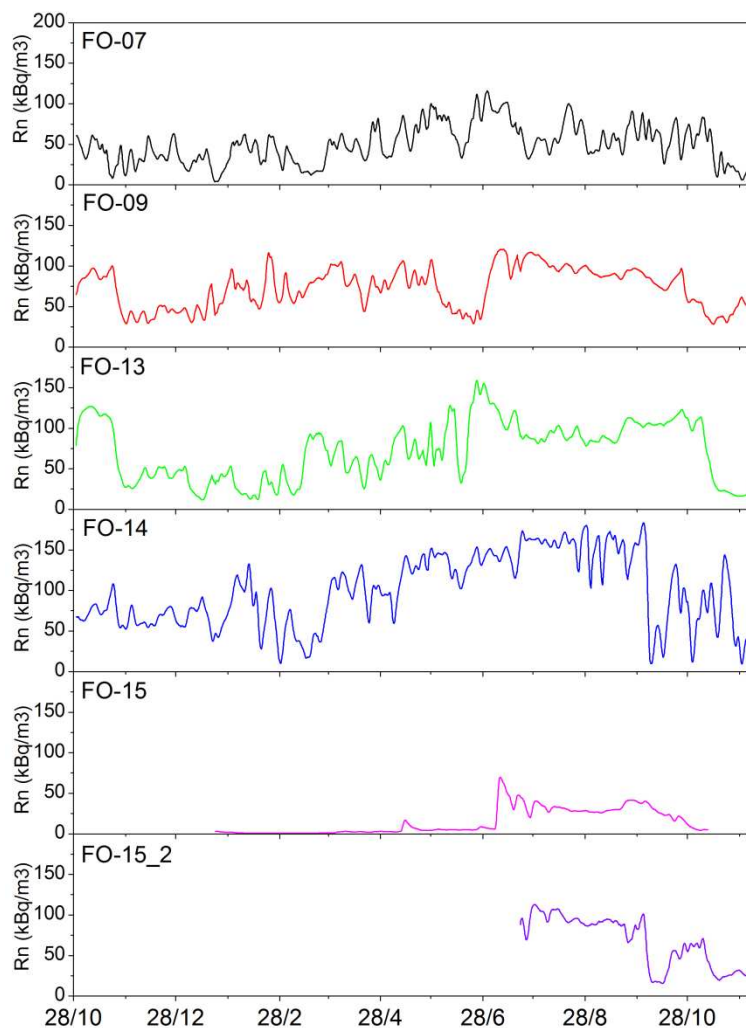
La mesure ponctuelle n'est représentative que de l'instant et du lieu où elle a été réalisée, et ne permet pas d'étudier les phénomènes transitoires de transport du radon en surface. Ainsi, la mesure en continu dans le temps de la concentration en radon dans les sols, associée aux paramètres environnementaux (température, pression atmosphérique et humidité relative), a été réalisée par une sonde de type BMC2 (Barasol Multi Capteurs, Algade), conformément aux exigences de la norme NF ISO 11665-5. Le principe de cette méthode de mesure est décrit dans l'Annexe A.3.

Les sondes BMC2 ont été installées à environ 1 m de profondeur dans le sol sur quatre sites d'intérêt (pâtures) pendant plus de 13 mois, de fin octobre 2015 jusqu'au 7 décembre 2016. Il s'agit des sites FO-07, FO-09, FO-13 et FO-14 (Figure 4-5) localisés en fond de doline. Un site supplémentaire (FO-15) localisé sur une topographie plus plate (Figure 4-5) a été instrumenté de mi-janvier 2016 à début décembre 2016 afin d'avoir une référence localisée en dehors des structures karstiques. Un pas horaire d'acquisition a été fixé pour relever des données enregistrées régulièrement (tous les trimestres).

La Figure 4-11 montre l'évolution des concentrations en radon enregistrées en continu pendant la durée de l'étude en ces différents points. Les concentrations en radon mesurées d'une manière ponctuelle dans l'air du sol sur ces sites (Figure 4-8a) sont largement supérieures aux concentrations en radon moyennes mesurées en continu, mais sont cohérentes avec les maximums observés (mesures ponctuelles réalisées par temps sec et en période estivale, conditions favorables à l'observation de valeurs élevées).

Chacun des cinq sites instrumentés présentent des amplitudes très importantes et des variations très brutales des concentrations en radon. Ainsi, la variation la plus soudaine a été enregistrée au début du mois d'octobre 2016 au niveau de FO-14 avec un passage d'une activité volumique de 183 kBq/m<sup>3</sup> à moins de 10 kBq/m<sup>3</sup> en moins de 5 jours.





**Figure 4-11 – Mesures en continu de l'activité volumique de radon dans l'air du sol enregistrée du 28 octobre 2015 au 7 décembre 2016 par les cinq sondes BMC2 mises en place sur le secteur d'étude (valeurs lissées avec une moyenne flottante de 48h).**

#### ➤ Mesure ponctuelle de flux surfacique d'exhalation

Des mesures ponctuelles du flux surfacique d'exhalation du radon ont été réalisées au niveau de chaque emplacement de sonde BMC2 aux points FO-07 ; FO-09 ; FO-13 ; FO-14 et FO-15, ainsi que sur les sites FO-01, FO-16, FO-25 et FO-26. Ces points se situent principalement en fond de doline sur la zone d'étude (Figure 4-5). La méthode de mesure utilisée est la méthode dite « d'accumulation » décrite dans la norme NF EN ISO 11665-7 (Annexe A.4). Il s'agit de la même méthode utilisée pour la mesure de flux du radon dans le jardin de la propriété de Mr. et Mme Jusiak étudiée au § 3.2 (Figure 3-1).

Ces mesures ont été réalisées entre le 19 et le 21 juillet 2016, en période sèche favorisant le phénomène d'exhalation. Au moins deux mesures ont été réalisées par site. Une troisième mesure a été réalisée pour FO-14 en raison du fort écart entre les deux premiers résultats obtenus. Les résultats obtenus sont reportés dans la Figure 4-12.

Les flux d'exhalation mesurés présentent une très grande variabilité avec des valeurs comprises entre 5,1 mBq/m<sup>2</sup>/s (FO-01) et 307,8 mBq/m<sup>2</sup>/s (FO-14).



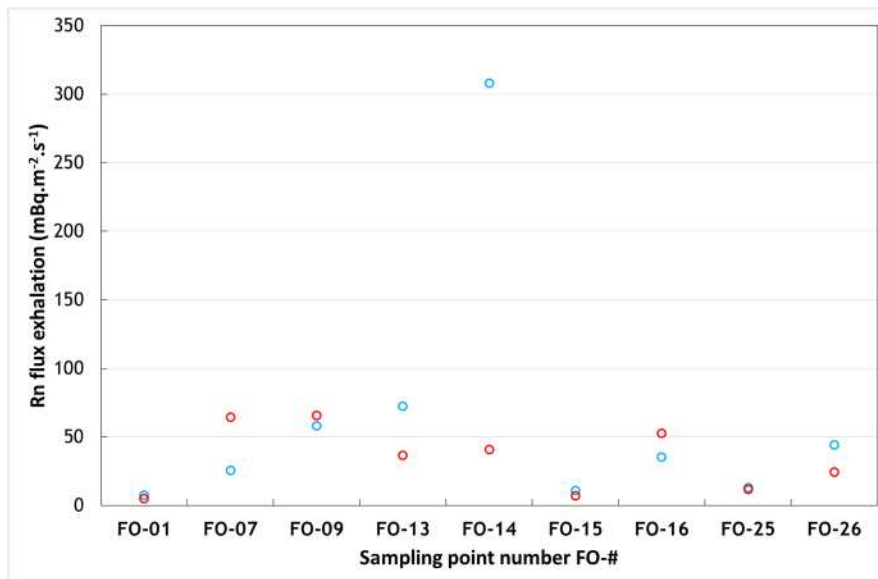


Figure 4-12 – Les deux mesures du flux surfacique d'exhalation du radon en chaque site.

### 4.3.3 Mesures du radon dans les cavités souterraines

Trois grottes différentes ont été choisies dans la zone d'étude (Figure 4-13) afin de mesurer les activités volumiques de radon en différentes positions au sein de leurs cavités. Il s'agit de la grotte d'**En Versenne**, la grotte de **Grosbois** et la grotte de **Fourbanne**.

Dans ce qui suit, seul le protocole expérimental mis en place sur la grotte d'**En Versenne** sera présenté vu l'importance de la longueur de son conduit et son instrumentation qui a permis un suivi du régime transitoire hydraulique et hydrochimique de la nappe souterraine, ainsi que celui de circulation du radon dans le conduit. Ces mesures sont utiles pour des études de corrélations statistiques temporelles entre les différents paramètres, d'une part (cf. § 4.4 qui suit), et pour une modélisation du régime transitoire de transport du radon depuis la cavité vers la surface (cf. § 4.5 ci-après).

Pour les protocoles expérimentaux mis en place (dosimètres DPR2 uniquement) sur les grottes **Grosbois** et **Fourbanne** et l'analyse des mesures de radon au sein de ces deux grottes, se référer au rapport de Ielsch, Saâdi et Bertrand (2016) pour plus de détails.

#### La grotte d'En Versenne

Cette cavité correspond au conduit principal du réseau karstique de Fourbanne, exploré sur plus de 8 km dans la zone non saturée (Figure 4-14, à droite). Elle est accessible grâce à un puits artificiel d'une profondeur de 20 mètres creusé par l'association locale de spéléologie à l'aplomb du village de Fontenotte et permettant d'accéder directement à la rivière souterraine. Entre le début du mois de juillet et la fin du mois d'octobre 2015, 10 dosimètres ont été disposés le long de la partie accessible du réseau d'En Versenne afin de déterminer d'éventuelles variations des activités volumiques de radon. Entre la fin du mois d'octobre 2015 et le début du mois de décembre 2016, deux points (EV-1 et EV-2) dans la cavité, distants d'environ 500 mètres, ont été instrumentés (pose de deux dosimètres par point).

En complément, afin de caractériser plus finement l'évolution temporelle de l'activité volumique du radon dans la cavité d'En Versenne, des mesures en continu de l'activité volumique du radon ont été réalisées au moyen de deux sondes de type BMC2 (Figure 4-14 à gauche), au même endroit que les dosimètres de type DPR2 (i.e., EV-1 et EV-2). Les données ont été relevées et les piles ont été changées régulièrement au cours de l'année (tous les 3 à 6 mois). La première (EV-1) a été installée au niveau de la station n°4, et la seconde (EV-2) au niveau de la station n° 11 sur un emplacement plus en aval et n'ayant pas fait l'objet de mesure intégrée préalable.

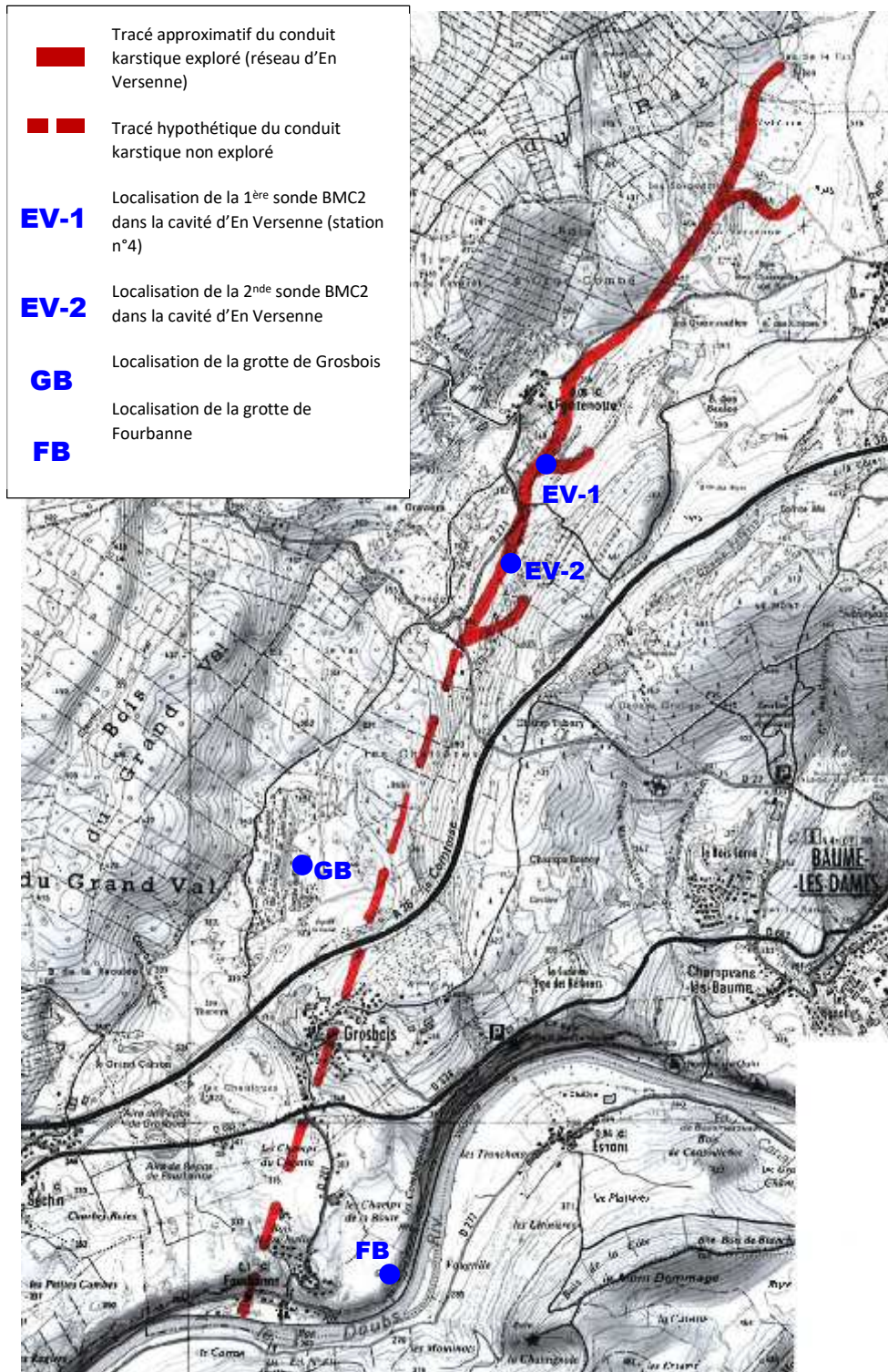


Figure 4-13 – Localisation des cavités instrumentées dans le cadre de cette étude (FB : grotte de Fourbanne ; GB : grotte de Grosbois ; en rouge, tracé de la cavité d'En Versenne).

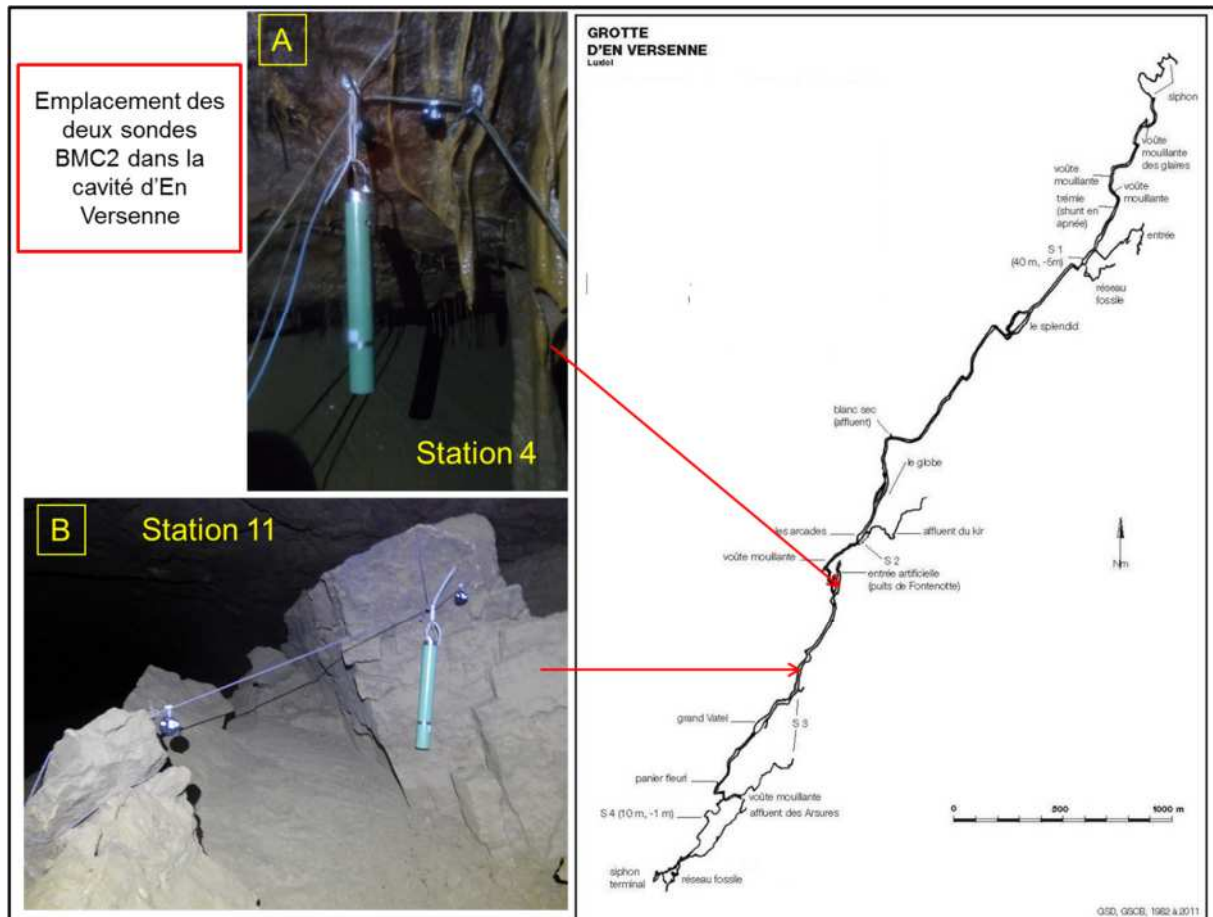


Figure 4-14 – A droite : tronçon de la cavité d'En Versenne ; A gauche : localisation des deux sondes BMC2 et des dosimètres DPR2 associés, installées entre octobre 2015 et décembre 2016 dans la salle de Fontenotte de la cavité.

Les résultats des mesures intégrées de l'activité volumique de radon effectuées dans la cavité d'En Versenne entre le 1<sup>er</sup> juillet et le 28 octobre 2015 (soit avant la mise en place des sondes BMC2) indiquent des valeurs élevées comprises entre  $4\,601 \pm 1\,585 \text{ Bq/m}^3$  et  $6\,030 \pm 2\,158 \text{ Bq/m}^3$ . Leur moyenne, de  $5\,272 \text{ Bq/m}^3$ , recoupe l'incertitude de chacune des 10 valeurs (Figure 4-15). Les activités volumiques de radon peuvent donc être considérées comme homogènes dans la cavité pendant cette période.



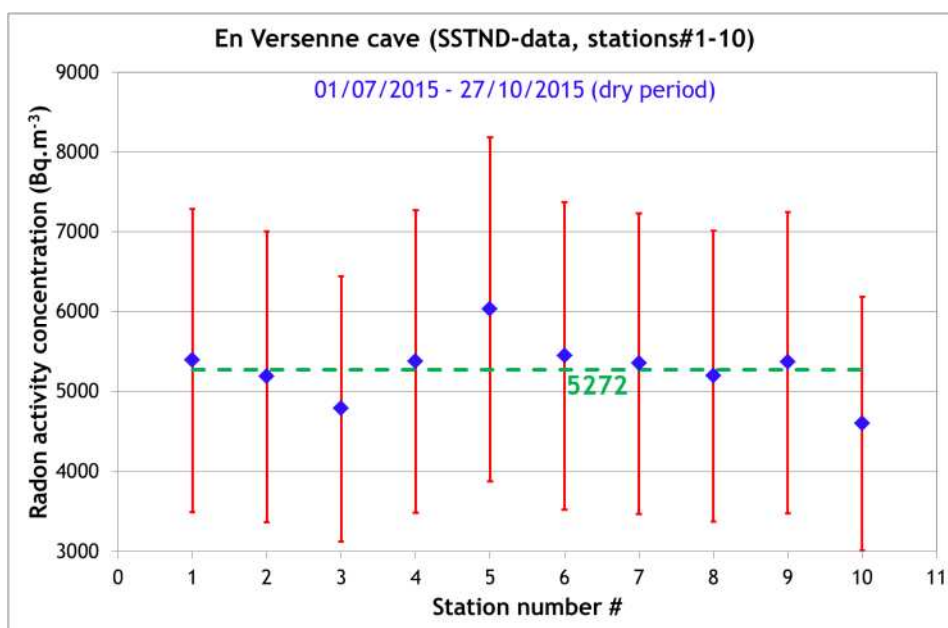


Figure 4-15 – Représentation graphique des activités volumiques moyennes mesurées en différents points de la cavité d'En Versenne entre le 1er juillet et le 24 octobre 2015 (mesures intégrées).

La Figure 4-16 montre l'évolution des activités volumiques du radon mesurées en continu pendant un an aux deux points EV-1 et EV-2. Les activités volumiques minimales et maximales mesurées ainsi que les moyennes confirment que l'activité volumique de radon est relativement homogène dans la cavité : les ordres de grandeur et les variations observées au cours du temps sont presque similaires au niveau des deux stations. Les valeurs minimales sont observées en hiver et les maximales sont observées l'été, de juin à septembre. Les activités volumiques enregistrées en continu pendant cette période estivale étaient cohérentes avec celles issues des mesures intégrées l'année précédente.

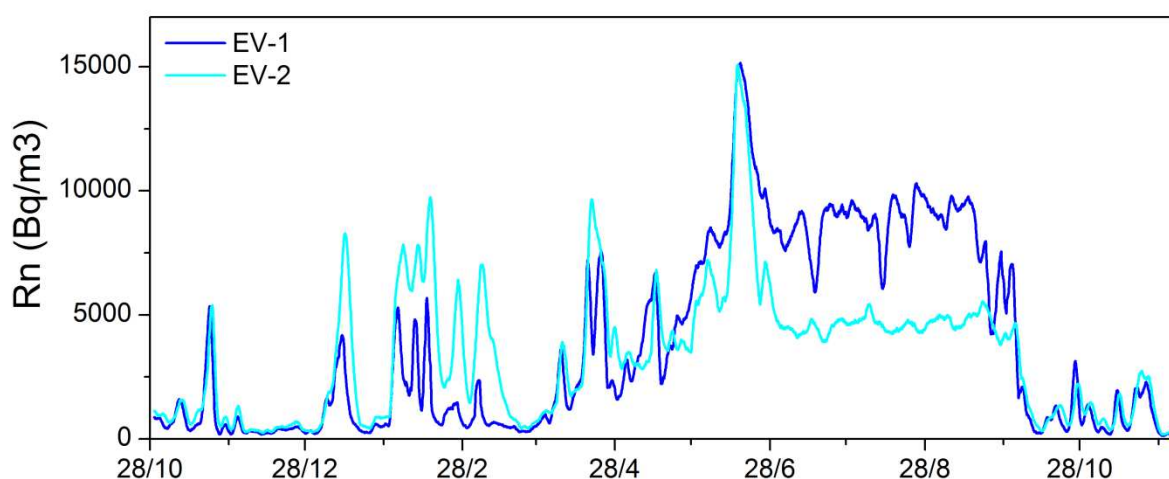


Figure 4-16 – Evolution de l'activité volumique du radon enregistrée du 28 octobre 2015 au 06 décembre 2016 dans la cavité d'En Versenne au niveau des deux stations de mesure (valeurs lissées avec une moyenne flottante de 48 heures).

Les activités massiques du radium-226 et de l'uranium-238 des matériaux constitutifs de la cavité ont été également mesurées. En effet, trois échantillons de **roches calcaires** ont été prélevés : un sur le fond de la rivière souterraine (Galets), et deux sur le flanc des parois de la cavité. L'activité du radium-226 est relativement

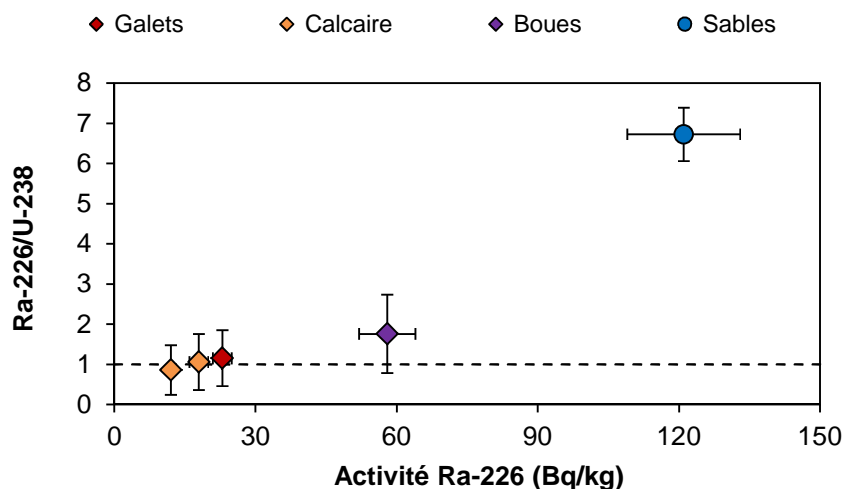
homogène et faible et est en équilibre avec l'activité de l'uranium-238. Ces valeurs correspondent à celles classiquement mesurées dans les roches calcaires.

Des **boues**, issues de la dégradation de calcaires, prélevées sur les rives de la rivière, ainsi du **sable**, apporté par le débouillage de fissures au moment des crues, ramassé en fond de rivière, ont également été analysés pour leur teneur massique en radium-226 et en uranium-238.

La granulométrie, la surface spécifique et la porosité de ces échantillons de sédiments et de roches ont également été mesurées.

#### Relation teneur en $^{226}\text{Ra}$ - concentration en radon dans la cavité d'En Versenne

La Figure 4-17 montre la relation entre l'activité massique du radium-226 et celle de l'uranium-238 pour les différents échantillons de roches prélevés dans la cavité d'En Versenne. Alors que les échantillons de roches calcaires, les galets et les boues présentent un équilibre entre les activités massiques de radium-226 et celles d'uranium-238, l'échantillon de sable analysé présente des teneurs en radium-226 élevées (121 Bq/kg) ainsi qu'un enrichissement relatif important en radium-226 au détriment de l'uranium-238. Le fait que ce sable soit apporté par le débouillage de fissures au moment des crues, il doit essentiellement provenir de matériaux issus de la dégradation du calcaire. Sa concentration en radium-226 confirmerait donc l'existence d'un enrichissement relatif en radionucléides lors de la dissolution des roches carbonatées. Le fort déséquilibre entre l'uranium-238 et le radium-226 pourrait correspondre au mécanisme observé par Von Gunten et al. (1996) dans certains sols karstiques du Jura Suisse. Toutefois, ces prélèvements de sables ayant été effectués au fond de la rivière souterraine, il est également possible que l'appauvrissement en uranium-238, plus mobile que le radium, se soit produit, au moins en partie, après les épisodes de crues et le dépôt du sable au fond de la rivière et non au moment de la dégradation des carbonates.



**Figure 4-17 – Relation entre les activités massiques de radium-226 et d'uranium-238 pour les différents échantillons de roches prélevés dans la cavité d'En Versenne (symbole « rond » : U-238 inférieur à la limite de quantification).**

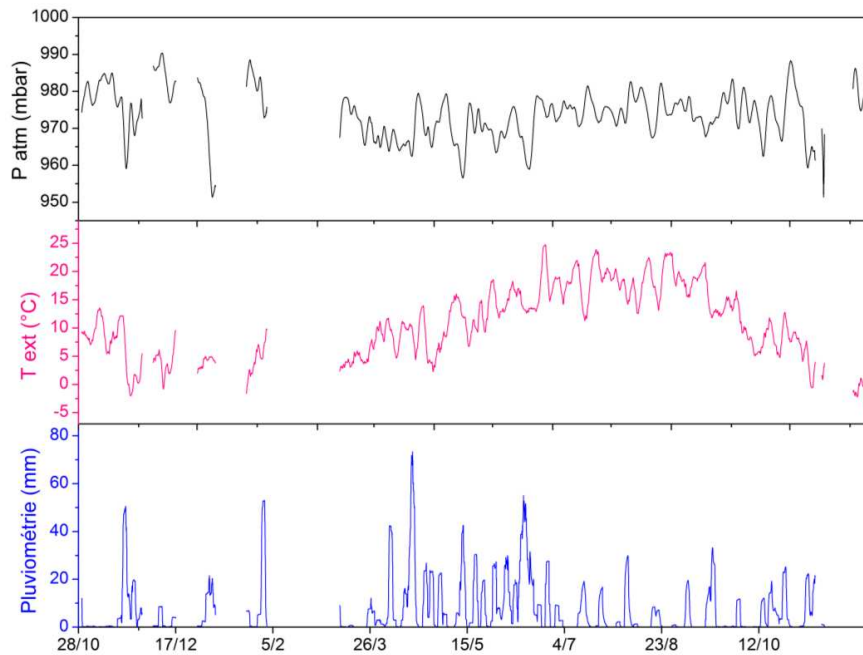
#### 4.3.4 Données météorologiques

Une station météorologique (Campbell BW200) a été installée par l'Université de Franche-Comté à proximité du village de Fontenotte et du site FO-13 (altitude : 380 m). Cette station permet ainsi de mesurer les précipitations directement sur le bassin d'alimentation de la source alimentant le système karstique. En complément des précipitations, la station mesure la température extérieure, la pression atmosphérique ainsi que la force et la direction du vent.

La Figure 4-18 illustre l'évolution de la pression atmosphérique, de la température ainsi que les phénomènes

pluvieux enregistrés par la station météo mise en place. De nombreuses lacunes de données sont observées, particulièrement en période hivernale, entre début novembre et fin février. En effet, la station météo étant alimentée de façon autonome par panneaux solaires, des arrêts surviennent parfois lorsque les journées sont courtes et peu lumineuses (couverture nuageuse potentiellement importante).

Sur les données enregistrées au cours de la durée de l'étude, les températures varient entre  $-4$  et  $25^{\circ}\text{C}$  et la pression varie de 950 mbar à 990 mbar (valeurs moyennées sur 48h). Le maximum de pluviométrie a été de 73 mm de précipitations cumulées sur 48h enregistré autour du 17 avril 2015.



**Figure 4-18 – Evolution de différents paramètres (pression, température et pluviométrie) enregistrés par la station météorologique localisée à proximité du village de Fontenotte entre le 28 octobre 2015 et le 06 décembre 2016 (valeurs lissées avec une moyenne flottante de 48h pour la pression atmosphérique et la température extérieure, valeurs cumulées sur 48h pour la pluviométrie).**

L'enregistrement de la force et de la direction du vent montre que les vents ont été majoritairement d'orientation SE et NW pendant la durée de l'étude, soit perpendiculaires à l'axe du réseau karstique d'En Versenne (Figure 4-13). Les vents les plus forts ont été enregistrés dans la direction SE.

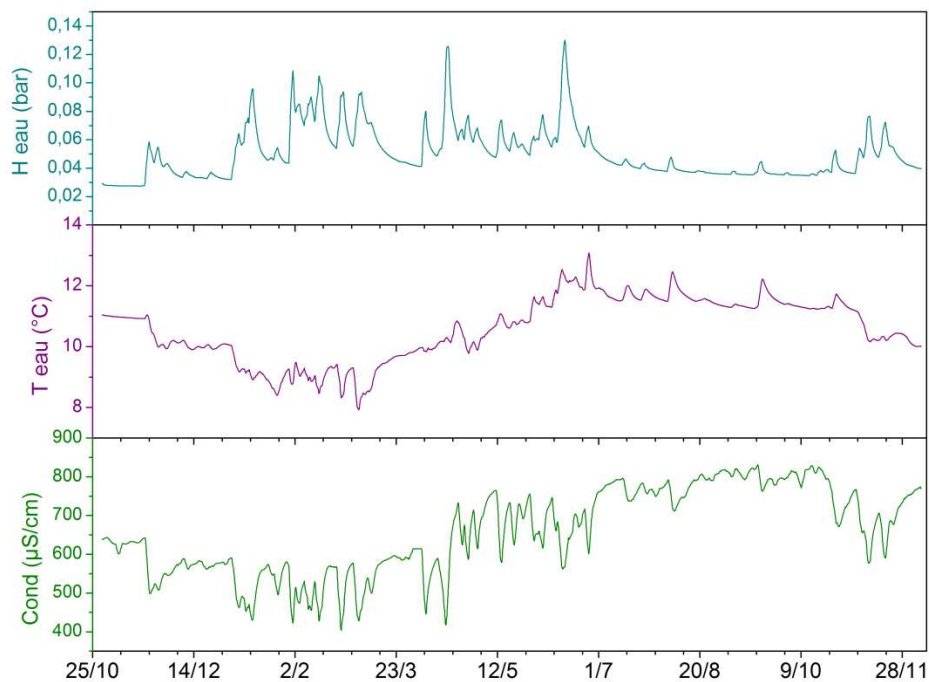
#### 4.3.5 Mesures des propriétés physico-chimiques de l'eau de la rivière souterraine d'En Versenne

Afin de caractériser le comportement de la rivière souterraine du système karstique de Fourbanne, les paramètres suivants sont mesurés par l'université de Franche-Comté : la température de l'eau ; la hauteur d'eau de la rivière ; et la conductivité électrique de l'eau. Ces paramètres sont mesurés en continu depuis décembre 2013 avec un pas d'échantillonnage de 15 minutes. Les modalités de leur acquisition sont détaillées dans la thèse de Cholet (2017).

La Figure 4-19 montre l'évolution de la température, de la conductivité de l'eau et de la hauteur d'eau de la rivière souterraine du réseau karstique d'En Versenne au cours de la durée de l'étude. Ces deux derniers paramètres apparaissent clairement liés : lorsque le niveau augmente dans la rivière, une chute de la conductivité est systématiquement observée.



De plus, des mesures ponctuelles de l'activité volumique de radon dissous ont également été réalisées dans l'eau de la rivière souterraine ainsi qu'au niveau de la source de Fourbanne. Ce dernier point correspond à l'exutoire unique du système karstique de Fourbanne. Ces mesures ont été réalisées à l'aide du système AquaKIT associé à un moniteur AlphaGuard (développé par Saphymo). Ce dernier repose sur l'association en circuit fermé d'un système permettant le dégazage forcé du radon contenu dans l'eau et sa mesure en continu dans l'air par une chambre d'ionisation. Les mesures de l'activité volumique du radon dans l'eau effectuées en octobre 2015 au niveau de la rivière souterraine dans la cavité d'En Versenne indiquent des valeurs très faibles inférieures à la limite de détection du système de mesure égale à 1 Bq/l. Ce résultat a été confirmé par une mesure effectuée à l'exutoire du système. L'eau du réseau karstique constitue donc une source en radon très faible, voire négligeable.



**Figure 4-19 – Evolution de différents paramètres hydrogéochimiques (hauteur d'eau, température et conductivité de l'eau) mesurés dans l'eau de la rivière souterraine du réseau karstique de Fourbanne par l'Université de Franche-Comté entre le 28 octobre 2015 et le 06 décembre 2016 (valeurs lissées avec une moyenne flottante de 48h).**

La Figure 4-20a montre l'évolution de la hauteur d'eau enregistrée dans la cavité d'En Versenne en parallèle avec celle des épisodes de pluviométrie enregistrés par la station météo située à l'aplomb du réseau karstique. Les augmentations du niveau d'eau dans la rivière souterraine apparaissent clairement liées aux épisodes de pluviométrie. Ainsi, comme l'enregistrement des variations de la hauteur d'eau s'est effectué en continu pendant toute la durée de l'étude sans perte de données, ces données peuvent être utilisées en remplacement des données de pluviométries manquantes pendant la période hivernale.

Pour les données de pression et de température dans l'atmosphère extérieure, les lacunes des enregistrements de la station météo pourront être complétées par les données enregistrées par les sondes de type BMC2 installées dans le sol (Figure 4-20b et Figure 4-20c, respectivement).

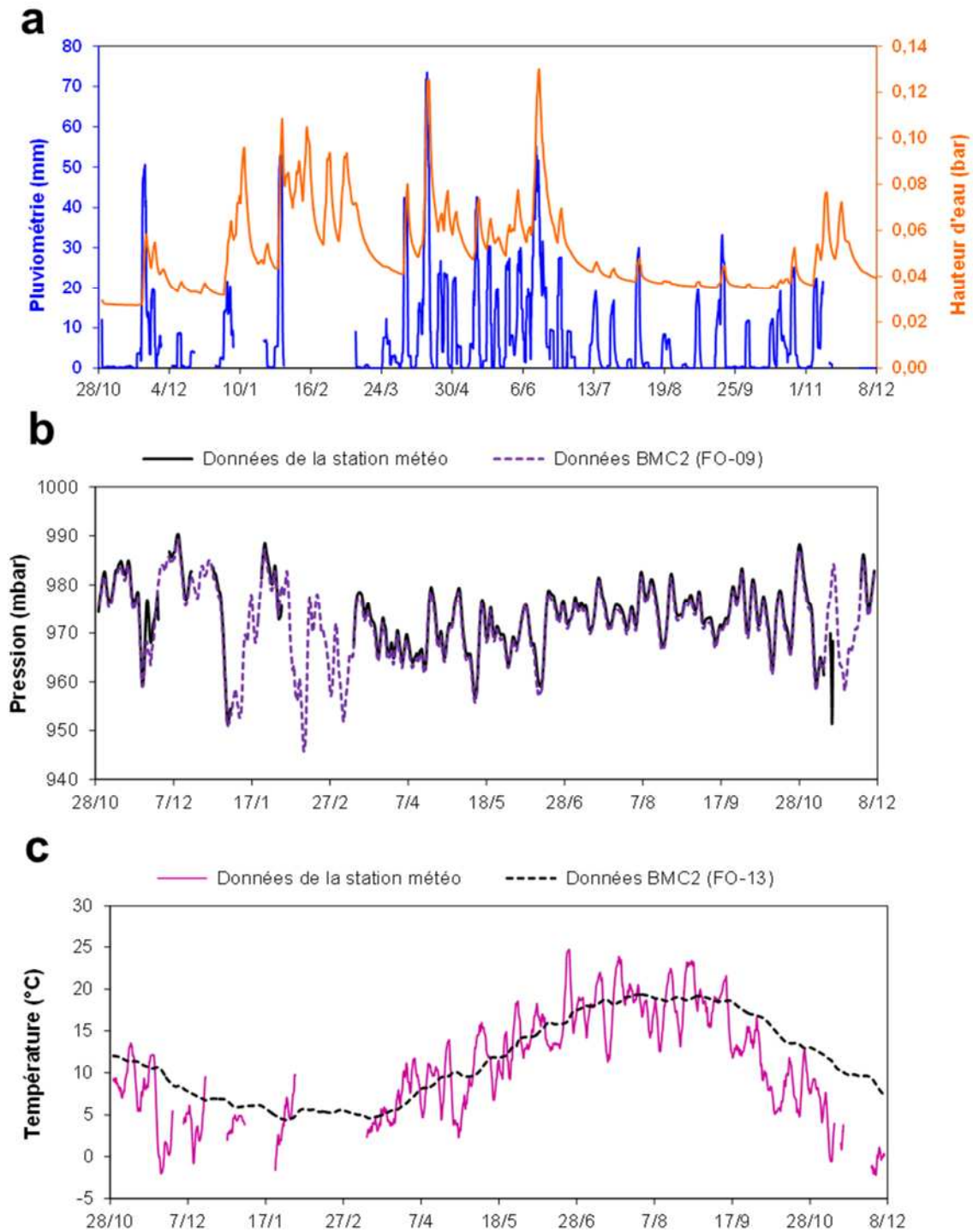


Figure 4-20 – a/ Enregistrements des épisodes de pluviométrie en surface et des variations de hauteur d'eau dans la cavité au cours de la période d'étude ; b/ Comparaison des enregistrements de pression de la station météo avec ceux de la sonde BMC2 mise en place sur le site FO-09 ; c/ Comparaison des enregistrements de température de la station météo avec ceux de la sonde BMC2 mise en place sur le site FO-13.

## 4.4 Traitement statistique des séries de mesures temporelles - étude de corrélations entre paramètres

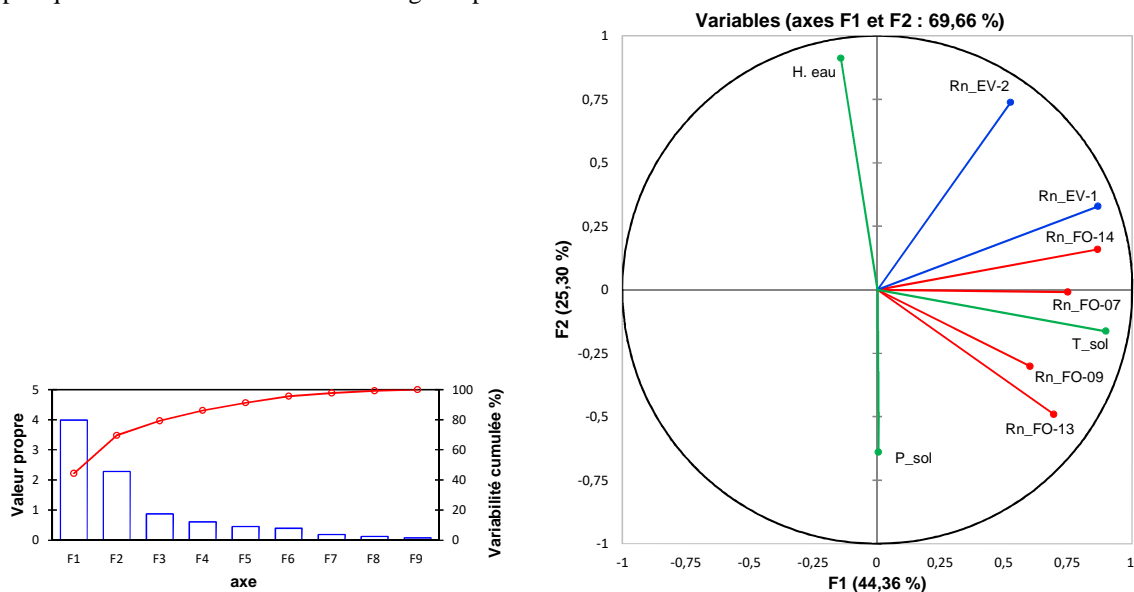
### 4.4.1 Période longue du 28 octobre 2015 au 6 décembre 2016

Pour l'analyse de variations de l'ensemble de la série temporelle disponible sur cette période (13,5 mois), les séries de données ont été lissées avec une moyenne flottante de 48h et la pluviométrie a été cumulée sur 48h. Ce lissage permet de s'affranchir des simples variations journalières pouvant affecter certaines variables (par exemple variations jour/nuit de la température extérieure ou des activités volumiques de radon dans l'air du sol).

#### ➤ Analyse en composante principale (ACP)

La Figure 4-21 présente l'analyse en composante principale (ACP) obtenue avec l'ensemble des données acquises du 28 octobre 2015 au 6 décembre 2016 pour les mesures de l'activité volumique du radon dans la cavité (stations EV-1 et EV-2 ; Figure 4-16) et dans le sol (sites FO-07, FO-09, FO-13 et FO-14 ; Figure 4-11). Les paramètres acquis par la station météorologique n'ont pas pu être utilisés pour ce calcul d'ACP puisqu'ils présentent plusieurs lacunes de données, particulièrement au cours de l'hiver (Figure 4-18). De ce fait, la pression mesurée dans l'air du sol par la sonde BMC2 installée sur le site FO-09 (P\_sol) a été utilisée à la place des données de pression atmosphérique, la température de l'air du sol mesurée par la sonde BMC2 installée sur le site FO-13 (T\_sol) a été utilisée à la place des données de température extérieure et la variation de la hauteur d'eau dans la cavité d'En Versenne (H. eau) a été utilisée à la place des données de pluviométrie (cf. § 4.3.4).

Seuls les deux premiers axes ont été retenus pour décrire cette série de données car ils expliquent à eux seuls presque 70% de l'inertie totale du nuage de points.



Cette ACP conduit à différentes observations :

- Toutes les variables sont bien représentées ;
- L'ensemble des données d'activité volumique du radon, aussi bien mesurées dans l'air du sol que dans la cavité, sont observées sur la même portion du cercle de corrélations et dans une position proche sur l'axe principal F1. Toutes ces données suivent donc la même tendance globale sur l'ensemble de l'année. Des trois paramètres environnementaux inclus dans cette ACP, la température est le seul dont les variations

se corréler aux variations de radon. Ainsi, il semblerait que les concentrations en radon, aussi bien dans la cavité que dans l'air du sol, suivent des variations annuelles liées aux variations de température ;

- Les variations des activités volumiques de radon dans l'air du sol semblent être moins dépendantes des variations de la pression atmosphérique ;
- Les variations enregistrées dans la cavité semblent en partie anti-corrélées aux variations de la pression atmosphérique ;
- Les variations enregistrées dans la cavité sur la station EV-2 semblent en partie corrélées aux variations de la hauteur d'eau de la rivière souterraine.

#### ➤ Analyse des données de radon mesurées dans la cavité d'En Versenne

La Figure 4-22 montre l'évolution des concentrations en radon dans la cavité d'En Versenne ainsi que celle des températures enregistrées en surface et dans la cavité. Les activités volumiques du radon obtenues dans la cavité montrent d'importantes variations saisonnières avec des valeurs significativement plus élevées en période estivale qu'en période hivernale. Ces variations se corréler bien avec la différence entre la température extérieure et celle relevée à l'intérieur de la cavité, ce qui confirme une partie des déductions réalisées par l'analyse en composante principale. Ce phénomène a déjà été observé dans de nombreuses cavités relativement bien connectées à l'atmosphère (Przylibski, 1999 ; Friend et Gooding, 2002 ; Hakl et al, 1997 ; Vaupotic, 2008) et le mécanisme explicatif est bien connu. En effet, la température relevée à l'intérieur de la cavité étant relativement stable tout au long de l'année ( $10,1 \pm 0,8^\circ\text{C}$  pour la cavité d'En Versenne), en **période hivernale**, l'air est plus chaud dans la cavité qu'à l'extérieur. Cette différence de température entraîne un flux d'air de l'extérieur vers la cavité et une dilution des concentrations de radon dans la cavité. En **période estivale**, la température extérieure est supérieure à celle dans la cavité. Il n'y a alors pas de flux d'air de l'extérieur vers la cavité ce qui explique alors les concentrations élevées en radon.

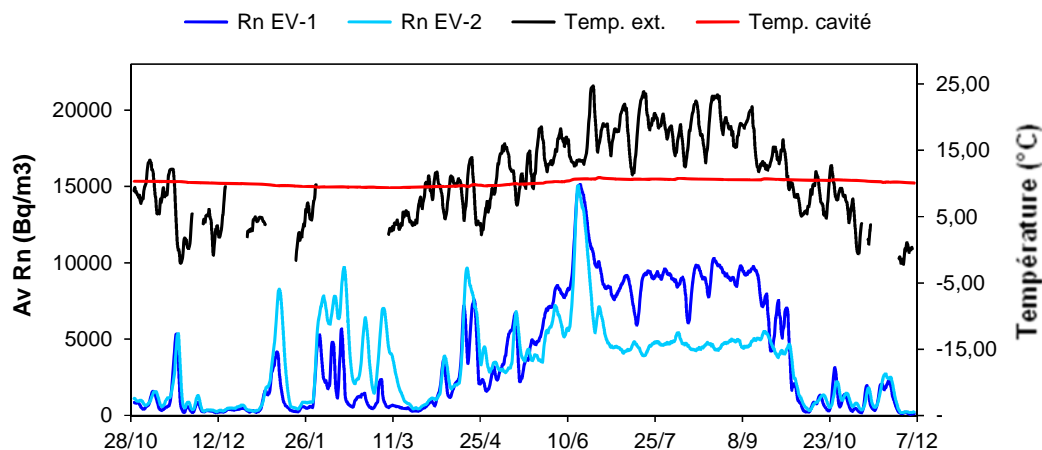
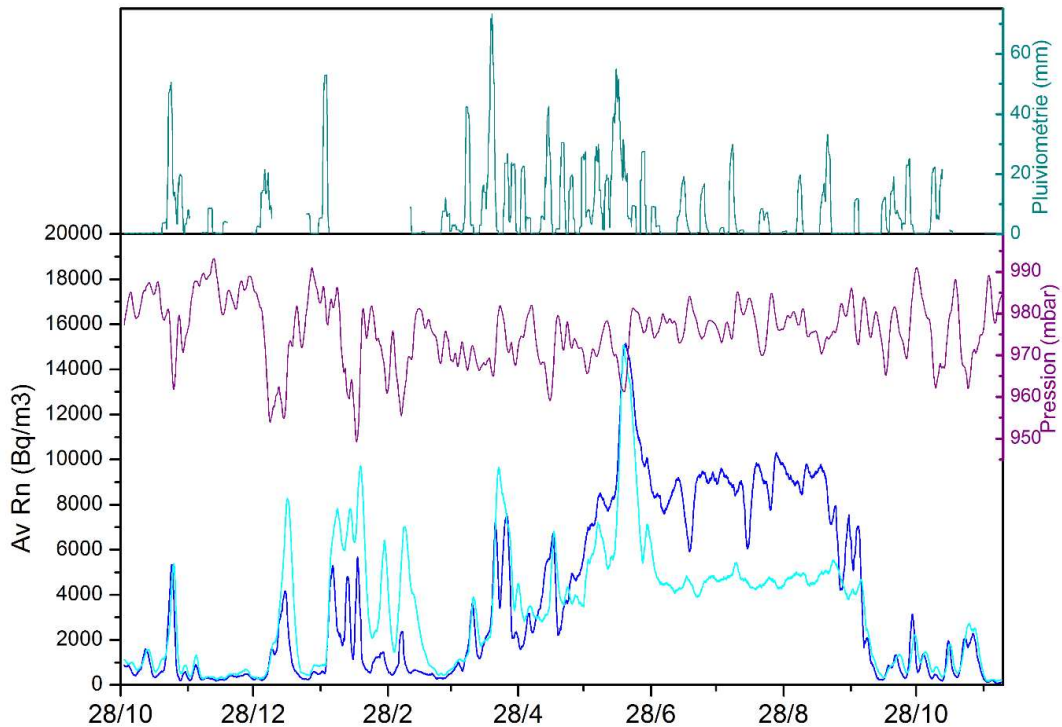


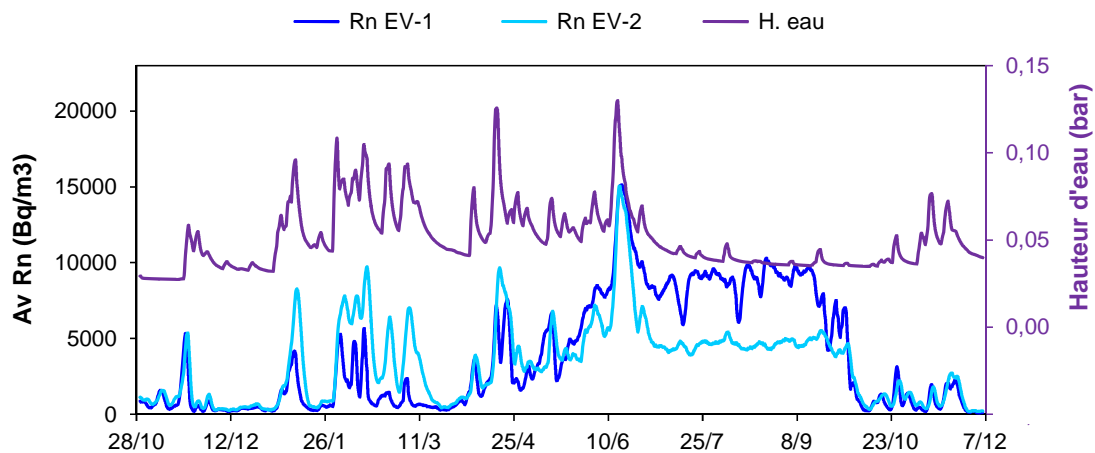
Figure 4-22 – Evolution des concentrations en radon mesurées dans la cavité d'En Versenne ainsi que des températures enregistrées dans la cavité et en surface du 28 octobre 2015 au 7 décembre 2016 (valeurs lissées avec une moyenne flottante de 48h).

La chronique des activités volumiques du radon dans la cavité montre de nombreux pics de courte durée qui se superposent aux variations de grande amplitude liées aux fluctuations saisonnières de la température extérieure. La comparaison avec les données de pression atmosphérique et de pluviométrie (Figure 4-23) révèle que les pics de radon enregistrés dans la cavité se produisent généralement simultanément à des chutes de pression et à des épisodes pluvieux. Ainsi, les variations des activités volumiques de radon enregistrées dans la cavité semblent bien en partie anti-corrélées aux variations de la pression atmosphérique, conformément aux observations réalisées sur la base du calcul d'ACP.



**Figure 4-23 – Evolutions temporelles des activités volumiques du radon dans la cavité, comparées aux fluctuations de la pression atmosphérique et aux épisodes pluvieux (valeurs lissées avec une moyenne flottante de 48h pour le radon et la pression, cumulées sur 48h pour la pluviométrie).**

Le calcul de l'ACP indique l'existence d'une corrélation entre les concentrations enregistrées sur le site EV-2 et les variations de la hauteur d'eau dans la cavité souterraine. La Figure 4-24 montre l'évolution de ces deux paramètres ainsi que les concentrations enregistrées sur le site EV-1. Une corrélation forte est effectivement observée entre les pics de radon enregistrés sur le site EV-2 et les variations de la hauteur d'eau de la rivière souterraine, particulièrement de janvier à juillet 2016. Les corrélations entre EV-1 et les variations de la hauteur d'eau dans la cavité sont également observées mais moins marquées. Ainsi, bien que les grandes tendances soient les mêmes pour les deux sites instrumentés dans la cavité, il semblerait que la cavité d'En Versenne ne réponde pas de façon totalement homogène aux variations environnementales.



**Figure 4-24 – Evolution des concentrations en radon mesurées dans la cavité d'En Versenne et des variations de la hauteur d'eau de la rivière souterraine du 28 oct. 2015 au 7 déc. 2016 (valeurs lissées par une moyenne flottante de 48h).**

La variation des concentrations en radon mesurées dans la cavité en fonction de la force et de la direction du vent en surface n'a montré aucun effet du vent sur les niveaux de radon. Durant cette période, les vents étaient essentiellement d'orientation NW-SE sur le secteur de Fourbanne alors que l'axe de la cavité d'En Versenne est NNE-SSW (Figure 4-13). De ce fait, ils ne semblent pas avoir eu d'effet significatif sur les concentrations en radon mesurées dans la cavité d'En Versenne.

#### ➤ Analyse des données de radon mesurées dans le sol

Les activités volumiques du radon dans l'air du sol peuvent varier en fonction de nombreux paramètres comme par exemple les variations de pression atmosphérique, de température ou d'humidité. Les variations enregistrées peuvent être très différentes selon les environnements et les climats et des valeurs maximales sont parfois observées en période estivale ou hivernale (e.g., Perrier et al., 2009).

En moyennant les mesures en continu de l'activité volumique du radon dans l'air du sol réalisées sur les sites FO-07, FO-09, FO-13 et FO-14 du 28 octobre 2015 au 06 décembre 2016 (Figure 4-11 et Figure 4-25), il apparaît que les concentrations en radon dans l'air du sol sont plus élevées en été qu'en hiver sur le secteur de Fourbanne. Ainsi, les concentrations moyennes en radon dans l'air du sol sont environ de 50 kBq/m<sup>3</sup> en hiver (minimum enregistré en décembre-janvier) et de plus de 100 kBq/m<sup>3</sup> l'été (maximum enregistré en juillet-août).

La Figure 4-25 compare l'évolution des activités volumiques du radon dans l'air du sol moyennée pour les quatre sites instrumentés sur l'ensemble de la durée de l'étude (FO-07, FO-09, FO-13 et FO-14) et l'évolution de la température extérieure sur la même période. La corrélation mise en évidence par le calcul d'ACP est également observée dans les séries temporelles, les concentrations en radon du sol évoluent globalement avec la température. Toutefois, ces observations ne permettent pas de conclure que les variations long-termes des activités volumiques de radon dans l'air du sol sont causées par les variations de température. Elles peuvent être liées à d'autres facteurs environnementaux qui se superposent aux variations de température (par exemple, fluctuations de la teneur en eau du sol ou de la pression atmosphérique).

De plus, cette évolution à long terme est bruitée par de très nombreuses fluctuations à court terme, difficiles à corrélérer à première vue aux paramètres environnementaux disponibles. Pour cela, des analyses de périodes d'intérêt plus courtes, d'une durée de quelques semaines, sont nécessaires.

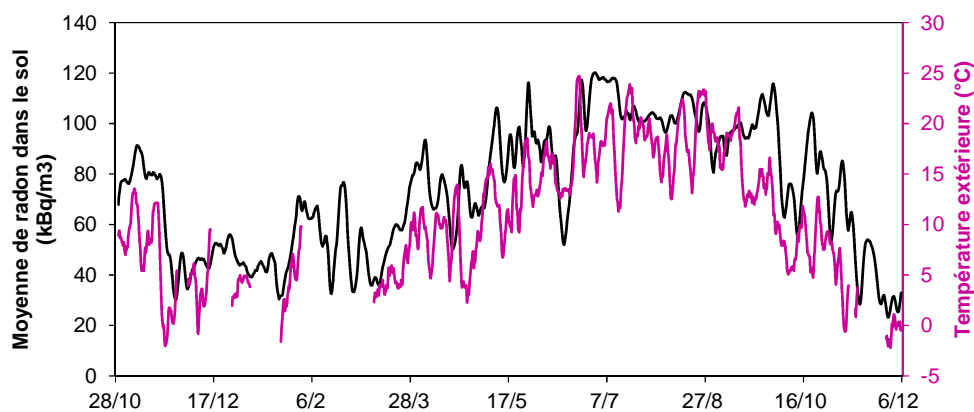


Figure 4-25 – Evolution des activités volumiques du radon dans l'air du sol des différents sites (FO-07, FO-09, FO-13 et FO-14) moyennées et comparée à l'évolution de la température sur l'ensemble de la période d'étude (du 28/10/15 au 06/12/16).



#### 4.4.2 Période courte d'intérêt du 20 avril au 25 mai 2016

Pour l'analyse de cette période d'intérêt plus courte (1 mois et 5 jours), les séries de données ont été lissées avec une moyenne flottante de 12h et la pluviométrie a été cumulée sur une période de 12h.

##### ➤ Analyse en composante principale (ACP)

La Figure 4-26 présente l'ACP obtenue avec les données acquises entre le 20 avril et le 25 mai 2016 sur l'activité volumique du radon dans la cavité (stations EV-1 et EV-2 ; Figure 4-16) et dans le sol (sites FO-07, FO-09, FO-13 et FO-14 ; Figure 4-11). Pour la température, la pression atmosphérique et la pluviométrie, les données acquises par la station météo ont pu être directement utilisées car disponibles en continu sur cette période. La variation de la hauteur d'eau dans la rivière souterraine a également été prise en compte pour ce calcul d'ACP.

Seuls les deux premiers axes ont été retenus pour décrire cette série de données. Ils expliquent à eux seuls presque 65% de l'inertie totale du nuage de points.

Différentes observations peuvent être réalisées sur la base de cette ACP :

- L'ensemble des données d'activité volumique de radon mesurées dans l'air du sol sont sur la même portion du cercle de corrélations. Les variables sont toutefois plus dispersées que dans le calcul d'ACP réalisé avec l'ensemble des données annuelles (Figure 4-21).
- Les activités volumiques de radon mesurées dans l'air du sol sont corrélées aux variations de température et anti-corrélées aux variations de pression atmosphérique.
- Les activités volumiques de radon enregistrées dans la cavité sont peu corrélées sur l'axe F1 et relativement corrélées sur l'axe F2. Les données mesurées sur le site EV-1 semblent être corrélées avec les données de radon mesurées dans l'air du sol (corrélation en particulier avec FO-07) alors que les données mesurées sur le site EV-2 semblent plutôt corrélées avec les variations de la hauteur d'eau dans la rivière souterraine.

##### ➤ Analyse des données de radon mesurées dans le sol et la cavité

La Figure 4-27 présente l'évolution des activités volumiques du radon enregistrées dans le sol (sur les sites FO-07 et FO-09), dans la cavité (sur la station EV-2) ainsi que l'évolution de la pression atmosphérique, de la pluviométrie et de la hauteur d'eau de la rivière souterraine entre le 20 avril et le 25 mai 2016.

Les pics de radon enregistrés dans l'air du sol apparaissent effectivement bien anti-corrélés aux variations de la pression atmosphérique. Ils semblent se corrélérer également aux démarrages des épisodes pluvieux bien que cette corrélation n'ait pas été mise en évidence par le calcul d'ACP. Sur la base de ces seules observations, le mécanisme expliquant ces variations de radon dans l'air du sol est donc difficile à déterminer. Toutefois, l'allure des courbes des activités volumiques de radon dans l'air du sol semblerait plutôt indiquer des augmentations progressives de radon en périodes sèches suivies de brusques chutes de radon lors des épisodes pluvieux.

Concernant les données acquises dans la cavité, les pics de radon mesurés sur la station EV-2 apparaissent bien corrélés aux variations de la hauteur d'eau dans la rivière souterraine, elles même liées à la survenue d'épisodes pluvieux.

Ainsi, l'analyse des données enregistrées entre le 20 avril et le 25 mai 2016 indiquerait donc un effet prépondérant des épisodes pluvieux qui entraîneraient des pics de radon dans la cavité et des chutes de radon dans l'air du sol.

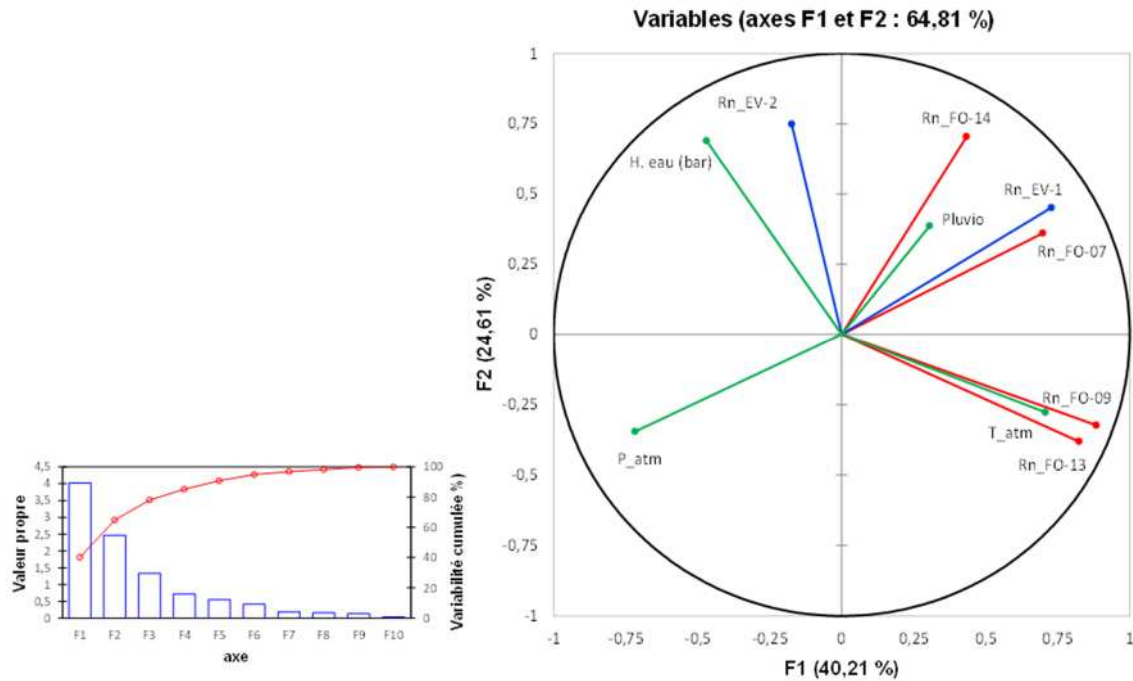


Figure 4-26 – ACP appliquée aux activités volumiques de radon mesurées en continu dans le sol et dans la cavité du 20 avril au 25 mai 2016 et au suivi de la température extérieure ( $T_{atm}$ ), de la pression ( $P_{atm}$ ), de la pluviométrie (Pluvio) et de la hauteur d'eau dans la rivière souterraine d'En Versenne (H. eau).

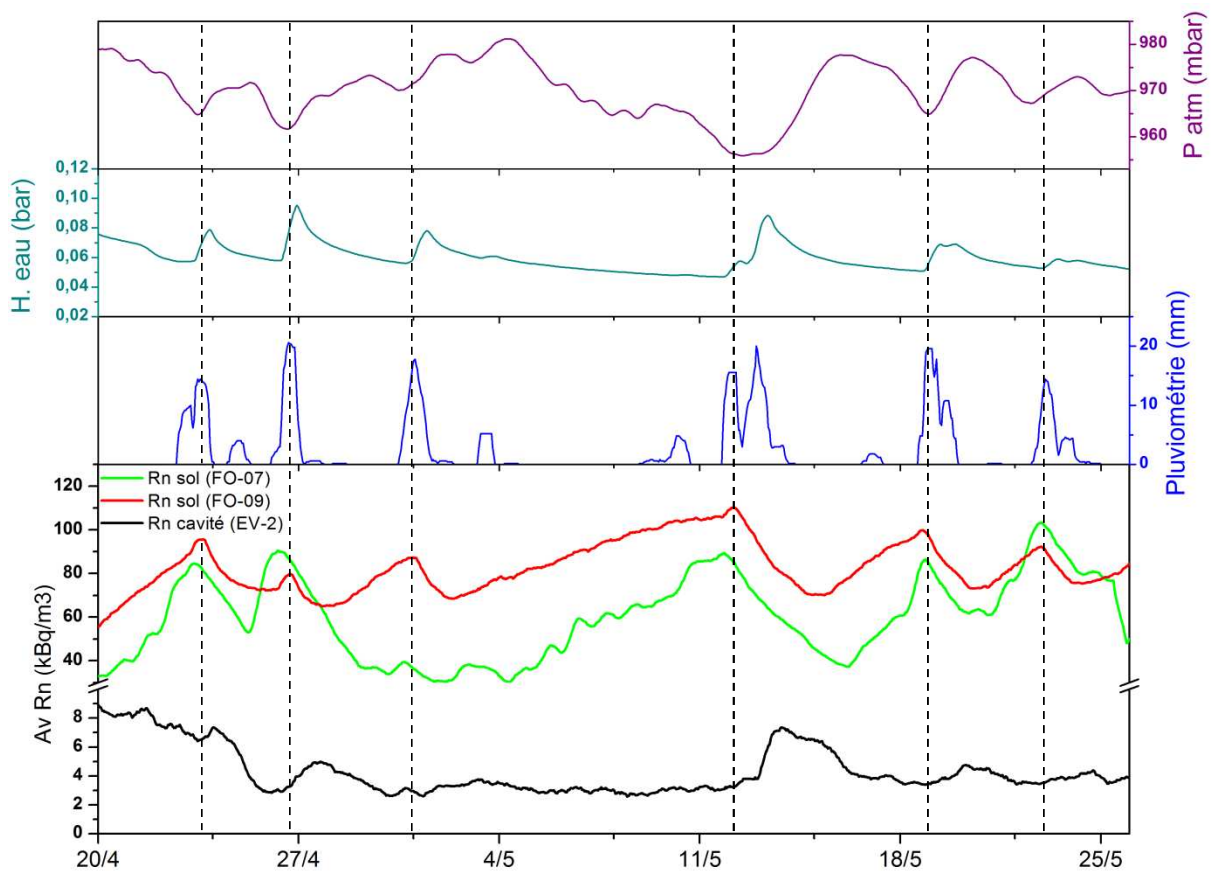


Figure 4-27 – Evolution de différents paramètres (pression atmosphérique, pluviométrie, activité volumique mesurée dans la cavité sur le site EV-2 et dans l'air du sol sur les sites FO-07 et FO-09) entre le 20 avril et le 25 mai 2016.

D'autres périodes courtes d'intérêt ont également été étudiées mais non détaillées ici, correspondent à :

- i) **La période du 1<sup>er</sup> juin au 1<sup>er</sup> juillet 2016**, sélectionnée en raison d'un évènement particulier observé autour du 15 juin où une hausse brutale des activités volumiques de radon est observée dans la cavité (Figure 4-16) et, simultanément, une chute des activités volumiques de radon dans l'air du sol survient sur les sites FO-07, FO-09, FO-13 et FO14 (Figure 4-11). Cet évènement correspond à un épisode météorologique particulier marqué par une chute de la pression atmosphérique et de fortes pluies. Durant cette période, il a été observé que la chute de radon dans le sol est corrélée à la baisse de la pression atmosphérique, contrairement à ce qui a été observé sur la période d'intérêt du 20 avril au 25 mai 2016. Ces observations ne permettent pas de déterminer simplement le mécanisme déclenchant la chute de radon dans le sol et la hausse de radon dans la cavité ainsi que de déterminer si ces deux évènements simultanés sont effectivement liés ;
- ii) **La période du 1<sup>er</sup> juillet au 15 septembre 2016**, marquée par l'absence d'épisodes pluviométriques importants et des concentrations en radon élevées et relativement stables dans la cavité (Figure 4-16). Pendant cette période, plusieurs chutes des concentrations en radon ont été observées dans la cavité (station EV-1 mais pas EV-2), elles semblaient être corrélées avec des hausses de la pression atmosphérique. De même, les variations de radon dans l'air du sol durant cette période sèche sur les sites FO-09 et FO-13 semblaient être anti-corrélées et liées aux variations de la pression atmosphérique. En revanche, ces observations confirment que des mécanismes, autres que la pluviométrie, ont un impact sur les activités volumiques de radon et que ces mécanismes agissent différemment d'un site à un autre, y compris sur un secteur d'étude peu étendu.

#### 4.4.3 Conclusion

L'étude des séries temporelles des activités volumiques de radon enregistrées dans le sol et dans la cavité montrent l'existence de variations saisonnières avec des niveaux supérieurs en été par rapport à ceux mesurés en hiver auxquelles se superposent des variations de plus courte durée caractérisées par des chutes ou des pics des concentrations en radon.

Dans la cavité, les variations saisonnières sont liées à la différence de température avec la surface qui entraîne un flux d'air et une dilution des activités volumiques de radon en hiver. Les nombreux pics de radon se corrélaient avec les chutes de pression ainsi qu'avec les épisodes pluvieux et les augmentations de hauteur d'eau dans la rivière souterraine.

Les fluctuations des activités volumiques de radon dans l'air du sol apparaissent beaucoup plus complexes. Toutefois, à différentes périodes, des chutes des activités volumiques de radon dans l'air du sol ont été observées suite à la survenue d'épisodes pluvieux importants ce qui indiquerait un rôle prépondérant de la teneur en eau du sol dans les variations de activités volumiques de radon dans l'air du sol.

## 4.5 Modèle de transport du radon en milieu karstique

Le traitement des données expérimentales a permis de définir différents scénarios pouvant expliquer l'ampleur des fluctuations de concentrations en radon. Ces scénarios vont être testés numériquement dans cette partie, en utilisant le code de calcul T2Rn (cf. § 1.4). Le système à modéliser est présenté dans la Figure 4-28, le but de cette modélisation est de comprendre l'effet du système karstique sur les niveaux de radon observés dans les sols et donc de répondre aux questions suivantes :

- Quels sont les facteurs influençant les niveaux de radon dans le sol ?
- Existe-il un transfert entre la cavité et le sol ?
- Quel est l'impact des dolines et de la fracturation ?

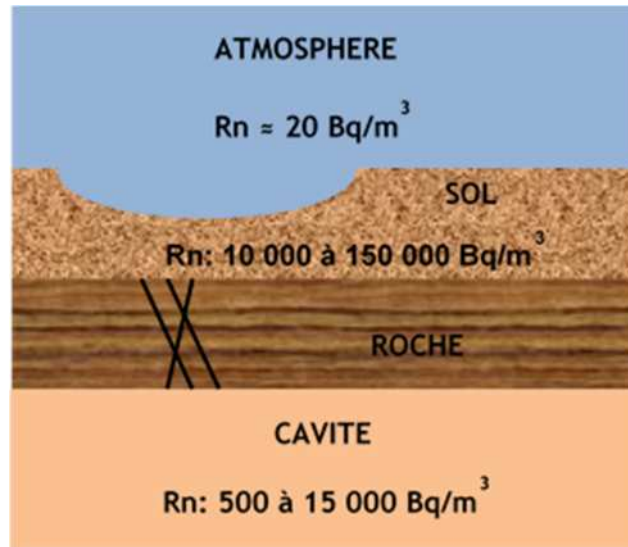


Figure 4-28 – Représentation schématique du domaine à modéliser.

Des structures constituées d'une partie poreuse (écoulement diphasique liquide-gaz) et d'une région libre (principalement écoulement gazeux mais éventuel écoulement diphasique liquide-gaz lors de remontée de la nappe dans les cavités) adjacente présentent un intérêt particulier dans de nombreux domaines d'application. Cependant, la modélisation du couplage à l'interface entre ces deux milieux a fait l'objet d'importantes recherches au cours des dernières années.

Parmi les différentes approches utilisées et référencées dans la littérature, on peut citer les deux suivantes :

- **Approche mono-domaine** : elle consiste à utiliser une seule équation qui est celle de Brinkman (1947) dans tout le domaine de calcul quel que soit le type du milieu. Cette équation est essentiellement une superposition de la loi de Darcy et de l'équation de Stokes. Elle a également été dérivée lors d'une étude ultérieure en utilisant la méthode de la moyenne volumique (Ochoa-Tapia et Whitaker 1995a,b). La transition d'un milieu à l'autre est réalisée, soit par une mince zone de transition au niveau de l'interface, soit en considérant un saut discontinu des valeurs des propriétés du sol comme la perméabilité et la porosité à travers une interface. En raison de l'utilisation d'un même ensemble d'équations dans les deux sous-domaines, la continuité de la vitesse et de la contrainte de cisaillement à la traversée de l'interface est automatiquement satisfaite. Ainsi, un concept de couplage spécial à l'interface n'est pas nécessaire. L'approche à un seul domaine a été analysée et appliquée par de nombreux auteurs pour des systèmes monophasiques (Shavit, 2009) et pour des problèmes d'échange de chaleur (Somerton et al., 1974).
- **Approche à deux domaines** : elle considère deux domaines modélisés avec différents ensembles d'équations distinctes et séparées par une interface décrite comme une surface de discontinuité. En milieu poreux, le flux est habituellement modélisé en utilisant la loi de Darcy pour la vitesse d'écoulement, alors que les équations de Navier-Stokes sont utilisées en milieu libre. Le couplage des deux milieux repose sur l'hypothèse d'un équilibre thermodynamique local à l'interface des deux domaines. De plus, la condition de saut de vitesse de Beavers-Joseph (Beavers et Joseph, 1967), établie semi-empiriquement, est souvent utilisée pour assurer une connexion entre la vitesse tangentielle d'écoulement libre, la contrainte de cisaillement à l'interface et la vitesse d'infiltration dans le milieu poreux. Cette approche a été appliquée par plusieurs chercheurs (Mosthaf et al., 2011 ; Baber et al., 2012).

En résumé, ces deux approches soulèvent des difficultés. Le défi de l'approche mono-domaine est la quantification

correcte de l'épaisseur de la zone de transition et le choix des fonctions permettant le calcul de paramètres dans cette zone, comme la viscosité effective, la porosité et la perméabilité (Goyeau et al., 2003 ; Rosenzweig et Shavit, 2007). Dans le cas de l'approche à deux domaines, la tâche la plus difficile est la définition des conditions de couplage représentant les processus de transfert à l'interface.

#### 4.5.1 Approche développée dans la présente étude

Au vu des difficultés liées aux conditions aux limites au niveau de l'interface milieu poreux/cavité, le choix a porté sur l'approche mono-domaine. Ainsi, deux concepts sont envisagés : le premier est basé sur l'équation de **Brinkman-Stokes** et le deuxième est basé sur une approche simple dérivée de la solution de Brinkman.

L'idée de ce concept, est de substituer, dans le code T2Rn, l'équation de Darcy à celle de Brinkman-Stokes. Ce concept est difficile à implémenter et nécessiterait un projet de recherche à long terme qui n'était pas compatible avec la durée de cette étude (voir ci-après *perspectives de recherche* dans la partie III de ce manuscrit).

##### Modèle simplifié de l'interface poreux – libre

Dans une précédente étude réalisée avec le code TOUGH2 et portant sur le couplage de l'évaporation et de l'infiltration dans les cavités ventilées, Ghezzehei et al. (2004) ont défini une zone mince homogénéisée à l'interface en déterminant une perméabilité effective. En s'inspirant de cette idée, un ajustement adéquat de l'épaisseur de la zone de transition a été déterminé. La variation spatiale des valeurs de paramètres a été décrite d'une façon significative, afin d'assurer la continuité de ces paramètres à l'interface. La variation spatiale de la porosité est supposée linéaire et la perméabilité de cette zone est déterminée à l'aide de la relation de Kozeny Carman (Carman, 1973 ; Kuznetsov et Becker, 2004) :

$$(4-1) \quad k = 0,2 \frac{\phi^3}{S_0^2(1-\phi)^2}$$

, où  $S_0(\text{m}^2.\text{Kg}^{-1})$  est la surface spécifique.

Compte tenu de la complexité du problème, un raffinement du pas de temps et du pas d'espace (maillage) est nécessaire voire obligatoire.

Certes cette simplification, qualifiée de Darcy-Darcy, ne prétend pas simuler l'écoulement d'un fluide de type Stokes dans un capillaire au contact d'un milieu poreux (e.g., modèle de Poiseuille plan, Figure 4-29), puisque la vitesse d'écoulement du fluide dans le capillaire sera représentée par une vitesse moyenne. L'inconvénient de cette approximation est qu'elle rajoute un paramètre inconnu en plus, qu'est la perméabilité équivalente de la cavité. Toutefois, au regard des vitesses de gaz faibles simulées dans une cavité karstique ou minière (nombre de Reynolds faible) et la taille gigantesque de cette cavité, cette approximation reste valable. En outre, il suffit, tout simplement de considérer la perméabilité équivalente de la cavité comme un paramètre à calibrer sur les données mesurées des vitesses de gaz et/ou des concentrations en radon mesurées dans la cavité.

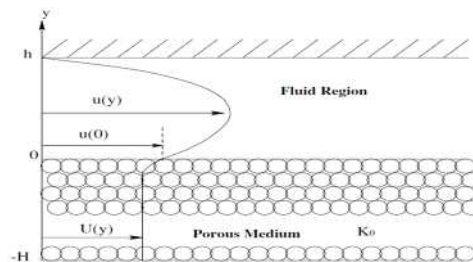


Figure 4-29 – Schématisation du profil de vitesse analytique d'un modèle d'écoulement de Poiseuille plan (un capillaire au contact d'un milieu poreux ; d'après Beavers et Joseph, 1967)

### Exemple d'une longue cavité surmontée par une roche poreuse non saturée

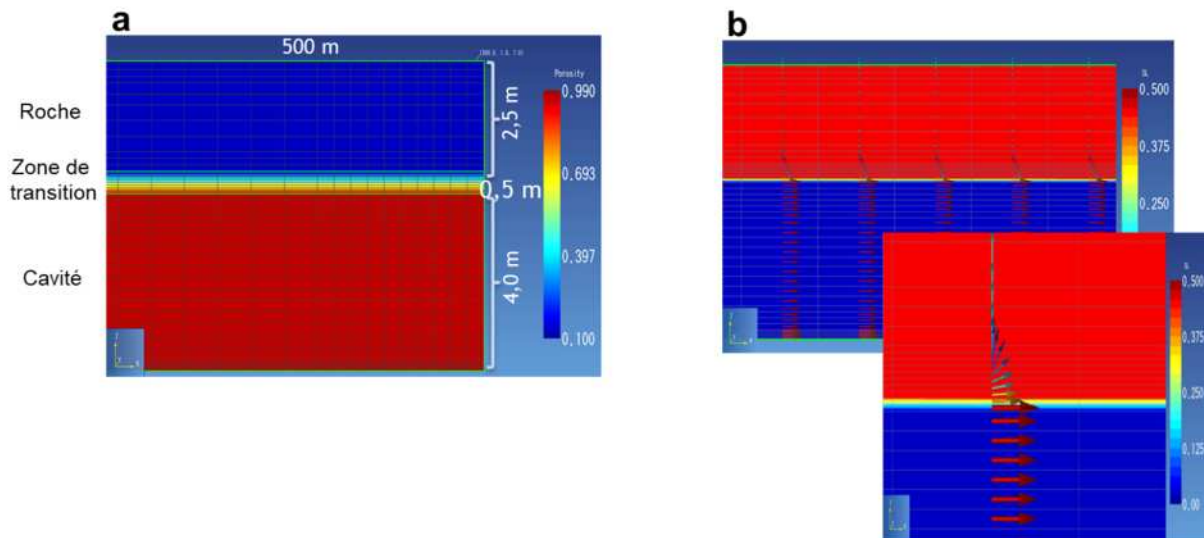
Dans cet exemple, une illustration de ce problème d'interface poreux-libre sera présentée dans le cas d'un grand domaine plan (représentatif du problème d'écoulement de Poiseuille plan). Ce problème consiste à modéliser le transfert du gaz dans un domaine 2D de 500 m de long suivant l'axe OX et de 7 m d'épaisseur suivant la verticale (Figure 4-30a), constitué d'une roche de 3 m d'épaisseur surmontant une cavité de 4 m de hauteur. La zone de transition étant de 0.5 m d'épaisseur.

Les conditions initiales sont telles que la roche est non saturée avec un degré de saturation en gaz de 0.5 et l'air à pression atmosphérique (1 bar). Les conditions aux limites sont telles que les flux sont nuls sur toutes les frontières, excepté aux frontières latérales de la cavité, créant ainsi un gradient de pression de gaz de 15 Pa ; à la surface du sol où l'air est à pression atmosphérique (1 bar); et au lit de la cavité où la pression capillaire est nulle (niveau piézométrique d'une nappe souterraine).

La porosité et la perméabilité de la roche sont prises égales à 0,1 et  $1 \times 10^{-12} \text{ m}^2$  respectivement, alors que celles de la cave sont prises à 1 et  $1 \times 10^{-8} \text{ m}^2$ , respectivement.

Le maillage du domaine est composé de 8556 éléments avec un découpage  $NX = 186$  et  $NZ=46$  suivant les axes OX et OZ, respectivement. Le maillage fin de la zone de transition suivant OZ correspond à  $NZ = 10$  (soit  $\Delta z = 0,05 \text{ m}$ ), Figure 4-30a.

Le caractère linéaire de la porosité et le calcul de la perméabilité en fonction de la porosité par la formule de Kozeny-Carman (Eq. (4-1)) dans la zone de transition imposent une porosité de 0,18 et une perméabilité de  $7,15 \times 10^{-12} \text{ m}^2$  pour l'élément de la zone de transition au contact avec la roche, et une porosité de 0,91 et une perméabilité de  $7,34 \times 10^{-8} \text{ m}^2$  pour l'élément de la zone de transition au contact avec la cavité.



**Figure 4-30 – a/ Domaine étudié montrant la variation linéaire de la porosité dans la zone de transition ainsi le maillage vertical depuis la surface jusqu'au lit de la cave ; b/ Profils de saturation en eau et de vitesse de gaz simulés par T2Rn après une durée de 15.52 ans, avec un zoom sur l'interface roche-cavité.**

Le profil de vitesse de gaz calculé par T2Rn à l'interface roche non saturée-cavité (Figure 4-30b) est presque similaire à celui calculé par la solution analytique de Beavers et Joseph (1967), i.e., Figure 4-29. L'approche simplifiée permet un calcul graduel de la vitesse de gaz, qui est maximale dans la cavité (vitesse moyenne) et qui diminue au fur et à mesure que l'on s'éloigne de la zone de transition. Ce résultat montre également que cette approche permet d'assurer la convergence de la solution numérique au voisinage de l'interface milieu libre – milieu poreux non saturé pour des temps de simulations importants à grande échelle spatiale.



#### 4.5.2 Domaine modélisé

La modélisation est réalisée sur le **site FO-09**. Ce choix a été basé sur deux critères :

- L'emplacement de ce site : il est situé au fond d'une doline, très caractéristique des nombreuses dolines du secteur étudié, au sud du village de Fontenotte ; il est quasiment à l'aplomb de la cavité d'En Versenne (Figure 4-5, Figure 4-13) ;
- Une forte corrélation y a été observée entre les fluctuations temporelles de l'activité volumique du radon dans l'air du sol, la pression atmosphérique et la pluviométrie (cf. § 4.4.2 et Figure 4-27).

De plus, une période d'intérêt, allant du **20/04/2016 au 25/05/2016** (Figure 4-27), a été choisie selon la disponibilité des données météorologiques et les observations issues des données expérimentales (cf. § 4.4.2), montrant une corrélation entre l'activité volumique du radon mesurée dans le sol et celle dans la cavité, la pluviométrie, la pression atmosphérique et le niveau d'eau dans la nappe souterraine (Figure 4-27). Les paramètres météorologiques moyennés sur cette période sont présentés dans le Tableau 4-3.

L'écoulement diphasique liquide-gaz est supposé isotherme à la température  $T = 10\text{ °C}$ , soit approximativement la température atmosphérique moyenne sur le site (Tableau 4-3).

**Tableau 4-3 - Paramètres météorologiques moyennés sur la période étudiée.**

Période	20/04/2016 - 25/05/2016
Température de l'air atmosphérique en surface [°C]	10.07
Pression de l'air atmosphérique $P_{\text{atm}}$ [Pa]	9.7024E+04
Evapotranspiration potentielle [mm]	1.3
Précipitations [mm]	180.2

##### ➤ Géométrie du domaine

Le modèle simplifié de l'interface poreux – libre (cf. § 4.5.1) a été utilisé pour la modélisation de transport du radon en milieu karstique. Ainsi une zone de transition a été prise en compte lors de la modélisation. Le domaine de calcul (Figure 4-31) comporte une cavité considérée comme un milieu libre et quatre couches constituées du sol, du régolithe<sup>6</sup>, de la roche et d'une zone de transition. La modélisation du domaine est bidimensionnelle. Les dimensions du domaine sont données dans le Tableau 4-4. La longueur et la profondeur de la doline créée par la dissolution des calcaires sont estimées en se basant sur des relevés topographiques réalisés par l'IRSN lors des missions de terrain alors que l'épaisseur de sol a été estimée en l'absence des données précises. Dans le cadre de cette modélisation, des approximations ont été nécessaires :

- La doline et la cavité ont été supposées rectangulaires ;
- La hauteur de la cavité est supposée égale au diamètre de la salle de Fontenotte dans la cavité d'En Versenne (partie du réseau où ont été réalisées les mesures expérimentales ; Ielsch, Saâdi et Bertrand, 2016) ;
- L'épaisseur de la zone de transition a été choisie en tenant compte de gammes des valeurs des propriétés physiques et hydrodynamiques de deux milieux (roche/cavité).

<sup>6</sup> *Régolithe* : couche très mince recouvrant la roche

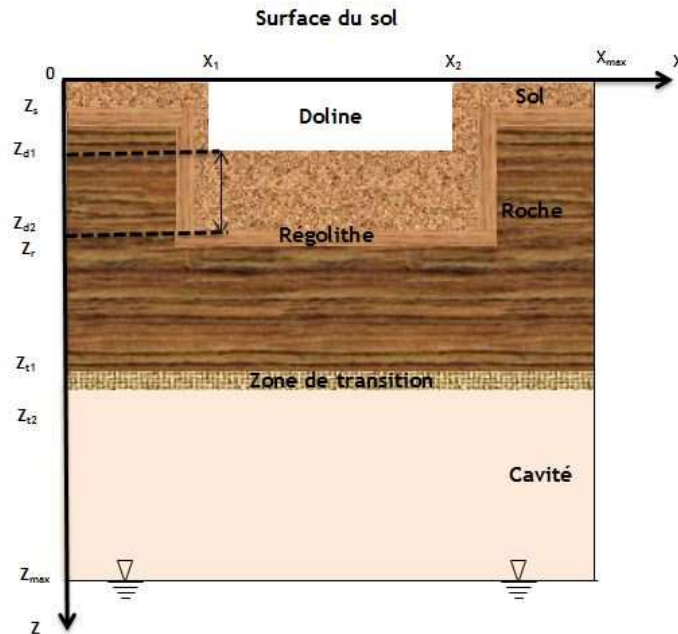


Figure 4-31 – Représentation schématique du domaine étudié.

Tableau 4-4 - Caractéristiques géométriques du domaine de calcul.

Hauteur maximale du domaine, $Z_{max}$ (m)	27
Longueur du domaine, $X_{max}$ (m)	200
Épaisseur du sol (hors doline), $Z_s$ (m)	1
Épaisseur du régolithe, $Z_r - Z_{d2}$ (m)	0.7
Épaisseur de la roche, $Z_r - Z_s$ (m)	22
Épaisseur de la zone de transition, $Z_{t2} - Z_{t1}$ (m)	0.3
Hauteur de la cavité, $Z_{max} - Z_{t2}$ (m)	3.7
Distance de l'origine au début de la doline, $X_1$ (m)	25
Longueur de la doline, $X_2 - X_1$ (m)	150
Hauteur du centre de la doline, $Z_{d1}$ (m)	5
Épaisseur du sol au centre de la doline, $Z_{d2} - Z_{d1}$ (m)	3

#### ➤ *Propriétés physiques du domaine*

Les valeurs des propriétés physiques (porosité et perméabilité) du sol, du régolithe, de la roche, de la zone de transition et de la cavité sont données dans le Tableau 4-5. A part la porosité de la cavité fixée à 1, la porosité et la perméabilité du sol, du régolithe, de la roche et de la zone de transition sont considérées comme des paramètres sensibles (prises variables sur une gamme de variations respectant la physique de l'écoulement).

**Le sol** : les valeurs des propriétés physiques du sol (teneur en eau, porosité, perméabilité intrinsèque) sont déterminées en se basant sur les expérimentations de terrain et complétées par des analyses en laboratoire (cf. § 4.3.1). Les valeurs mesurées de la porosité et de la perméabilité intrinsèque sont égales à **0.5** et  **$3.46 \times 10^{-12} \text{ m}^2$** , respectivement. Je note que la perméabilité intrinsèque est calculée à partir de la perméabilité (effective) à l'air du sol mesurée ( $k_g$ ), et la perméabilité relative à l'air ( $k_{r,g}$ ) estimée par l'équation (1-31) du modèle de van-Genuchten-Mualem (cf. § 1.5), sachant que les paramètres de forme m et n de l'équation (1-31) sont obtenus par des fonctions de pédo-transfert de Meskini-Vishkaee et al. (2014) à partir de la texture du sol.

**Le régolithe** : les propriétés de cette couche (Tableau 4-5) ont été estimées d'une façon à diminuer la discontinuité entre les propriétés du sol et celles de la roche.

**La roche** : il s'agit d'une formation calcaire fracturée et constituée essentiellement de carbonate de calcium ( $\text{CaCO}_3$ ). Au vu du manque d'informations sur les propriétés des fractures de cette roche, une approximation a dû être adoptée pour cette étude afin d'éviter l'utilisation d'un modèle complexe à deux continuums matrice-fracture (e.g., Liu et al., 2003). Ainsi, la roche est supposée homogène mais plus perméable qu'une roche intacte. Ses propriétés physiques ont été déduites des valeurs publiées dans la littérature dans un premier temps (Brooks et Corey, 1964 ; Freeze et Cherry, 1979) puis estimées en se basant sur une étude de sensibilité. La gamme des valeurs proposées dans l'étude de sensibilité est présentée dans le Tableau 4-5.

**La zone de transition** : la porosité de la zone de transition est déterminée à partir d'une fonction linéaire et sa perméabilité est déterminée par la relation de Kozeny – Carman (Eq. (4-1)).

**La cavité** : cette zone est considérée comme un milieu macroporeux, elle est caractérisée par une porosité de 100% et une perméabilité très grande par rapport à celle de la roche.

**Tableau 4-5 - Propriétés physiques du domaine de calcul.**

Milieu	Porosité, $\phi$ (-)	Perméabilité Intrinsèque ( $\text{m}^2$ )	$\alpha_{VG}$ [ $\text{cm}^{-1}$ ]	$m_{VG}$ [-]	Activité du Ra-226 (Bq/kg)	Coefficient d'émanation (-)
Sol	[0.46 – 0.52]	[3.46 E-13 - 3.46 E-11]	[0.020 – 0.040]	[0.157 – 0.195]	[75 – 91]	[0.15 – 0.25]
Régolithe	[0.10 – 0.46]	[3.46 E-12 - 3.46 E-11]	[0.020 – 0.040]	[0.157 – 0.195]	[75 – 91]	[0.15 – 0.25]
Roche	[0.01 - 0.10]	[1.0 E-11 - 1.0 E-09]	[0.010 – 0.020]	[0.128 – 0.150]	[15– 19]	[0.15 – 0.25]
Zone de transition	[0.01 - 1.00]	[1.0 E-11 - 1.0 E-09]	[0.01 – 0.01]	[0.128 – 0.195]	[15– 19]	[0.15 – 0.25]
Cavité	1.00	[1.0 E-09 - 1.0 E-07]	-	-	-	-

➤ Propriétés hydrodynamiques du domaine

On considère le modèle VG-M (cf. § 1.5) pour décrire la courbe de rétention (relation pression capillaire-degré de saturation en eau,  $P_c(S_l)$ , définie par l'Eq. (1-29)) et les perméabilités relatives à l'eau et au gaz (relations  $k_{r,l}(S_l)$  et  $k_{r,g}(S_l)$  définies par les équations (1-30) et (1-31), respectivement) pour l'ensemble des matériaux décrit dans le Tableau 4-5. Les valeurs des paramètres  $S_{lr}$  [-] et  $S_{lg}$  [-] de ces équations ont été prises égales à 0 et 1, respectivement.

Pour le sol prélevé sur le site FO-09, présentant une texture argilo-limoneuse (Figure 4-6a), le paramètre d'échelle  $\alpha_{VG}$  [ $\text{m}^{-1}$ ] et le paramètre de forme  $m_{VG}$  [-] de ces équations sont obtenus par le modèle de Meskini-Vishkaee et al. (2014) en considérant une certaine gamme de variation de ces paramètres pour ce type de sol.

Pour le régolithe, la roche, la zone de transition et la cavité, une étude de sensibilité a été faite afin d'estimer les valeurs adéquates des paramètres hydrodynamiques. Les gammes de valeurs utilisées dans l'étude de sensibilité sont présentées dans le Tableau 4-5.

➤ Propriétés de transport du radon

Les coefficients d'émanation du radon pour les différentes parties du domaine de calcul (Tableau 4-5) sont supposés constants. Les valeurs ont été choisies à la suite d'une étude de sensibilité sur les données mesurées de l'activité volumique du radon dans le sol (Figure 4-8b). Les activités massiques du radium-226 dans le sol sont prises à celles mesurées au laboratoire (cf. § 4.3.1), et celles dans la roche et dans la zone de transition sont supposées égales à celles mesurées sur les échantillons de roches prélevés sur la paroi de la cavité (cf. § 4.3.3). Le Tableau 4-5 présente les résultats de mesure de ces activités massiques du radium-226 dans une gamme de variabilité en tenant compte de l'incertitude de mesure.

Les coefficients de diffusion non saturés de l'eau, du radon et de l'air dans les phases liquide et gazeuse du milieu poreux sont modélisés en utilisant la formulation de Millington et Quirk (Eq. (1-19)), pour le calcul de tortuosité non saturée, et leurs coefficients de diffusion dans les phases liquide (eau) et gazeuse (air) libres (Tableau

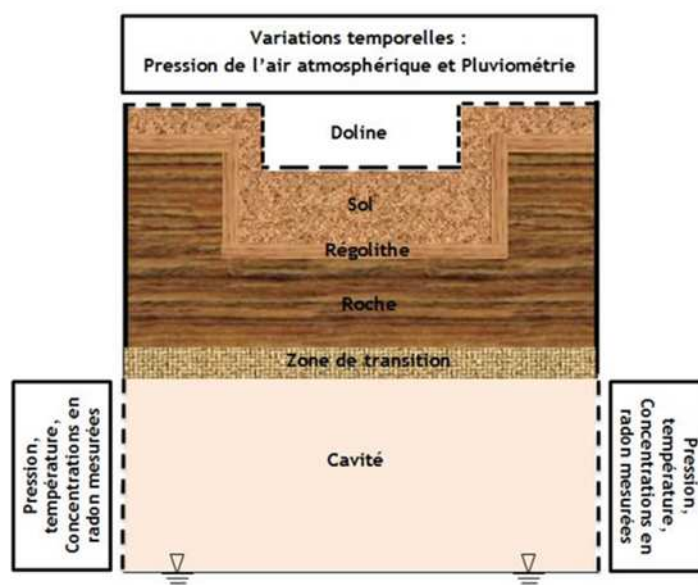
4-6). Les coefficients de Henry correspondants sont également présentés, Tableau 4-6. Ces valeurs ont été estimées à la température atmosphérique moyenne sur le site, soit 10°C (Tableau 4-3).

**Tableau 4-6 - Coefficients de diffusion dans les phases liquide et gaz et coefficient de Henry.**

T=10.07°C	Coefficient de diffusion (10 <sup>-5</sup> m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> )		Inverse du coefficient de Henry (10 <sup>-9</sup> Pa)
	Liquide (eau)	Gaz (air)	Liquide (eau)
Eau	1.0 x 10 <sup>-4</sup>	2.40	-
Composant Radon	1.0 x 10 <sup>-4</sup>	2.10	2.73
Air	1.0 x 10 <sup>-4</sup>	1.10	10.0

➤ *Conditions initiales et aux limites*

Une première simulation a été réalisée avec T2Rn pour un système dépourvu de radon afin d'obtenir un équilibre hydrostatique par rapport à la pression capillaire spécifiée dans le domaine. Cet état d'équilibre est ensuite considéré comme une nouvelle initialisation pour les simulations ultérieures. De même, les valeurs initiales de la pression, de la température de l'air et de l'activité volumique du radon correspondent aux valeurs moyennes des données mesurées dans le sol et la cavité. La Figure 4-32 présente les conditions aux limites imposées pour simuler ce problème.



**Figure 4-32 – Schématisation du domaine modélisé et des conditions aux limites appliquées sur ses frontières.**

Afin d'étudier les corrélations entre le radon dans le sol et les conditions météorologiques variables en surface, les données météorologiques fournies par la station météo installée au niveau du village de Fontenotte (altitude : 380 m) ont été prises en compte.

➤ *Maillage du domaine*

Le maillage du domaine 2D est présenté Figure 4-33a. Il correspond à un maillage rectilinéaire quadrilatéral irrégulier, qui consiste en 8568 éléments (9968 éléments si on ne désactive pas le creux créé par la doline). Il correspond à un découpage  $NX = 112$  et  $NZ = 89$  suivant les axes  $OX$  et  $OZ$ , respectivement. La zone de transition

(épaisseur de 0.3 m) est découpée finement suivant la verticale (Figure 4-33b) en 6 éléments, soit  $\Delta z = 0.05$  m. Trois cellules extra (*Extra-cells*) ont été ajoutées et connectées aux éléments situés aux 2 frontières latérales de la cave et à la frontière de la surface (Figure 4-32) pour décrire les conditions aux limites de type Dirichlet ou de Newman, variables dans le temps (données météorologiques et concentrations en radon).

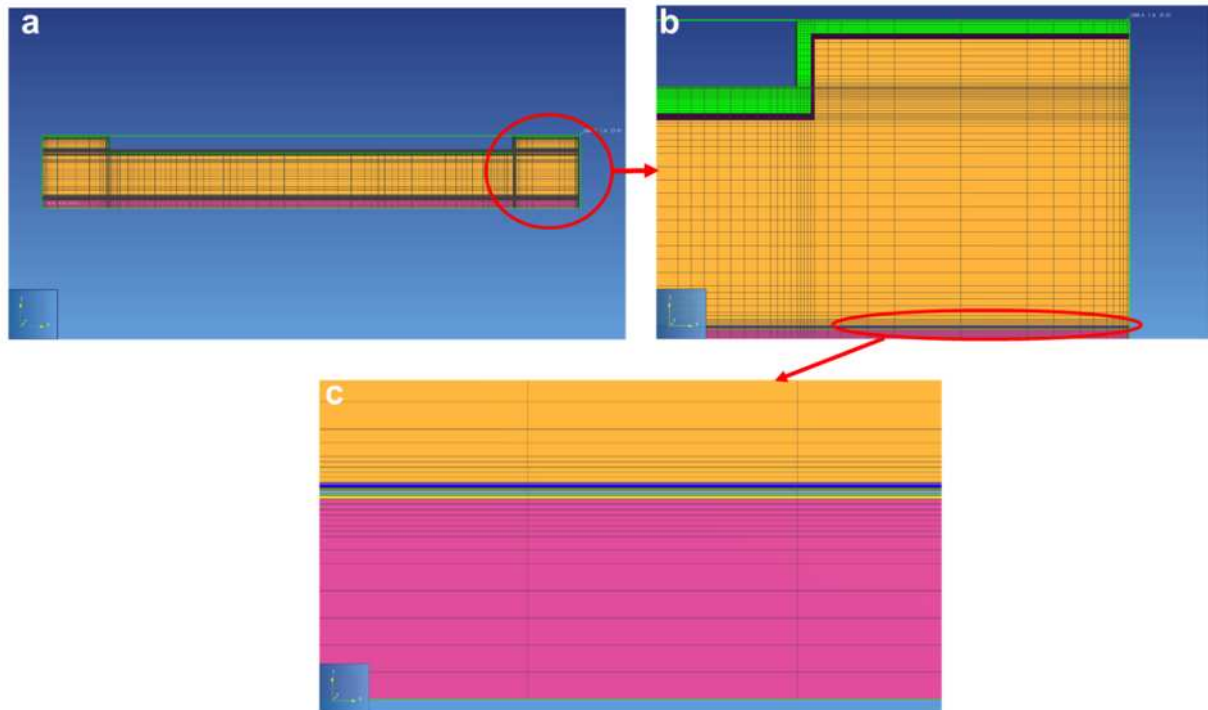


Figure 4-33 – a/ Maillage du domaine ; b/ Zoom près de la doline ; c/ Zoom sur la zone de transition. Les différentes couleurs représentent les différents matériaux du domaine (sol, régolithe, roche, zone de transition et cavité).

#### 4.6 Résultats préliminaires des simulations

Afin d'ajuster d'une manière satisfaisante le modèle de calcul aux mesures, une étude de sensibilité a été réalisée. Cette étude vise à calibrer le modèle et concerne principalement les propriétés physiques et hydrodynamiques du domaine ainsi que le coefficient d'émanation. Cette calibration a été une tâche critique et délicate au vu des approximations qui ont dû être adoptées (forme de la doline, forme de la cavité, propriétés de la roche...). Vu la faible différence entre les propriétés du sol et celles de la régolithe, et la mauvaise connaissance des propriétés des fractures de la roche, le système sol-régolithe-roche a été assimilé à un milieu poreux homogène équivalent, dont les paramètres physiques et hydrodynamiques sont donnés, Tableau 4-7.

Tableau 4-7 – Paramètres physiques, hydrodynamiques et d'émanation du radon des différents matériaux poreux.

Milieu	Coefficient d'émanation (-)	Porosité (-)	Perméabilité intrinsèque (m <sup>2</sup> )	$\alpha_{VG}$ (cm <sup>-1</sup> )	$m_{VG}$ (-)
Sol – Régolithe – Roche	0.25	0.4	3.46E-12	0.01	0.157
Zone de transition	0.25	0.4 - 1.0	3.46E-12 - 7.5E-8	0.01	0.157
Cavité	-	1	1.0E-08	-	-

#### 4.6.1 Influence de variations météorologiques et des activités massiques du Ra-226

Dans une étude antérieure, Mansouri et Gréau (2018) ont modélisé une configuration simplifiée du domaine d'étude (Figure 4-34) pour pouvoir distinguer l'influence des variables météorologiques (pression atmosphérique de l'air et pluviométrie) et de la teneur en radium-226 du sol sur les concentrations en radon mesurées dans le sol. Cette configuration consiste à négliger l'effet de la cavité, et à considérer le domaine homogène et infini, cela afin d'éliminer l'effet de la condition à la limite inférieure. La source du radon correspond à l'émanation du radon de la zone du sol contenant du radium-226, délimitée par la ligne rouge et la surface (Figure 4-34) : 1 m de profondeur hors doline et 2 m de profondeur dans la doline.

Ces auteurs ont simulé six scénarios qui consistent à fixer les variations de la pression atmosphérique de l'air, et de faire varier la pluviométrie (nulle et non nulle) et la teneur en radium du système sol – régolithe – roche (75, 83 et 91 Bq/kg). La pluviométrie non nulle correspond à celle variable dans le temps, mesurée en surface. Pour simplifier leur étude, la pression atmosphérique de l'air a été appliquée uniquement à la surface de la doline  $z = 5$  m ( $25 \leq x \leq 175$  m).

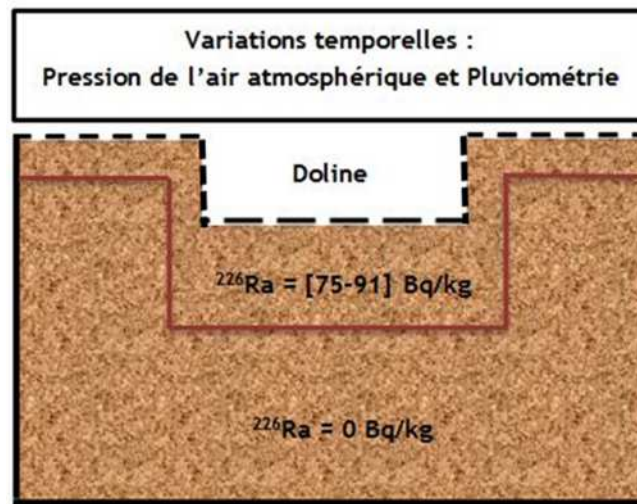


Figure 4-34 – Représentation schématique du domaine simplifié (milieu homogène infini).

Leur modèle a permis de reproduire partiellement le comportement observé des concentrations en  $^{222}\text{Rn}$  mesurées au point de coordonnées  $(x, z) = (97.5, 6.0)$  m situé au centre de la doline et à 1 m au-dessous de la surface  $z = 5$  m ( $25 \leq x \leq 175$  m) de la doline (Figure 4-35). En revanche, on peut remarquer que :

- ✓ Les concentrations en radon calculées (Figure 4-35b) augmentent avec les activités massiques du radium-226 du sol. Le niveau moyen de la concentration en radon le plus proche de celui mesuré correspond à une activité massique du radium-226 égale à 91 Bq/kg. De plus, les amplitudes de variations temporelles de la concentration en radon restent inchangées. Ce résultat permet de conclure que l'activité massique du radium-226 n'a pas d'influence sur les amplitudes des fluctuations ;
- ✓ Les concentrations en radon diminuent légèrement après chaque événement pluvieux (Figure 4-35c). Ce résultat confirme les observations réalisées à partir de l'analyse des séries temporelles (cf. § 4.4.2). Ceci serait lié à l'augmentation de la teneur en eau du sol, à la suite de l'infiltration de l'eau, qui fait dissoudre une partie du radon dans l'eau du sol ;
- ✓ Les anti-corrélations des concentrations en radon avec les pressions (Figure 4-35a) sont bien reproduites par  $^{222}\text{Rn}$ . Ceci est en concordance avec les observations réalisées à partir de l'analyse des séries temporelles (cf. § 4.4.2). En fait, une hausse progressive de la pression entraîne une diminution de la concentration en radon et vice-versa. En effet, la diminution de la pression atmosphérique entraîne un flux ascendant de l'air. Ainsi, les niveaux superficiels du sol sont enrichis par des concentrations en radon provenant des niveaux



sous-jacents. Au contraire, l'augmentation de la pression atmosphérique provoque un flux d'air descendant entraînant la dilution du radon et donc une chute de sa concentration dans le sol ;

- ✓ Les pics de concentration en radon et leurs durées sont reproduits par le code T2Rn. Toutefois, les intensités des pics calculés sont inférieures et décroissent plus rapidement que les pics mesurés.

Les scénarios simulés dans cette partie montrent que les niveaux moyens de la concentration en radon dans le sol résultent de l'émanation du radium-226 contenu dans le sol. Les fluctuations de ces concentrations sont essentiellement dues aux dépressions du gaz dans le sol, provoquées par les fluctuations de la pression atmosphérique en surface.

La configuration simplifiée du domaine décrite dans cette partie n'a pas permis de simuler les amplitudes importantes des pics de la concentration en radon mesurée dans le sol.

Dans ce qui suit, la cavité va être prise en compte dans la modélisation afin de comprendre les conditions qui aboutissent à ces amplitudes de fluctuations.

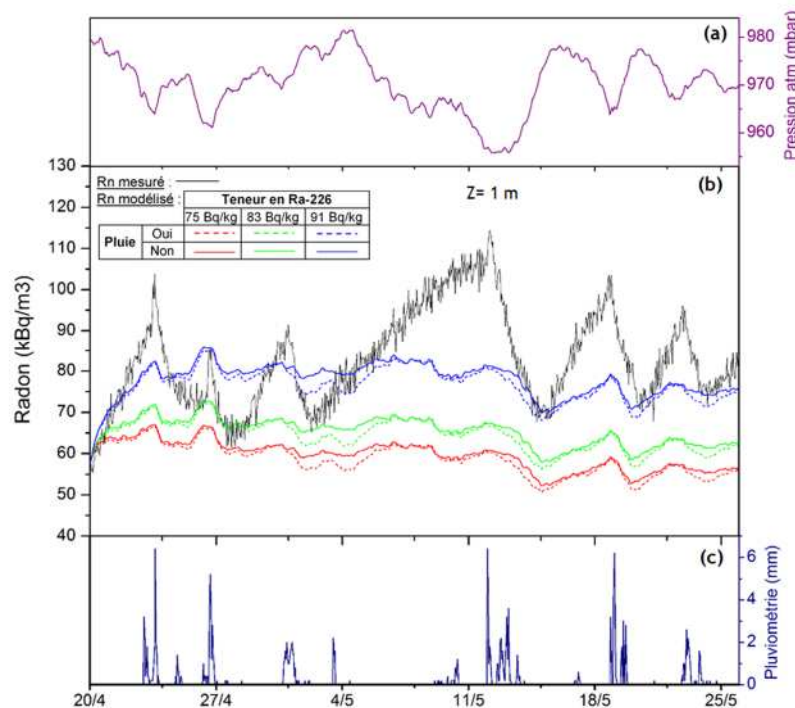


Figure 4-35 – (a) Pression de l'air atmosphérique ; (b) Activités volumiques de radon dans l'air du sol mesurée et calculée par le code T2Rn pour différentes valeurs d'activité massique de radium-226, avec ou sans pluviométrie ; (c) Pluviométrie. Calculs effectués pour un domaine simplifié durant la période du 20/04/2016 au 25/05/2016.

#### 4.6.2 Influence de la pression de l'air dans la cavité

Ici, la modélisation de transport du radon dans le domaine complet (Figure 4-32) est présentée. Partant de l'approximation que l'effet de la pluviométrie sur les concentrations en radon dans l'air du sol est négligeable (Figure 4-35b), seule la pression atmosphérique de l'air a été considérée (Figure 4-35a). En revanche, cette fois-ci, cette dernière a été appliquée sur toute la surface supérieure du domaine, soient aux surfaces  $z = 0.0$  ( $0 \leq x \leq 25$  m et  $175 \leq x \leq 200$  m),  $z = 5.0$  m ( $25 \leq x \leq 175$  m) et  $x = 25.0, 175$  m ( $0 \leq z \leq 5$  m), contrairement à ce qui a été proposé par Mansouri et Gréau (2018). La teneur massique en radium-226 a été prise égale à 83 Bq/kg.

Au regard des approximations faites par le présent modèle, l'objectif n'étant pas de simuler avec exactitude les concentrations en radon mesurées au point  $(x, z) = (97.5, 6.0)$  m en partant d'une ré-calibration des paramètres, mais plutôt de montrer l'influence de la présence de la cave sur les concentrations en radon dans le sol au-dessous de la doline ( $z = 5$  m).

Puisque l'apport de la pluviométrie a été négligé, on constate une diminution du degré de saturation en eau en surface entre deux périodes espacées de 22,65 jours (Figure 4-36a et Figure 4-37a). On calcule essentiellement un flux d'eau de drainage en profondeur, qui se traduit par la suite par une saturation en eau de la roche proche de la saturation totale  $S_l = 1$  au voisinage de l'interface roche-cavité.

Les profils de pression de gaz simulés à deux périodes espacées, Figure 4-36b et Figure 4-37b, montrent bien la montée de la phase gazeuse depuis la cavité vers la surface. Ce résultat s'explique par la différence de pression de gaz positive instantanée  $\Delta P$  (Figure 4-38c) entre la cavité (moyenne sur EV-1 et EV-2) et le sol. Le fait que la pression de gaz mesurée à la station EV-2 soit supérieure à celle mesurée dans EV-1 (Figure 4-38a) à chaque instant, on calcule un mouvement de gaz instantané orienté SSE-NNE (Figure 4-39).

La présence de la doline crée une dépression plus importante à sa surface ( $z = 5$  m), ce qui explique la direction de flux de la phase gazeuse essentiellement vers la doline (Figure 4-39).

Cette ascension de gaz en surface s'accompagne également par un flux de radon ascendant et des concentrations en radon importantes dans le premier mètre du sol au-dessous de la surface de la doline (Figure 4-36c et Figure 4-37c).

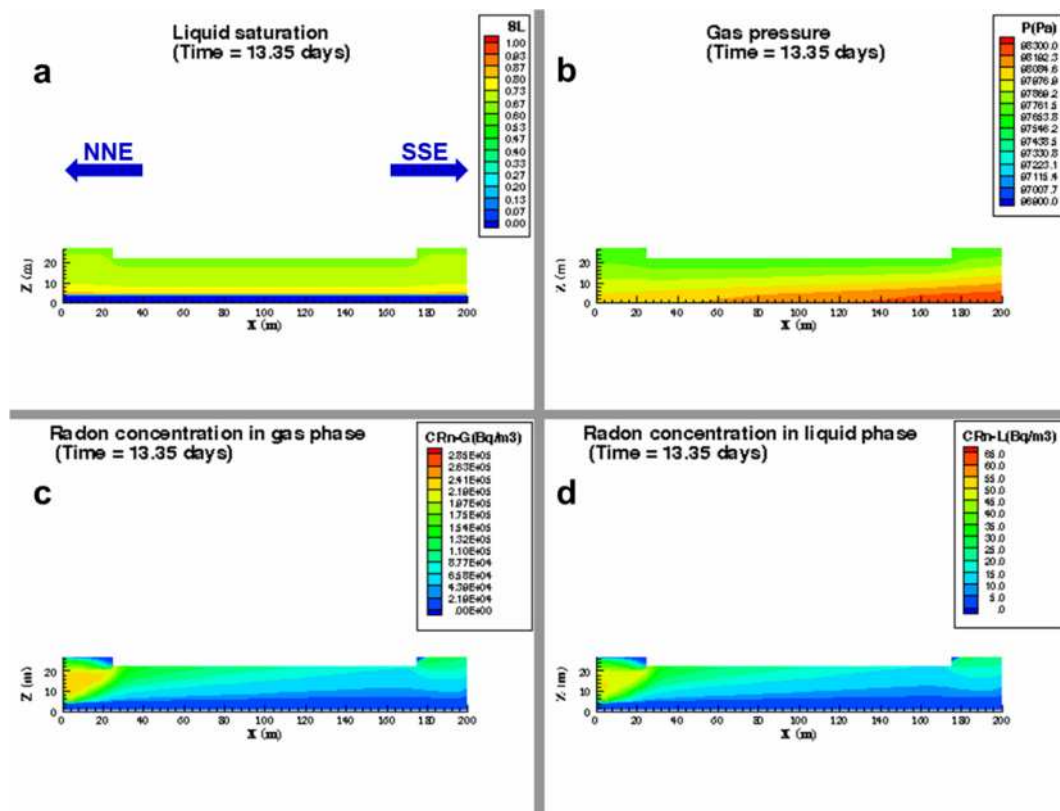


Figure 4-36 – Profils après une durée de 13.35 jours à partir de 20/04/2016 : (a) Degré de saturation en eau; (b) Pression de l'air du sol; (c) Concentration en Rn dans l'air du sol; (d) Concentration en Rn dans l'eau du sol.

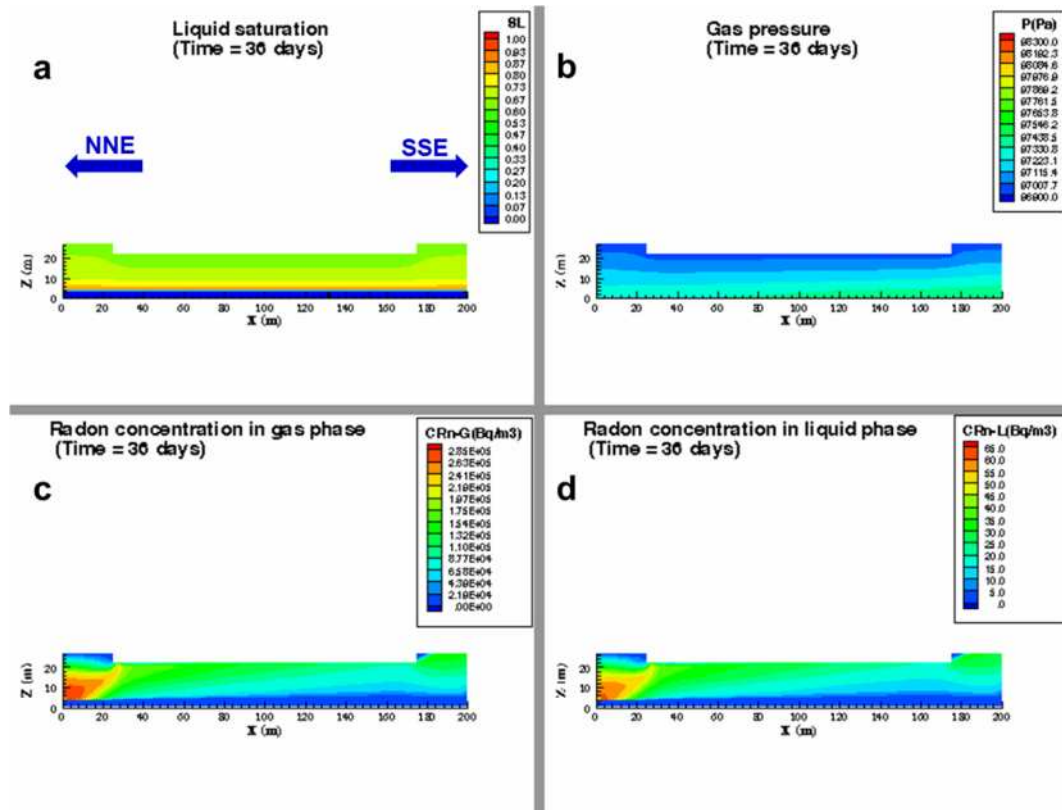


Figure 4-37 – Profils après une durée de 36 jours du 20/04/2016 jusqu’au 25/05/2016 : (a) Degré de saturation en eau ; (b) Pression de l’air du sol ; (c) Concentration en Rn dans l’air du sol ; (d) Concentration en Rn dans l’eau du sol.

On calcule, en revanche, une activité volumique du radon dans l’air du sol plus importante au-dessus de la cavité sur le côté NNE, près de la station EV-1. Ce résultat est dû en particulier au cumul du radon auprès de cette station, étant donné que le flux du radon dans la cavité est orienté SSE-NNE (Figure 4-39a).

La concentration en radon dans l’eau du sol (Figure 4-36d et Figure 4-37d) est proportionnelle à celle dans la phase gazeuse par l’intermédiaire de la constante d’Ostwald (Eq. (1-22)). Cela se traduit par une variabilité spatiale dans le sol et dans la roche qui est presque similaire pour les deux concentrations.

La Figure 4-38b montre les courbes de l’activité volumique de radon mesurée et simulée dans l’air du sol au point situé au centre et au-dessus de la doline  $(x, z) = (97.5, 6)$  m, soit à 1 m de profondeur de la surface  $z = 5$  m de la doline. Contrairement à la courbe de concentration en radon calculée précédemment (Figure 4-35b), la prise en compte de gradients de pression entre le sol et la cavité a permis d’améliorer considérablement la modélisation de la concentration en radon mesurée dans l’air du sol. En effet, on constate que les pics des activités volumiques du radon et leurs intensités sont bien reproduits par le code T2Rn. Ce dernier reproduit également les anti-corrélations observées entre les concentrations en radon et les pressions mesurées. La surestimation de la concentration en radon mesurée au cours du temps par le modèle est également liée à l’incertitude sur la position de mesure de cette concentration.

Bien que les niveaux moyens des concentrations en radon dans le sol puissent s’expliquer par la teneur en radium-226 du sol (Figure 4-35b), les fluctuations observées s’expliquent essentiellement par les différences de pression entre l’atmosphère et la cavité.

En imposant une concentration en radon nulle dans la cavité, une légère diminution de la concentration en radon dans le sol est calculée (Figure 4-38b). Ainsi, les niveaux moyens de la concentration en radon dans le sol résultent principalement de sa génération par émanation du radium-226 contenu dans le système sol-régolithe-roche.

On note, par contre, que la concentration en radon calculée numériquement présente quelques anomalies (diminution brusque de la concentration en radon). Ces anomalies semblent être corrélées à des diminutions

brusques de la courbe  $\Delta P$ . Elles sont soit d'ordre numérique soit dues à certains processus physiques non pris en compte par le modèle actuel.

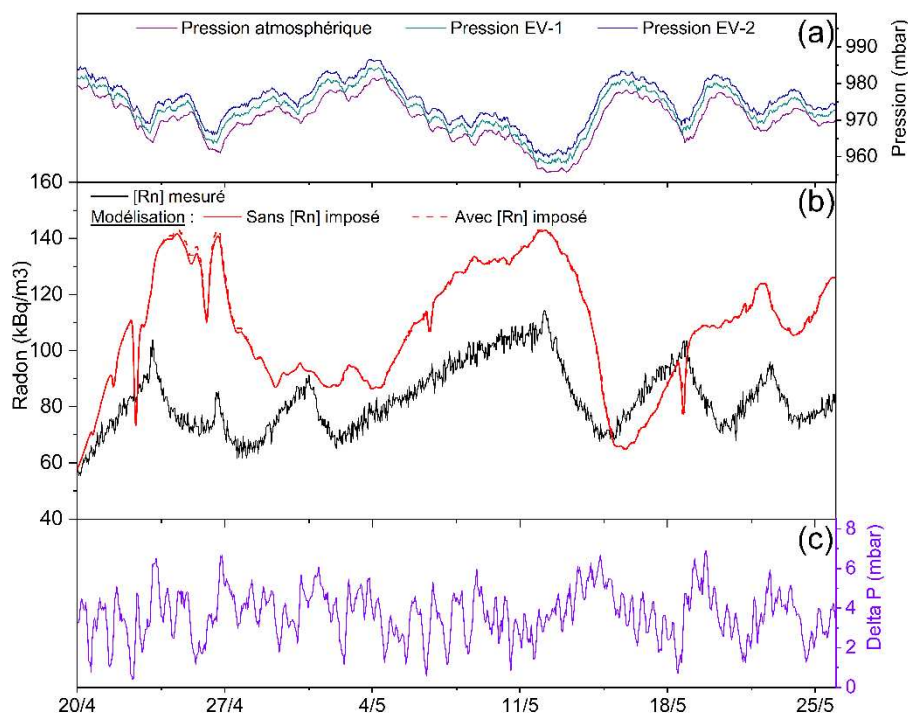


Figure 4-38 – (a) Pression atmosphérique et pressions dans la cavité (EV1 et EV2) mesurées, (b) Activités volumiques de radon mesurée et calculée par T2Rn au point  $x = 97.5$  m et  $z = 6$  m, (c) Différence entre la pression de gaz moyenne dans la cavité et la pression atmosphérique ( $\Delta P$ ). Période du 20/04/2016 au 25/05/2016.

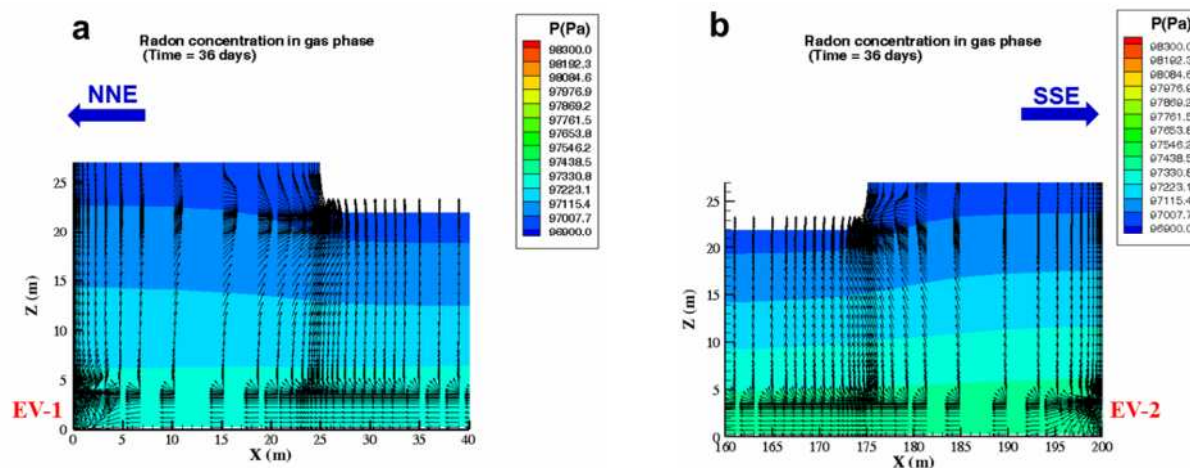


Figure 4-39 – Zoom sur les profils de flux du radon et de la pression de la phase gazeuse du sol après une durée de 36 jours (20/04/2016 - 25/05/2016) : (a) Côté NNE de la limite latérale EV-1 ; (b) Côté SSE de la limite latérale EV-2.

En conclusion de cette partie, les simulations réalisées montrent que les amplitudes des fluctuations de l'activité volumique du radon dans l'air du sol sont liées aux gradients de pression dans le sol provoqués par les fluctuations de pression dans la cavité. De plus, les niveaux moyens de l'activité volumique du radon dans le sol résultent essentiellement de l'émanation du radium-226 contenu dans le sol.

## 4.7 Conclusion

Ce qu'il faut retenir sur l'analyse des mesures des propriétés physiques et radiologiques du sol et de la cavité en lien avec le climat de la région de Fourbanne :

- ✓ Les niveaux de radon mesurés dans les sols sont cohérents avec les teneurs en radium-226 mesurées dans ces sols. Ces dernières sont toutefois similaires à celles des sols développés sur des roches granitiques riches en uranium et en radium. L'enrichissement relatif en radium-226 des sols serait lié à la dissolution des carbonates et à la fixation des radionucléides libérés sur les matériaux argileux, la matière organique ou les oxydes de fer contenus dans le sol ;
- ✓ La présence d'une zone de faille est un facteur favorisant la présence de radon dans l'air du sol à des concentrations plus importantes quelle que soit la topographie du terrain considéré ;
- ✓ Les séries temporelles des activités volumiques de radon dans le sol et dans la cavité montrent que dans la cavité, les variations saisonnières sont liées à la différence de température avec la surface qui entraîne un flux d'air et une dilution des activités volumiques de radon en hiver. Les nombreux pics de radon se corrélaient avec les chutes de pression ainsi qu'avec les épisodes pluvieux et les augmentations de hauteur d'eau dans la rivière souterraine. Quant aux fluctuations des activités volumiques de radon dans l'air du sol, celles-ci apparaissent beaucoup plus complexes. Toutefois, les chutes des activités volumiques de radon dans l'air du sol observées suite à des épisodes de pluviométrie importante pourraient être attribuées à l'augmentation de la teneur en eau du sol qui favorise la dissolution du radon dans l'eau du sol.

Ce qu'il faut retenir sur la modélisation du radon dans le système sol-roche-cavité développé dans cette étude :

- ✓ Les niveaux moyens de l'activité volumique du radon dans le sol résultent essentiellement de l'émanation du radium-226 contenu dans le sol ;
- ✓ Les variations temporelles des activités volumiques du radon calculées sont en accord avec les mouvements d'eau provoqués par la pluviométrie en surface ;
- ✓ Les fluctuations des activités volumiques de radon observées dans le sol sont à priori liées à l'existence de gradients de pressions depuis la cavité vers le sol générés par les variations de pression dans la cavité ;
- ✓ Par ailleurs, des anomalies ont été identifiées lors des calculs notamment pour de faibles gradients de pression. L'origine de ces anomalies n'est à priori pas mise en évidence dans cette étude ; elle peut être liée à des processus physiques non pris en compte dans le modèle étudié (au vu des approximations faites). A ce stade de l'étude, le modèle simplifié de l'interface poreux-libre paraît suffisant pour étudier le transport de radon depuis les cavités vers la surface du sol d'un système karstique en considérant une étude de sensibilité des paramètres du modèle.

Perspectives ou axes de recherches à poursuivre à la suite de cette étude sont les suivantes :

- ✓ Compléter la connaissance sur les relations entre les activités volumiques du radon dans l'air du sol et les teneurs de radium-226 des sols en milieu calcaire : cette étude a permis d'établir que les niveaux élevés de radon dans l'air du sol observés sur le secteur d'étude peuvent s'expliquer par les teneurs élevées de radium-226 mesurées dans les sols. Ces dernières seraient dues à la dissolution des carbonates typique des régions karstiques. Afin de confirmer ce mécanisme, de nouvelles mesures couplées de radon et de radium-226 pourraient être réalisées dans les sols des zones karstiques proches (secteur du Verneau ou de Morteau-Mâche en Franche-Comté) ainsi que dans ceux d'autres régions karstiques françaises



(Causses, Quercy, Provence...). De plus, des mesures pourraient également être réalisées dans les sols de terrains calcaires non karstiques afin de les comparer aux résultats des régions karstiques (teneurs potentiellement inférieures en l'absence de dissolution massive de carbonates).

- ✓ Compléter les mesures réalisées sur les profils transverses à des failles sur la zone d'étude : les mesures réalisées ont permis de déterminer que les activités volumiques de radon dans l'air du sol sont significativement plus importantes à proximité des zones de faille. Afin de comprendre le mécanisme en jeu, des mesures de perméabilités et des mesures des activités volumiques du thoron ( $^{220}\text{Rn}$ ) pourraient être réalisées conjointement aux mesures de radon. En effet, du fait de sa faible demi-vie (55,6 secondes), des mesures de radon-220, couplées aux mesures de radon, pourraient donner des indications sur la distance de la source. Ainsi, il serait possible de déterminer si la présence de failles permet des remontées plus profondes du radon.
- ✓ Les mesures de perméabilités réalisées sur un profil transverse à une faille permettraient quant à elles de quantifier leur variabilité sur un secteur faillé. Ces données, couplées à la connaissance des autres paramètres physiques ainsi qu'aux teneurs en radium-226 du sol, pourraient être intégrées à une simulation numérique afin d'estimer si la variation de perméabilité liée à la faille pouvait à elle seule expliquer les activités volumiques plus importantes mesurées dans l'air du sol au niveau des failles.
- ✓ Améliorer le modèle présenté dans le paragraphe 4.5.2 pour raffiner les résultats obtenus en réduisant le nombre d'approximations ou hypothèses faites, et en intégrant de nouvelles connaissances du milieu étudié, à savoir :
  - Les mesures géophysiques afin de préciser la forme de la doline, l'épaisseur de sol sous-jacent et de la roche ainsi que le réseau de fractures (densité, épaisseur et connectivité entre elles) ;
  - Les mesures de coefficients d'émanation du radon à partir des mesures de teneurs massiques effectives de radium-226 des échantillons de sols prélevés (méthode ECRa; Perrier et Girault, 2012) sur la zone d'étude afin de faciliter l'étude de sensibilité ;
  - Les mesures des propriétés physiques de la roche calcaire (porosité et perméabilité).
  - Considérer un modèle de coefficient d'émanation en fonction de la teneur en eau du sol (e.g., Eq. (1-13) ou (1-14)) ;
  - Introduire l'effet thermique, l'évapotranspiration, le ruissellement d'eau en surface, et la variation du niveau piézométrique de la nappe souterraine, en considérant la vraie forme curviligne de la doline et la fracturation de la roche.

Ces considérations seront d'une énorme utilité pour améliorer le calcul des concentrations en radon dans le sol et dans la cavité.
- ✓ Modéliser le transport du radon en milieu karstique sur plusieurs et longues périodes. Pour la période allant du 1er juin au 1er juillet 2016, des phénomènes contradictoires ont été observés (cf. § 4.4.2). Des tests préliminaires ont déjà été réalisés. Les résultats issus de ces tests, non présentés ici, ont montré une différence de l'allure des courbes d'évolutions des concentrations en radon calculées et celle mesurées. Cette différence peut s'expliquer par l'intervention d'autres processus non pris en compte dans la présente modélisation.

## 5. Production scientifique associée

Gineau A., **Z. Saâdi**, B. Collignan, E. Powaga (2018) : Modélisation du transport du radon dans les sols, jusqu'à l'interface sol-bâtiment - Benchmark entre le modèle numérique T2Rn et les modèles analytiques et semi-empiriques (MA). Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN), Rapport Technique n° RT/PSE-ENV/2018-00021, 63 p., 2018.

Gréau C., N. Mansouri, G. Ielsch, **Z. Saâdi**, C. Bertrand (2018): Radon production and migration in karstic environment: Experimental data and numerical modelling (Fourbanne site, French Jura Mountains). In: Eurokarst 2018 conference, Book of abstracts, 80-81 p., 02-04 July, 2018, Besançon, France. [http://www.eurokarst.org/wp-content/uploads/2016/07/Proceedings\\_Eurokarst2018\\_Besan%C3%A7on.pdf](http://www.eurokarst.org/wp-content/uploads/2016/07/Proceedings_Eurokarst2018_Besan%C3%A7on.pdf)



- Gréau C., G. Ielsch, Z. **Saâdi**, N. Mansouri, C. Bertrand (2017): Influence of karst on the radon production and migration (Fourbanne site, French Jura Mountains): analysis of experimental data. Third East-European Radon Symposium, May 15-19, 2017, Sofia, Bulgaria.
- Ielsch G., C. Gréau, Z. **Saâdi**, N. Mansouri (2017): Influence of karsts on the radon production and migration: experimental data and numerical modelling (Fourbanne site, French Jura Mountains). In: The 2017 AARST International Radon Symposium, 01 - 04 October 2017, New Orleans, USA.
- Ielsch G., Z. **Saâdi**, C. Bertrand, G. Alcalde, E. Barker (2016): Influence of karstic environment on geogenic radon potential: first experimental results on the Fourbanne site (French Jura Mountains). In: 13th International Workshop on the Geological Aspects of Radon Risk Mapping (GARRM 13th), Oral presentation, Prague, Czech Republic, September 15-16, 2016.
- Ielsch G., Z. **Saâdi**, C. Bertrand, S. Denimal, G. Alcalde, E. Barker, C. Debayle, E. Manach (2016): Radon production and migration in the Fourbanne karst system (French Jura Mountains): preliminary results. In: Eurokarst 2016 conference, Oral presentation by Z. Saâdi, Neuchatel, Switzerland, September 05-09, 2016.
- Ielsch G., Z. **Saâdi**, C. Bertrand (2016) : Etude de l'influence des cavités souterraines naturelles (environnement karstique) sur le potentiel radon géogénique. Rapport d'étape : état de l'art, méthode et résultats de la première phase d'acquisition de données expérimentales. Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), Rapport Technique n° IRSN/PRP-DGE/2016-00028, 111 p. avec Annexes, 2016.
- Mansouri N., C. Gréau (2018) : Etude de l'influence des cavités souterraines naturelles (environnement karstique) sur le potentiel radon géogénique. Traitement des données, modélisation. Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), Rapport Technique n° RT/PSE-ENV/2018-00025, 98 p. avec Annexes, 2018.
- Menard C., Z. **Saâdi** (2017) : Influence de la couche pédologique sur l'émanation et le transport du radon jusqu'en surface : méthodes de caractérisation du potentiel radon des sols à l'échelle de la parcelle. Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), PRP-DGE/SEDRAN/BERAM, Rapport Technique, 112 p., Mars 2017.
- Saâdi Z.**, N. Mansouri, L. Marie, G. Ielsch, 2021. Towards a better assessment model of transient radon concentrations in dwellings basements for the study of soil depressurization systems designs. Journal of Environmental Radioactivity, Volumes 235–236, Article 106651, 2021. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2021.106651>
- Saâdi Z.**, 2018. Comparison between equivalent continuum and discrete crack models of transient radon transport at the soil-building foundation crack interface using TOUGH2/EOS7Rn. Transp. Porous Med., 123 : 477–500. DOI: <https://doi.org/10.1007/s11242-017-0994-x>
- Saâdi Z.**, L. Marie, 2017. An experimental and numerical study on radon transport from UMT-contaminated sand to a house basement under variable weather conditions. J. Environ. Chem. Eng., 5: 3667–3683. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jece.2017.07.017>
- Saâdi Z.**, L. Marie, G. Ielsch (2017): An efficient numerical model for simulating radon concentration variations in dwellings basements under time-dependent negative pressure fluctuations indoors. In: Proceedings of The 4th International Conference on Radioecology & Environmental Radioactivity, Poster presentation, Berlin, 3-8 September, 2017.
- Saâdi Z.** (2017a) : Modèle mathématique de transport du radon dans le continuum Bâtiment-Bassin Géologique-Cavité souterraine (B2GC). Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), NT/PRP-DGE/2017-00003, pp. 52, Octobre 2015.
- Saâdi Z.** (2017b) : Développement du nouveau module TOUGH2/EOS7Rn pour la modélisation de l'émanation et de transport du radon dans la géosphère. Vérification numérique et validation expérimentale. Note technique PRP-DGE n° 2017-00006, Mars 2017, pp. 106.
- Saâdi Z.** (2017c) : Etat de l'art sur les méthodes de caractérisation du potentiel radon du sol d'un site non-constructible. Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), NT/PRP-DGE/2021-000XX, 47 p. (soumis).
- Saâdi Z.**, J. Guillevic, 2016. Comparison of two numerical modelling approaches to a field experiment of unsaturated radon transport in a covered uranium mill tailings soil (Lavaugrasse, France). Journal of Environmental Radioactivity, 151: 361–372. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2015.03.019>
- Saâdi Z.** (2015): Numerical modelling of radon transport from soil to a house basement under variable weather conditions. In: Radon in the Environment 2015 conference, Oral presentation, Book of Abstracts, p. 35, Krakow, Poland, May 25-29, 2015. RADON 2015 Krakow, Poland (ipb.ac.rs)
- Saâdi Z.**, J. Guillevic (2015): Comparison between equivalent continuum and discrete crack models of transient radon transport at the soil-building foundation crack interface using TOUGH2/EOS7Rn. In: Blanco-Martin L. et al. (Eds), Proceedings,

TOUGH Symposium 2015, Session Environmental Engineering and Vadose Zone, Oral presentation, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, California, September 28-30, 2015, 439-465 p. Proceedings\_TOUGHSymposium2015\_newest8.pdf (lbl.gov)

- Saâdi Z.**, 2014. On the air-filled effective porosity parameter of Rogers and Nielson's (1991) bulk radon diffusion coefficient in unsaturated soils. *Health Physics*, 106(5): 598-607.
- Saâdi Z.**, D. Gay, J. Guillevic, R. Améon, 2014. EOS7Rn—A New TOUGH2 module for simulating radon emanation and transport in the subsurface. *Computers & Geosciences*, 65: 72-83. <http://dx.doi.org/10.1016/j.cageo.2013.09.003>
- Saâdi Z.** (2014): TOUGH2/EOS7Rn as a reliable numerical modelling tool for the exploration of fractured groundwater and geothermal reservoirs. In: First international symposium on Energy Challenges and Mechanics, Session 04: Reservoir simulation, Aberdeen, Scotland, UK, July 10, 2014. <https://nscj.co.uk/ecm1/sessions/session04.html>
- Saâdi Z.**, J. Guillevic (2014): Comparison of two numerical modelling approaches to a field experiment of unsaturated radon transport in a covered uranium mill tailings soil (Lavaugrasse, France). In: Proceedings of The 3rd International Conference on Radioecology & Environmental Radioactivity, Barcelona, 7-12 September, 2014.
- Saâdi Z.** (2013): Numerical verification and experimental validation of the TOUGH2/EOS7Rn module for non-isothermal radon transport in two-phase porous and fractured media. In: Journées Multiphasiques, Modélisation Mathématique et Scientifique, MoMaS, Abstracts 2013, Keynote speaker, Institut des Hautes Etudes Scientifiques IHES, Bures-sur-Yvette, France, 7-9 October, 2013. [https://www.imo.universite-paris-saclay.fr/~gtanl/resumes\\_des\\_seminaires\\_MoMas2013.pdf](https://www.imo.universite-paris-saclay.fr/~gtanl/resumes_des_seminaires_MoMas2013.pdf)
- Saâdi Z.**, D. Gay, J. Guillevic, R. Améon (2012): EOS7RN—A New TOUGH2 module for simulating radon emanation and transport in the subsurface. In: Finsterle et al. (Eds), Proceedings, TOUGH Symposium 2012, session VIII Environmental Engineering, Oral presentation, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, California, September 17-19, pp. 481-489, 2012. <https://escholarship.org/uc/item/8pr8n5mv>

# Partie II

- **A**mélioration des modèles diphasiques de transport de l'hydrogène dans un stockage géologique profond de déchets radioactifs



## Introduction

Les travaux présentés dans cette partie II s'inscrivent dans les recherches que conduit l'IRSN en support à l'expertise de stockage géologique profond de déchets radioactifs à haute activité (HA) et à moyenne activité à vie longue (MAVL). Ces travaux s'intéressent en particulier à la phase post-fermeture d'un tel stockage durant laquelle une quantité importante d'hydrogène (et accessoirement d'autres gaz) sera produite au sein de sa structure pour des périodes de quelques centaines de milliers d'années. D'une manière générale, cette quantité de H<sub>2</sub> produite varie en fonction du concept de stockage et des hypothèses concernant les mécanismes physico-chimiques de production (il s'agit essentiellement de la corrosion anaérobie des composants en acier). Une phase gazeuse pourrait donc apparaître et modifier les écoulements, les conditions mécaniques et potentiellement le transport de radionucléides dans les composants du stockage, y compris la roche hôte. Ainsi, la capacité de confinement du système de stockage pourrait être modifiée du fait de la génération et de la migration des gaz.

Les phénomènes de transport de gaz en milieu poreux à base d'argile partiellement saturés (proches de la saturation totale), tels que l'argile du Callovo-Oxfordien (COx, roche hôte envisagée pour accueillir le stockage Cigéo), et les barrières ouvragées dans une installation (bentonite, béton...), sont de plus en plus étudiés par des expérimentations réalisées sur des maquettes de laboratoire (Zhang et Rothfuchs, 2004), qui mettent en évidence l'importance du caractère déformable de ces matériaux.

Si la modélisation à l'échelle des pores permet d'expliquer les phénomènes observés expérimentalement, sa transposition à l'échelle d'un volume élémentaire représentatif (VER) reste encore difficile à établir pour étudier le transport des gaz à l'échelle des ouvrages du stockage (alvéole et module) ou à l'échelle du stockage dans sa globalité. A cette échelle, la loi de Darcy généralisée et la loi de Fick sont en effet généralement appliquées pour décrire les écoulements diphasiques liquide-gaz et le transport de deux constituants eau-H<sub>2</sub>, avec échanges de masse entre les phases dans les milieux poreux. Un éventuel couplage à des modèles poro-élasto-plastiques pour l'étude des déformations hydromécaniques et à des modèles de transfert thermique (modèles **THM-Gaz : Thermo-Hydro-Méca-Gaz**), est parfois réalisé.

Les travaux de recherche que je propose visent essentiellement à améliorer les capacités d'évaluation de la migration des gaz au sein de l'installation Cigéo dans la continuité d'études précédentes (Zhang et Rothfuchs, 2004 ; Andra, 2005 ; Boulin et al., 2008 ; Zhang et al., 2008 ; Kaempfer et al., 2014 ; Liu et al., 2015 ; M'Jahad et al., 2017 ; Wendl et al., 2019). Il s'agit en particulier de déterminer les incertitudes sur le calcul (i) des temps de resaturation du stockage (effet des conditions initiales sur la diffusion de l'hydrogène, phénomène d'hystérésis...), et (ii) des pressions d'hydrogène produites au niveau des alvéoles et leur influence sur le transport des radionucléides dans les barrières ouvragées par '**effet piston**' (Saâdi et al., 2020), ainsi que leur influence sur l'augmentation de la transmissivité de l'interface roche-scellements, qui pourrait augmenter le risque de fracturation de la roche hôte endommagée par excavation (EDZ), favorisant ainsi le transport préférentiel des radionucléides dans la roche hôte du COx. Ces incertitudes peuvent être de différentes origines (phénoménologiques, paramétriques, numériques...) et leur prise en compte passe par la bonne connaissance des phénomènes physiques et leur description, par les modèles adéquats, à travers l'analyse de données expérimentales.

Les codes **TH-Gaz** basés sur l'approche VER permettent de réaliser des modélisations à l'échelle de l'installation du stockage sur plusieurs centaines de milliers d'années (e.g., Kaempfer et al., 2014), à condition de faire appel à des codes fortement parallélisés (e.g., TOUGH2-MP ; Zhang et al., 2008). Les lois physiques utilisées dans ces modèles, comme le modèle de Van Genuchten (1980) pour la courbe de pression capillaire combiné à des modèles de courbes de perméabilités relatives à l'eau et au gaz (Mualem, 1976 ; Parker et al., 1987), ont fait l'objet d'études afin de caractériser leurs paramètres pour les différents matériaux présents dans le stockage (roche hôte, EDZ, bentonite, béton, etc.).

La plupart des modèles de migration de H<sub>2</sub> développés sur la base de cette approche (e.g., Kaempfer et al., 2014) ne prennent pas en compte certains mécanismes physiques (jugés négligeables) ou les considèrent avec une paramétrisation peu étayée, ce qui conduit à des incertitudes dans les résultats de modélisations actuelles, en particulier en régimes partiellement saturés en eau (avec faible présence d'air), mais aussi en milieux complètement saturés (montée en pression de l'hydrogène dissous).

En effet, plusieurs travaux montrent que la **pression capillaire d'entrée de gaz**<sup>7</sup> (notée  $P_{c,e}$ ) dans un milieu poreux saturé n'est pas négligeable et qu'elle peut impacter l'écoulement de l'eau en milieu poreux non saturé au voisinage de la saturation (Brooks et Corey, 1964; Vogel et Cislérova, 1988; Vogel et al., 2001; Ippisch et al., 2006). L'analyse de Harrington et al. (2017) des données mesurées de cette propriété sur des échantillons du COx a montré qu'elle est sujette à de grandes incertitudes, et qu'elle peut varier entre 1 MPa, pour des échantillons endommagés, à 5 MPa, pour des échantillons sains (intacts). La **pression de percée du gaz** dépasse largement la valeur de 5 MPa. Les mesures de la pression d'entrée et de la pression de percée du gaz par l'Andra (2012b) sur les échantillons du COx ont montré qu'elles sont inférieures à 2 MPa. Didier (2012) a réalisé différents essais avec différents types de gaz ( $H_2$ , He, Ar) et deux méthodes de mesure de  $P_{c,e}$  (méthode classique par paliers de pressions et méthode de pression résiduelle) sur plusieurs échantillons de COx sains et a montré qu'elle se situe entre 4.94 et 6.3 MPa ;

De même, le phénomène d'**hystérésis** en milieu poreux diphasique (e.g., Doughty, 2007, 2013 ; Trevisan et al., 2014 ; Cihan et al., 2017) ne peut pas être négligé. En effet, suivant la cinétique de production des gaz et les différents états de saturation de la roche hôte et des barrières ouvragées, ainsi que l'état de ventilation et le degré de remblaiement des galeries (entres autres facteurs), le stockage pourrait connaître des cycles de séchage et d'imbibition qui mettent en jeu le phénomène d'hystérésis dans les propriétés hydrodynamiques de la roche hôte et des barrières ouvragées. L'hystérésis se manifeste essentiellement par une dépendance des courbes de rétention et des perméabilités diphasiques à la cinétique de saturation en eau : imbibition ou drainage ("wetting" ou "drying"). De même, le phénomène de piégeage du gaz est souvent associé au phénomène d'imbibition en milieu poreux (Hesse et Woods, 2010 ; Krevor et al., 2011 ; Trevisan et al., 2014). Plusieurs auteurs ont mis en évidence expérimentalement l'importance du phénomène d'hystérésis sur les courbes de rétention de l'argile du COx (Pham et al., 2006 ; Boulin, 2008 ; Gérard, 2011 ; M'Jahad, 2012 ; Wan et al., 2013 ; Song, 2014 ; Menaceur et al., 2014 ; Yuan, 2017) et ses courbes de perméabilités à l'eau et au gaz (M'Jahad, 2012), ainsi que le piégeage du gaz air durant la phase post-injection dans le COx (Boulin, 2008). Les mesures de l'hystérésis ont été effectuées sous différentes conditions (état sec, état saturé, échantillon bloqué, échantillon libre) pour des échantillons de COx sains ou fissurés ;

Enfin, plusieurs expériences réalisées sur maquettes de laboratoire ou *in-situ* et (pour différentes tailles d'échantillons), montrent bien que les **interfaces** matérielles poreuses modifiées mécaniquement, développées soit aux parois de l'acier du chemisage au contact avec la bentonite (e.g., Gallé, 2000) ou entre la bentonite et le COx (e.g., Davy et al., 2009 ; Liu, 2013 ; Liu et al., 2015 ; Gatabin et al., 2016) ou entre le béton et le COx (e.g. Stavropoulou, 2017), représentent des voies préférentielles de transport du gaz plutôt que les matériaux de scellement (bentonite, béton). Autres exemples d'interfaces matérielles : cavités, vides, remblais, contact alvéole-galerie... Leur prise en compte dans un modèle de migration de gaz à grande échelle spatiale est nécessaire pour améliorer le calcul de sûreté de l'installation à long terme.

A part les trois phénomènes précités ci-dessus, d'autres phénomènes importants ont été souvent négligés ou considérés dans différents modèles mais indépendamment et de façon parfois incomplète, et doivent être testés, afin de déterminer leur impact sur la migration des gaz en milieu poreux argileux diphasique, à savoir : l'effet de la pression capillaire et de la température sur les équilibres de **dissolution/volatilisation de l'hydrogène** (Lassin et al., 2011 ; Dymitrowska et al., 2015); la **présence initiale de l'air**, qui pourrait modifier le taux de diffusion de l'hydrogène dans la phase gazeuse préexistante (du fait du changement des équilibres thermodynamiques aux temps initiaux); et la dépendance du **terme source** par rapport au degré de saturation en eau, due notamment à la consommation d'eau par la corrosion anaérobie (Avis et al., 2014).

Des questions se posent également sur la manière de représenter, du point de vue physique, l'**EDZ** et son interface avec la bentonite constitutive des scellements et bouchons, le transport de gaz au travers un milieu fracturé tel que l'EDZ plus au moins colmaté et, enfin, le transport de gaz par des chemins préférentiels dans des milieux à forte saturation en eau (Cuss et al., 2014).

---

<sup>7</sup> Ce paramètre est directement lié, dans une situation donnée, à la pression seuil du gaz qui permet le passage du gaz dans le milieu poreux. En partant d'un état totalement saturé en eau, si cette pression seuil de gaz est dépassée, on aboutit à un état désaturé (partiellement saturé) du milieu poreux. Cette pression capillaire d'entrée est prise en compte via la courbe de rétention et les perméabilités relatives à l'eau et au gaz. A ne pas confondre à la **pression de percée de gaz** (*breakthrough pressure*) qui correspond au stade de passage du gaz dans les microfissures créées par dilatation sous l'effet de la montée en pression du gaz dans le milieu (Didier, 2012 ; Andra, 2012b ; Harrington et al., 2017)



Par ailleurs, certaines observations expérimentales ne sont pas prises en compte dans les modèles en raison de difficultés numériques qu'elles engendrent ou de l'insuffisance de données. Par conséquent, les résultats des expériences *in situ* se révèlent difficiles à reproduire par modélisation sans ajustement ad-hoc des valeurs de paramètres (Charlier et al., 2013).

La non prise en compte dans les codes de calcul actuels (e.g., Abed et Sokołowski, 2019) d'une modélisation de transport de gaz à **grande échelle spatiale**, combinant à la fois les effets d'une pression d'entrée de gaz non nulle, de l'hystérésis et des déformations hydromécaniques couplées avec les fluides interstitiels, pourrait s'expliquer en partie par des difficultés d'implémentation numérique (tests de vérification et de validation), et des problèmes de convergence numérique lors de la résolution d'EDPs fortement non linéaires et couplées, sur des maillages non structurés, avec un fort contraste de paramètres entre matériaux adjacents au sein de l'ouvrage du stockage.

D'autres difficultés résident dans l'analyse de l'incertitude numérique due au maillage (Wendling et al., 2013a,b ; Wendling et al., 2019). Cependant, les difficultés sont également conceptuelles : les modèles équationnels permettant de prendre en compte à la fois tous ces phénomènes sont peu testés, et comportent des sous-modèles qui ne sont qu'incomplètement formulés ou difficiles à paramétrer (par exemple dans le couplage hydromécanique diphasique). Enfin, d'autres difficultés résident dans la mise en œuvre des méthodes probabilistes de propagation d'incertitudes, par exemple dans le cadre d'études de sensibilité mettant en jeu plusieurs paramètres dépendants (Ababou, 2008).

De nouvelles tentatives émergent actuellement dans le cadre du projet **EURAD** (Ahusborde et al., 2021 ; Levasseur et al., 2021) pour réaliser ce type d'étude à base physique, mais ces tentatives présentent quelques inconvénients. En effet, si certains codes numériques (e.g., Abed et Sokołowski, 2019) permettent de prendre en compte certains phénomènes physiques, d'autres ne le permettent pas et vice-versa. De même, certains phénomènes physiques ne sont modélisés par aucun des codes proposés, ou de manière très simplifiée, ce qui nécessite un changement important des algorithmes de résolution numérique. *A contrario*, dans certains codes, plusieurs phénomènes sont modélisés, implémentés et paramétrés selon une méthode trop complexe, limitant leur application à grande échelle spatiale.

De même, les incertitudes sur les paramètres de chacun des modèles décrivant ces phénomènes sont dues essentiellement à l'insuffisance de données expérimentales : données insuffisantes pour une calibration optimale des courbes de rétention d'eau et de perméabilité ; données insuffisantes sur la pression d'entrée ; données insuffisantes sur les coefficients hydromécaniques de la roche, de l'EDZ, et des matériaux de scellement.

Par ailleurs la roche hôte saine (COx) ainsi que les EDZs qui apparaissent aux différentes échelles (forages, alvéole, galerie) sont des milieux hétérogènes et/ou fracturés. Leurs variabilités spatiales à grande échelle ne sont pas toujours prises en compte, et suscitent plusieurs interrogations sur la manière de les représenter dans les calculs de sûreté de l'installation.

La principale originalité des travaux de recherche que je développe réside dans cette volonté de vouloir modéliser l'ensemble des phénomènes précités de façon simultanée afin de quantifier leur influence sur la migration de l'hydrogène dans des milieux poreux argileux au sein d'un stockage de déchets radioactifs. Ces travaux se baseront essentiellement sur la plateforme TOUGH développée par le *Lawrence Berkeley National Laboratory* (LBNL, Etats-Unis) et consisteront à les implémenter, les tester et évaluer leurs effets, tout en s'appuyant sur les données issues des plates-formes expérimentales et numériques auxquelles l'IRSN a l'accès à travers les consortiums et les projets internationaux auxquels il participe (DECOVALEX, ANDRA-PGZ, VSEAL, FORGE, EURAD...).

Les études de recherche présentées dans cette partie II de l'HDR ne prétendent pas apporter tous les éléments de réponse aux problèmes décrits plus haut sur la migration de  $H_2$  au sein de l'installation, mais de montrer qu'il est possible de réduire les incertitudes dues à certains phénomènes physiques négligés dans la modélisation si ces derniers sont pris en compte d'une manière adéquate. *A priori* seules les incertitudes dues au non prise en compte de la pression d'entrée de gaz et de l'hystérésis (phénomènes (i) et (ii)) seront étudiées et présentées ici. Si ces deux phénomènes ont été largement étudiés dans le cadre des études d'écoulement monophasique en phase liquide (eau) dans des milieux poreux non saturés (approximation de Richards), leur prise en compte dans les modèles d'écoulement en milieu poreux argileux diphasique liquide-gaz (eau- $H_2$ ), avec changement de phase liquide-gaz  $\leftrightarrow$  liquide, est très rare voire inexistante. Ceci est dû à la nécessité d'introduire la dynamique du gaz en milieu poreux argileux ainsi que son impact sur la microfissuration de ce dernier pour des pressions de gaz très élevées.

Les incertitudes dues au non prise en compte de l'apparition d'une interface mécaniquement modifiée, les incertitudes numériques, dues à la résolution numérique des EDPs sur des maillages structurés et non structurés, et les incertitudes dues aux paramètres inconnus ou mal estimés du modèle physique, ne seront pas traitées ici et seront essentiellement discutées dans la partie III (perspectives de recherche), cela afin d'orienter les études de recherche futures qui pourraient apporter des éléments de réponse adéquats.

Ainsi, les travaux présentés dans cette partie se déclinent sous forme de 3 chapitres :

- Le premier chapitre (**chapitre 6**) fournit une étude de sensibilité de l'écoulement diphasique à la pression d'entrée de gaz. Le modèle de VGM modifié par Vogel et al. (2001) et Ippisch et al. (2006) noté 'VGMPE' a été choisi pour l'établissement d'un modèle de pression d'entrée pour les courbes de rétention et de perméabilités relatives à l'eau et au gaz. Ce nouveau modèle a été implémenté dans le code RETC (Van Genuchten et al., 1991) qui a été modifié pour prendre en compte la perméabilité au gaz en plus des courbes de rétention et de perméabilité à l'eau dans l'ajustement des données expérimentales. Une autre approche d'ajustement basée sur une fonction multi-objectif a été testée. Le nouveau modèle a été implémenté dans le code iTOUGH2 à l'aide de deux méthodes de résolution numérique du problème mathématique du transfert (Méthode Pc ou PCM, Méthode Sg ou SGM). Après des tests de non-régression et de vérification des nouvelles fonctionnalités du code, l'impact de la pression d'entrée a été démontré sur un exemple d'ascension capillaire de l'eau dans une colonne d'argile verticale. Enfin, l'expérience in-situ PGZ1-GAZ (Harrington et al., 2012) d'injection de gaz dans la roche du COx a été modélisée, et l'effet de la pression d'entrée sur la migration de gaz dans l'argile du COx est discuté ;
- Le second chapitre (**chapitre 7**) présente dans un premier temps une revue critique extensive des modèles conceptuels de l'hystérésis en milieux poreux (Mualem 1974, 1984 ; Haverkamp et al., 2002 ; Doughty et al., 2007 ; Beriozkin et Mualem, 2018). Dans un second temps, la performance de ces modèles est évaluée et testée d'un point de vue théorique (hypothèses) mais aussi en les confrontant à des données mesurées pour divers matériaux poreux extraits de la littérature (ciments, sables, Bentonite MX80). Les avantages et les inconvénients des différents modèles hystérétiques sont discutés. Enfin, on développe par simulation numérique une modélisation d'une expérience d'écoulement diphasique de deux fluides non miscibles à l'échelle intermédiaire du laboratoire (dimensions métriques), nous permettant de mettre en œuvre et comparer les modèles de relations constitutives avec ou sans hystérésis, et aussi, avec ou sans piégeage capillaire. Les résultats de cette étude comparative mettent en lumière la nécessité de prendre en compte le phénomène d'hystérésis dans les modélisations d'écoulements multiphasiques en milieux poreux lorsque ceux-ci sont soumis à des cycles de dessèchement-humectation ;
- Le dernier chapitre (**chapitre 8**) présente une étude de modélisation des transferts de  $H_2$  aux différentes échelles spatiales de l'installation : alvéole HA, module d'une centaine d'alvéoles HA et quartier HA d'une douzaine de modules. Les modèles de l'alvéole et du module HA décrits dans les benchmarks de FORGE (Wendling et al., 2019) seront simulés par le code TOUGH2, mais cette fois-ci en considérant une pression d'entrée de gaz non nulle ( $P_{c,e} \neq 0$ ) dans ses différents composants matériels (COx, EDZ, bentonite, remblai). L'objectif de cette simulation est d'évaluer la différence de pression de  $H_2$  au voisinage de l'alvéole et des galeries remblayées du module par rapport à l'ancien cas étudié avec  $P_{c,e} = 0$ .

Par ailleurs, les résultats de calcul obtenus par ces modèles seront d'une grande utilité, d'une part pour s'assurer de leur implémentation par les outils adéquats (maillage, conditions initiales et aux limites, terme

source de  $H_2$ ...), en les comparant avec ceux des équipes internationales qui ont simulé ces benchmarks dans le cadre du projet FORGE, et d'autre part pour statuer sur les difficultés numériques qu'engendre la paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$  en présence des interfaces entre les scellements et le COx (saint et fracturé), ainsi que leur impact sur l'écoulement de la phase gazeuse au sein du réseau de galeries remblayées.

Enfin, le site du quartier HA (13 modules) de Cigéo proposé dans le cadre du dossier de sûreté 2016 sera modélisé d'une manière simple, mais conservatrice, en introduisant des hypothèses simplificatrices permettant de réduire le domaine du site à sa galerie principale (Saâdi et al., 2020). *A priori* les simulations ont été conduites avec une paramétrisation  $P_{c,e} = 0$  avec pour objectif d'estimer l'impact de l'effet piston du gaz  $H_2$  sur l'écoulement de l'eau (agent principal de transport de contaminants) dans la galerie principale, en particulier au voisinage du puits.

Les connaissances acquises permettront d'évaluer l'importance d'une pression d'entrée de gaz significative et du phénomène d'hystérésis dans les modèles capillaires choisis.

## 6. Pression d'entrée de gaz dans un écoulement diphasique liquide-gaz en milieu poreux

### Abstract

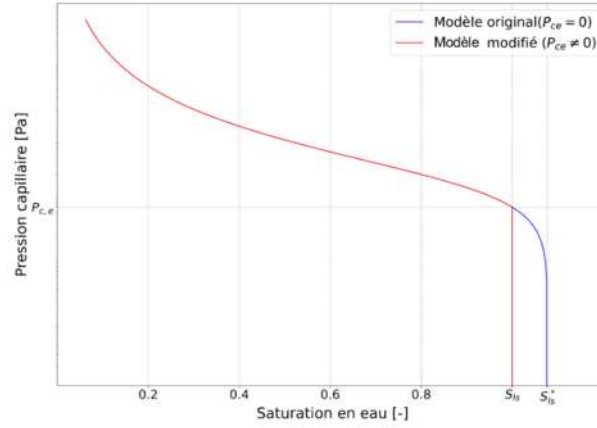
*In this chapter, a study on the sensitivity of a compositional two-phase flow problem to capillary entry pressure is presented. The commonly model of Van Genuchten – Mualem (VGM) modified by Vogel et al. (2001) and Ippisch et al. (2006), called 'VGMPE', has been chosen for the establishment of a capillary entry model of soil water retention and relative permeability to water and gas curves. Two methods of the optimization of the parameters of this model from experimental data are developed: the first one is a single objective function based on a modification of the RETC code (Van Genuchten et al., 1991), and the second one is a multi-objective function based on technics proposed by Twarakavi et al. (2008). The new model VGMPE has been implemented in the code iTOUGH2 by the help of two new numerical approaches (SG and PC methods) for solving the mathematical problem. Then, numerical verification by exact analytical solutions and benchmarks between codes on two examples of infiltration and capillary rise of water in sand and clay vertical columns are presented. Finally, the in-situ experiment PGZ1-GAZ (Harrington et al., 2012) of gas pulses injection in the clay rock COx is modelled, and the effect of capillary entry pressure on gas migration in this rock is discussed.*

Ce chapitre fournit une étude de sensibilité de l'écoulement diphasique liquide-gaz à la pression d'entrée de gaz. Le modèle de VGM modifié par Vogel et al. (2001) et Ippisch et al. (2006) noté 'VGMPE' a été choisi pour l'établissement d'un modèle de pression d'entrée pour les courbes de rétention et de perméabilités relatives à l'eau et au gaz. Deux méthodes d'ajustement des données expérimentales ont été développées pour optimiser les paramètres de ce nouveau modèle. La première est basée sur une fonction mono-objectif (Van Genuchten et al., 1991) et la seconde est basée sur une optimisation multi-objectif (Twarakavi et al., 2008). Le nouveau modèle a été implémenté dans le code iTOUGH2 à l'aide de deux méthodes de résolution numérique du problème mathématique du transfert (méthodes SG et PC), puis a été vérifié numériquement par des solutions analytiques exactes et des benchmarks entre codes sur des exemples d'infiltration et d'ascension capillaire de l'eau dans des colonnes de sable et d'argile verticales. Enfin, l'expérience in-situ PGZ1-GAZ (Harrington et al., 2012) d'injection de pulses de gaz dans la roche argileuse du COx a été modélisée, et l'effet de la pression d'entrée sur la migration de gaz dans cette roche a été discuté.

### 6.1 Modèle de propriétés hydrodynamiques VGMPE

Vogel et Cislérova (1988) sont les premiers à introduire la pression capillaire d'entrée non nulle  $P_{c,e}$  dans le modèle de van Genuchten VG (1980). Leur modèle a été amélioré par la suite par Vogel et al. (2001) et Ippisch et al. (2006), qui ont obtenu explicitement des formulations de courbes de rétention et de perméabilité à l'eau en

fonction de la saturation. Toutefois, ces formulations ont été proposées sans donner un fondement théorique derrière leur développement. Dans ce qui suit, le modèle de courbe de rétention de Vogel et al. (2001) et le modèle de courbe de perméabilité à l'eau de Vogel et al. (2001) et de Ippisch et al. (2006) seront testés et vérifiés, puis une expression analytique de la perméabilité au gaz sera dérivée à travers l'intégration du modèle capillaire VGM.



**Figure 6-1 - Illustration de la modification de Vogel et al. (2001) pour prendre en compte la pression d'entrée  $P_{c,e}$  dans le modèle de van Genuchten VG.**

Dans le modèle de Vogel et al. (2001) la courbe de rétention est prolongée au-delà de la saturation totale  $S_{ls}$ , par l'introduction d'un paramètre  $S_{ls}^* \geq S_{ls}$  dans le modèle capillaire (VG) comme illustré dans la Figure 6-1.

Le nouveau modèle peut s'écrire sous la forme suivante :

$$(6-1) \quad S_l(P_c) = \begin{cases} S_{lr} + \frac{S_{ls}^* - S_{lr}}{[1 + (\alpha P_c)^n]^m} & \text{if } P_c \geq P_{c,e} \\ S_{ls} & \text{if } P_c \leq P_{c,e} \end{cases}$$

Avec les paramètres  $S_{lr}$ ,  $S_{ls}$ ,  $n$ ,  $m$ ,  $\alpha = 1/P_{c0}$  ( $\text{Pa}^{-1}$ ) définis précédemment dans les équations (1-29)-(1-31).

Le paramètre introduit  $S_{ls}^*$  peut s'écrire en fonction de la pression d'entrée capillaire  $P_{c,e}$  et des autres paramètres du modèle sous la forme :

$$(6-2) \quad S_{ls}^* = S_{lr} + (S_{ls} - S_{lr}) \times [1 + (\alpha P_{c,e})^n]^m$$

Sachant que  $m = 1 - \frac{1}{n}$ , l'intégration de cette nouvelle expression  $S_l(P_c)$  (Eq. (6-1)) dans les expressions originales des modèles de Mualem (1976) et de Parker et al. (1989) pour les courbes de perméabilités à l'eau et au gaz, respectivement, permet d'écrire :

$$(6-3) \quad k_{r,l}(P_c) = \frac{k_l(S_l)}{k_{0,l}} = \begin{cases} \left[ \frac{S_{le}}{S_{le}^*} \right]^r \left[ \frac{1 - (1 - (S_{le}(P_c))^{\frac{1}{m}})^m}{1 - (1 - (S_{le}^*)^{\frac{1}{m}})^m} \right]^2 & \text{if } P_c \geq P_{c,e} \\ 1 & \text{if } P_c \leq P_{c,e} \end{cases}$$

$$(6-4) \quad k_{r,g}(P_c) = \frac{k_g(S_l)}{k_{0,g}} = \begin{cases} \left[ 1 - \frac{S_{le}}{S_{le}^*} \right]^{\tau'} \left[ 1 - \frac{1 - (1 - (S_{le}(P_c))^{\frac{1}{m}})^m}{1 - (1 - (S_{le}^*)^{\frac{1}{m}})^m} \right]^2 & \text{if } P_c \geq P_{c,e} \\ 0 & \text{if } P_c \leq P_{c,e} \end{cases}$$

où  $\tau$  et  $\tau'$  sont des paramètres adimensionnels représentant la tortuosité pour les perméabilités à l'eau et au gaz respectivement ; et  $S_{le} = \frac{S_l(P_c) - S_{lr}}{S_{ls} - S_{lr}}$  est la nouvelle expression de la saturation effective de la phase liquide, elle atteint sa valeur maximale  $S_{le}^*$  lorsque  $S_l = S_{ls}$ .

Les deux paramètres  $k_{0,l}$  ( $m^2$ ) et  $k_{0,g}$  ( $m^2$ ) ont été utilisés pour distinguer entre la perméabilité intrinsèque mesurée en conditions monophasiques en eau et la perméabilité intrinsèque mesurée en conditions monophasiques en gaz. Dans le cas des matériaux argileux et cimentaires, la perméabilité dépend de fluide utilisé. Théoriquement la perméabilité intrinsèque du milieu est un paramètre qui ne dépend pas du fluide écoulé. Cependant, dans le cas des barrières ouvragées, plusieurs auteurs (Pham et al., 2005 ; Davy et al., 2007 ; Boulin et al., 2008 ; M'Jahad et al., 2017) ont souligné que le rapport de différence entre la perméabilité à l'eau et au gaz peut dépasser un ordre de grandeur de  $10^3$ . Cette différence est faiblement due à l'effet de glissement de la phase gazeuse comme reporté dans Boulin et al. (2008) et Wang et al. (2016), qui peut être modélisé par l'équation de Klinkenberg (1941), mais elle est principalement due aux interactions chimiques entre l'eau et la matrice poreuse. En effet, la saturation en eau de l'argile du COx riche en smectite conduit à un gonflement de l'échantillon, ce qui peut colmater les fissures ou les macropores, et peut conduire à des perméabilités plus faibles que celles mesurées à l'état sec.

Le modèle VGMPE décrit par le système d'équations (6-1), (6-3) et (6-4) se réduit facilement au modèle VGM classique décrit par le système d'équations (1-29) (1-30) et (1-31) lorsque  $P_{c,e} = 0$ ,  $\tau = \tau' = \frac{1}{2}$  et  $k_{0,l} = k_{0,g} = k_0$ .

## 6.2 Méthodes d'optimisation des paramètres du modèle VGMPE

Dans des études précédentes (Andra, 2005 ; Gérard, 2011), les données expérimentales de courbes de rétention et des perméabilités à l'eau et au gaz ont été ajustées par des paramètres différents, et parfois par des modèles différents. A titre d'exemple ces études considéraient le modèle VGM pour les courbes de rétention et la perméabilité relative à l'eau, et une loi cubique pour la perméabilité au gaz. Cette méthode d'ajustement n'a aucun fondement théorique et parfois contredit les modèles capillaires conventionnels.

Dans cette étude, on propose deux méthodes pour l'optimisation du vecteur de paramètres  $\mathbf{P} = (m, \alpha, S_{ls}, S_{lr}, k_{0,l}, \tau, k_{0,g}, \tau', P_{c,e})$ , unique pour les trois courbes  $S_l(P_c)$ ,  $k_l(P_c)$ , et  $k_g(P_c)$  décrites par les Eqs. (6-1), (6-3) et (6-4), à partir des données expérimentales, tout en respectant les données mesurées dans chaque fonction objective.

La première méthode est basée sur une optimisation simultanée mono-objectif avec une seule fonction coût, notée SOF (*Single Objective Function*) et sera implémentée dans le code RETC (Van Genuchten et al., 1991). La seconde méthode est basée sur une optimisation multi-objectif des trois courbes de propriétés hydrauliques en utilisant le principe d'optimalité de Pareto (Hochman et Rodger, 1969). Cette dernière est notée MOF (Multi-Objective Function).

### 6.2.1 Optimisation mono-objectif

Pour généraliser l'optimisation simultanée du vecteur de paramètres  $\mathbf{P}$  dans le code RTEC, le coût de la fonction perméabilité au gaz  $k_{r,g}(S_l)$  a été ajouté à ceux des deux fonctions  $P_c(S_l)$  et  $k_{r,l}(S_l)$ . Ainsi, la nouvelle version de la fonction coût à minimiser, considérant les mesures  $(S_{l,i})_{i=1 \dots N_{dataS}}$ ,  $(k_{l,i})_{i=1 \dots N_{datak_l}}$ , et  $(k_{g,i})_{i=1 \dots N_{datak_g}}$ , s'écrit sous la forme :

$$(6-5) \quad O_{bj}(\mathbf{P}) = O_{bj}(\mathbf{P})_{S_l} + W_{k_l} O_{bj}(\mathbf{P})_{k_l} + W_{k_g} O_{bj}(\mathbf{P})_{k_g}$$

Avec

$$(6-6) \quad O_{bj}(\mathbf{P})_{S_l} = \frac{MSE\left([\hat{S}_{l,i}(\mathbf{P}) - S_{l,i}]_{i=1 \dots N_{dataS}}\right)}{S_{l,data}^2}$$

$$(6-7) \quad O_{bj}(\mathbf{P})_{k_l} = \frac{MSE\left([\log(\hat{k}_{l,i}(\mathbf{P})) - \log(k_{l,i})]_{i=1 \dots N_{datak_l}}\right)}{\log(k_{l,data})^2}$$

$$(6-8) \quad O_{bj}(\mathbf{P})_{k_g} = \frac{MSE\left([\log(\hat{k}_{g,i}(\mathbf{P})) - \log(k_{g,i})]_{i=1 \dots N_{datak_g}}\right)}{\log(k_{g,data})^2}$$

Où  $N_{dataS}$ ,  $N_{datak_l}$ , et  $N_{datak_g}$  désignent respectivement le nombre de données mesurées pour les courbes de rétention, la perméabilité à l'eau, et la perméabilité au gaz. Les fonctions  $\hat{S}_l(\mathbf{P})$ ,  $\hat{k}_{l,i}(\mathbf{P})$ , et  $\hat{k}_{g,i}(\mathbf{P})$  désignent respectivement les modèles ajustés des courbes de rétention, de la perméabilité à l'eau et de la perméabilité au gaz, et  $W_{k_l}$ ,  $W_{k_g}$  sont des facteurs de pondération qui permettent de donner plus ou moins de poids à une propriété hydraulique spécifique par rapport aux deux autres propriétés.

En réalité, le problème consiste en une optimisation multi-objectif. Ces différents objectifs peuvent parfois apparaître antagonistes. C'est pour cette raison, que nous proposons par la suite une technique d'optimisation multi-objectif pour caractériser les paramètres hydrauliques d'un milieu poreux.

## 6.2.2 Optimisation multi-objectif

Le problème d'optimisation multi-objectif consiste à prendre en compte les trois fonctions objectives définies par le système d'équations (6-6), (6-7), (6-8) sous un ensemble de  $m \in \mathbb{N}$  contraintes sur les paramètres. En conséquence, le problème peut être écrit sous la forme :

$$(6-9) \quad \min_{\mathbf{P} \in \mathbb{R}^q} y = f(\mathbf{P}) = (f_1(\mathbf{P}), f_2(\mathbf{P}), f_3(\mathbf{P}))$$

sous contraintes  $g(\mathbf{P}) = (g_1(\mathbf{P}), g_2(\mathbf{P}) \dots g_n(\mathbf{P})) \leq 0$

où  $\mathbf{P} = (m, \alpha, S_{ls}, S_{lr}, k_{0,l}, \tau, k_{0,g}, \tau', P_{c,e}) \in X \subseteq \mathbb{R}^q$

$f_1$ ,  $f_2$ , et  $f_3$  désignent respectivement les fonctions de coût des courbes de rétention, de la perméabilité à l'eau et de la perméabilité au gaz. La fonction  $g$  traduit les contraintes sur les  $q$  paramètres du vecteur  $\mathbf{P}$ , et  $X$  désigne l'espace de décision de la solution  $\mathbf{P}$ .

La définition de la solution optimale dans le cas de ce problème multi-objectif dépend de la façon dont les objectifs sont comparés et ordonnés. Contrairement à un problème mono-objectif où les solutions peuvent être totalement ordonnées, pour un problème multi-objectif la solution dépend de la façon dont les possibilités sont comparées (Irisarri, 2009).



Dans notre étude, nous utiliserons le **principe d'optimalité de Pareto**, en particulier la méthode utilisée par Twarakavi et al. (2008) pour déterminer la solution optimale qui satisfait le compromis entre les objectifs. Ce point correspond à la distance entre l'espace des solutions optimales et le centre du plan des objectifs normalisés comme expliqué dans la Figure 6-2.

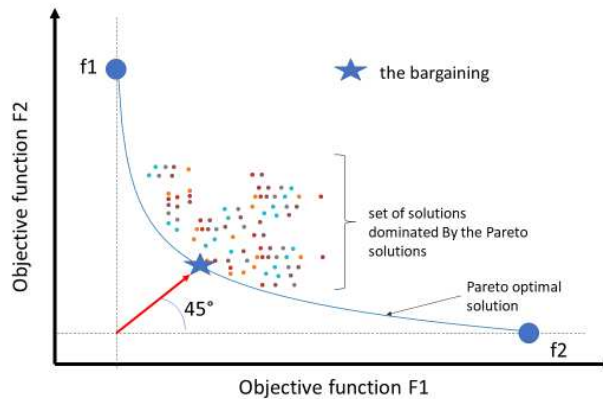


Figure 6-2 - Schématisation du choix de la solution optimale de Pareto dans un espace de deux objectifs  $f_1$  et  $f_2$ .

La méthode MOF sera basée sur l'algorithme NSGA-II (Kalyanmoy et al., 2002) et implémentée sous Python en utilisant la bibliothèque Python Platypus de Hadka (2015).

Les deux méthodes SOF et MOF seront appliquées ultérieurement aux données du COx dans le cadre de la validation expérimentale du code développé à base du modèle de propriétés hydrodynamiques VGMPE. Elles constitueront un outil de caractérisation des propriétés hydrauliques des barrières ouvragées dans le cadre des simulations de grandes échelles spatiales et temporelles pour les travaux des expertises de l'IRSN.

### 6.3 Implémentation du modèle VGMPE dans TOUGH - Vérification numérique

Deux approches numériques ont été développées et implémentées dans le code iTOUGH2/EOS3 (Finsterle, 2004) pour prendre en compte une pression d'entrée non nulle (modèle VGMPE). La première approche consiste en un changement des variables primaires. La deuxième approche repose sur l'introduction de la pression d'entrée d'une manière implicite à travers les conditions d'équilibre thermodynamiques sans changement de variables primaires (Battistelli et al., 2017).

Dans ce qui suit, le développement de ces deux approches sera discuté puis des tests de non-régression et de vérification seront présentés afin de s'assurer de la validité des modifications apportées au code. Un benchmark sur un cas test de montée capillaire de l'eau dans une colonne d'argile (Vogel et al., 2001), entre le code iTOUGH2/EOS3 et le code UNSAT 1D (Renou, 2020) sera également présenté pour conforter notre développement.

#### 6.3.1 Méthode $P_c$ : nouvelles variables primaires (PCM)

Puisque le nouveau modèle de la pression d'entrée VGMPE introduit une fonction inversible de la courbe de rétention  $S_l(P_c)$ , il faut utiliser la pression capillaire (ou la pression de la phase liquide) comme l'une des variables primaires, cela afin de résoudre dans de bonnes conditions les équations de transfert en prenant en compte une pression d'entrée non nulle  $P_{c,e} > 0$ . Pour cela, la variable pression capillaire  $P_c$  est utilisée comme variable primaire au lieu de  $S_g$  dans le régime de transfert diphasique, comme expliqué dans le Tableau 6-1.

Tableau 6-1 - Changement des variables primaires implémenté dans le module EOS3 selon la méthode  $P_c$ .

État thermodynamique	Version originale	Version modifiée
Monophasique	$(P_\alpha, X_l^{air}, T); \alpha \in \{l, g\}$	$(P_\alpha, X_l^{air}, T); \alpha \in \{l, g\}$
Diphasique	$(P_g, S_g, T)$	$(P_g, P_c, T)$

➤ *Test de « non-régression » et vérification numérique*

Afin de vérifier ce changement effectué dans le code, un test d'infiltration de l'eau dans une colonne de sable a été étudié. La solution de ce problème avec la nouvelle version du code a été comparée avec la version originale du code et la solution semi-analytique de Philip (1957).

On considère une colonne de sable homogène initialement en équilibre avec une pression capillaire de  $-61.5$  cm d'eau. Puis, une pression capillaire de l'ordre de  $-23.73$  cm d'eau est appliquée en haut de la colonne, pour permettre une infiltration capillaire de l'eau. Dans ce test, on considère que l'air est à pression atmosphérique constante avec un transfert libre de gaz ( $k_{r,g} = 1.0$ ). Les courbes de rétention et de perméabilité relative à l'eau sont issues de Haverkamp et al. (1977).

Les résultats de simulation avec la version originale du code, la version modifiée du code, et la solution semi-analytique de Philip (1957) sont comparés dans la Figure 6-3. L'accord entre les trois solutions est remarquable, ce qui valide les implémentations dans le code iTOUGH2/EOS3. Cette nouvelle version va permettre par la suite d'implémenter directement le modèle VGMPE dans la routine de pression capillaire dénotée PCAP (Finsterle, 1999).

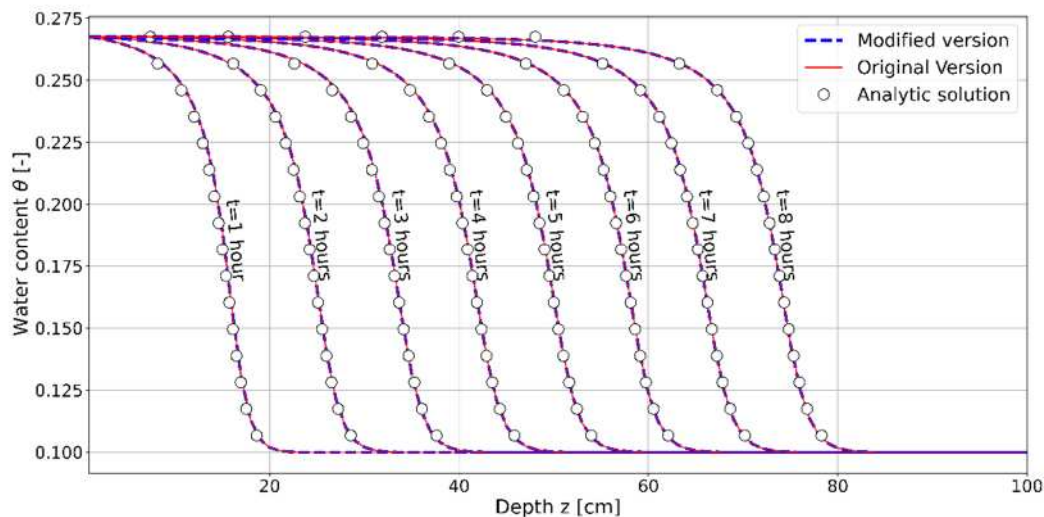


Figure 6-3 - Comparaison des profils de teneur en eau ( $\theta$ ) en fonction de la profondeur ( $z$ ) à différents temps  $t$ , calculés à partir du test d'infiltration d'eau dans le sable de Grenoble avec la nouvelle version de iTOUGH2/EOS3, la version originale de iTOUGH2/EOS3, et la solution semi-analytique de Philip.

### 6.3.2 Méthode $S_g$ : prise en compte de la pression d'entrée dans l'équilibre thermodynamique (SGM)

Cette méthode est basée sur la condition thermodynamique de changement de phase pour implémenter la pression d'entrée dans le code iTOUGH2-EOS3. Elle a été implémentée par Battistelli et al. (2017) pour introduire

la formule de Brooks & Corey (1964, 1966) dans le code TOUGH2 et pour simuler des problèmes d'écoulements dans des réservoirs géothermiques. Dans leur approche, la condition thermodynamique régit la transition d'un régime monophasique en liquide à un régime diphasique liquide-gaz et vice versa. Ainsi, la transition d'un régime monophasique à un régime diphasique dans le cas d'une pression d'entrée non nulle,  $P_{c,e}$ , est exprimée par :

$$(6-10) \quad P_g \geq P_l + P_{c,e} \Leftrightarrow X_l^{air} \geq \frac{1}{H_c} (P_l + P_{c,e} - P_{sat}(T))$$

où  $H_c$  ( $\text{Pa}^{-1}$ ) est l'inverse de la constante de Henry,  $P_{sat}(T)$  est la pression de vapeur d'eau saturante, qui est une fonction de la température  $T$  ( $^{\circ}\text{C}$ ). La pression partielle de  $\text{H}_2$  dissout dans la phase liquide est exprimée par la loi de Henry (Eq. (1-8)).

#### 6.4 Expérience numérique d'ascension capillaire de l'eau dans une colonne d'argile verticale (Vogel et al., 2001)

Pour vérifier les modifications apportées au code iTOUGH2/EOS3, l'expérience numérique de Vogel et al. (2001) pour la montée capillaire de l'eau dans une colonne d'argile a été simulée en considérant une pression d'entrée capillaire non nulle.

L'objectif ici est de comparer les résultats des simulations obtenus par le code iTOUGH2/EOS3 modifié à ceux obtenus par un code 1D monophasique en eau (UNSAT 1D ; Renou, 2020) pour le cas de cette expérience numérique.

Cette expérience consiste en une colonne d'argile de 1 m de long, initialement en équilibre hydraulique avec une pression capillaire de -10 m imposée en bas de la colonne. Ensuite, une condition à la limite de pression capillaire nulle ( $S_l = 1$ ) est imposée au bas de la colonne pour produire une montée capillaire de l'eau. Le gaz (air) est supposé rester à pression atmosphérique ("phase libre"), avec  $k_{r,g} = 1$ . Les propriétés hydrauliques de l'argile étudiée dans ce test sont issues de Vogel et al. (2001) et présentées dans la Figure 6-4. L'introduction d'une pression d'entrée non nulle dans le modèle de VGM n'affecte pas énormément les courbes de rétention. Tandis que la courbe de la perméabilité à l'eau est très sensible à l'introduction d'une pression d'entrée non nulle. Cela est dû à la grande sensibilité de la formulation de la perméabilité à l'eau au voisinage de la saturation avec le modèle VGM (Stephans et Rehfeldt, 1985 ; van Genuchten et al., 1991).

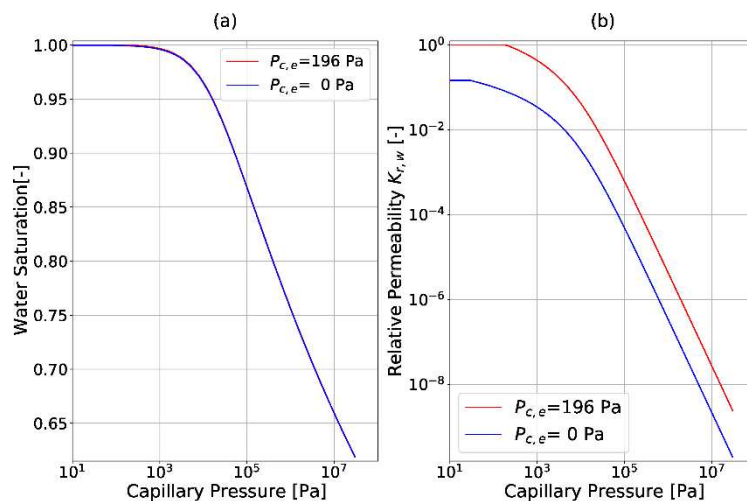


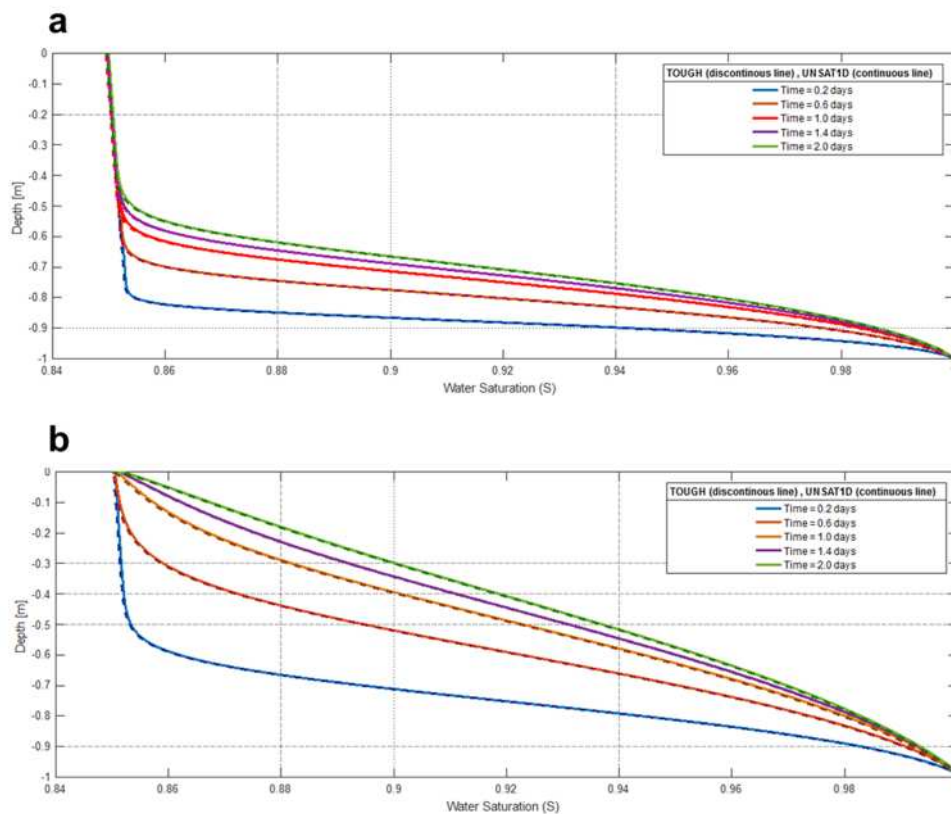
Figure 6-4 - Propriétés hydrauliques du sol argileux issues de Vogel et al. (2001) avec  $P_{c,e} = 196 \text{ Pa}$  et  $P_{c,e} = 0$ . (a) Courbes de rétention. (b) Perméabilités à l'eau.

La simulation a été réalisée avec un maillage uniforme d'épaisseur 0.1 cm et un pas de temps maximal de 100 secondes.

➤ Vérification du schéma numérique PCM

La Figure 6-5 présente les courbes de  $S_l(z, t)$  simulés à différents temps par iTOUGH2/EOS3-PCM (courbes discontinues) et par les deux modèles VGM ( $P_{c,e} = 0$ , Figure 6-5a) et VGMPE ( $P_{c,e} = 196$  Pa, Figure 6-5b). La différence sur l'avancement du front de saturation tout au long de la colonne est significative. L'erreur relative dépasse 65 % (erreur absolue > 35 cm). Cette différence se traduit également par un flux de montée capillaire de l'eau calculé par le modèle VGMPE plus élevé que celui calculé par le modèle VGM (Amri, 2021), puisque la perméabilité à l'eau est plus grande pour le modèle VGMPE ( $P_{c,e} = 196$  Pa) que pour le modèle VGM ( $P_{c,e} = 0$ ), en particulier au voisinage de la saturation (Figure 6-4b). Sur la Figure 6-5 sont également tracés les profils  $S_l(z, t)$  simulés à différents temps par le code UNSAT 1D (courbes continues). Les deux codes simulent les mêmes résultats, ce qui confirme la bonne implémentation de la méthode PCM dans le code iTOUGH2/EOS3.

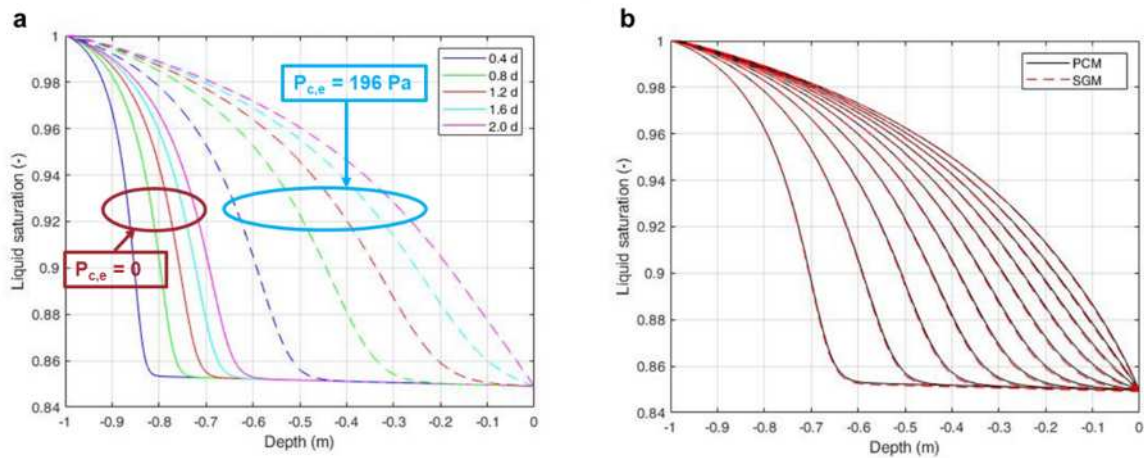
Une autre comparaison (Amri, 2021) entre les flux de montée capillaire simulés en bas de la colonne par iTOUGH2/EOS3-PCM, UNSAT 1D et BIGFLOW 3D (Ababou et Bagtzoglou, 1993) avec le modèle VGM ( $P_{c,e} = 0$ ) a montré que la différence entre les trois flux est acceptable et qu'ils présentent la même tendance de décroissance cubique, qui tend vers une valeur finie de flux.



**Figure 6-5 - Profils de degré de saturation en eau  $S_l(z, t)$  simulés aux différents temps par le code UNSAT 1D (courbes continues) et le code iTOUGH2/EOS3, méthode PCM (courbes discontinues). (a) Simulations avec une pression d'entrée nulle. (b) Simulations avec une pression d'entrée non nulle ( $P_{c,e} = 196$  Pa).**

➤ Vérification du schéma numérique SGM

L'effet de la pression d'entrée capillaire non nulle sur la montée capillaire de l'eau dans la colonne d'argile est également bien démontré par les résultats simulés par iTOUGH2/EOS3-SGM (Figure 6-6a). Ces profils simulés par la méthode SGM, reproduisent parfaitement ceux simulés précédemment par la méthode PCM (Figure 6-6b).



**Figure 6-6 - Profils de degré de saturation en eau  $S_l(z, t)$  simulés aux différents temps par le code iTOUGH2/EOS3-SGM : (a)  $P_{c,e} = 0$  (lignes continues) vs  $P_{c,e} = 196$  Pa (lignes discontinues). (b) PCM (lignes noires continues) vs SGM (lignes rouges discontinues) pour le cas  $P_{c,e} = 196$  Pa.**

## 6.5 Validation expérimentale sur l'expérience in-situ PGZ1-GAZ

Cette expérience réalisée à l'échelle d'un forage au laboratoire souterrain de Bure (Meuse/Haute-Marne, France) avait pour objectif la caractérisation des mécanismes et des propriétés de transferts des gaz dans la formation argileuse du COx.

Des modélisations de l'expérience PGZ1-GAZ ont déjà été proposées par de La Vaissière et al. (2011, 2014) et Charlier et al. (2013). Cependant, ces auteurs ne prenaient pas en compte une pression d'entrée non nulle dans leur analyse des propriétés hydrauliques (i.e., les trois courbes  $S_l(P_c)$ ,  $k_l(P_c)$  et  $k_g(P_c)$ ). En plus, l'analyse des données expérimentales de ces propriétés n'était pas pertinente puisque :

i) L'ajustement des paramètres est effectué sur des données de courbes de perméabilités absolues mesurées en termes de degré de saturation en phase liquide  $S_l$  (i.e.,  $k_l(S_l)$  et  $k_g(S_l)$ ). Ces données présentent une dispersion importante à cause de la conversion de mesures en  $P_c$  (mesure directe de l'humidité relative) à des valeurs en  $S_l$  (Andra, 2012a),

ii) Ces courbes mesurées ont été ajustées par des fonctions mathématiques indépendamment l'une de l'autre, et sans aucun fondement physique, pourtant certains paramètres optimisés sont communs à ces fonctions.

En outre, même si la prise en compte de la convergence de la roche au niveau de l'espace annulaire entre l'EDZ et le filtre (cf. § 6.5.1 ci-après) par un modèle élastique de déformation du COx et son EDZ (Charlier et al., 2013) a permis d'améliorer sensiblement les résultats, le calage de la porosité de la chambre, de la condition initiale dans la chambre, et des perméabilités intrinsèques du COx et de l'EDZ, était nécessaire pour reproduire la pression de gaz mesurée dans la chambre.

L'objectif de cette étude sera, d'une part, la validation, sur les données expérimentales issues de cette expérimentation, des changements effectués dans le code iTOUGH2/EOS3, et d'autre part de quantifier la différence entre les résultats de simulation en diphasique avec  $P_{c,e}$  nulle et non nulle en considérant les remarques (i) et (ii) précitées; cela afin d'obtenir une meilleure caractérisation des propriétés hydrodynamiques du COx.



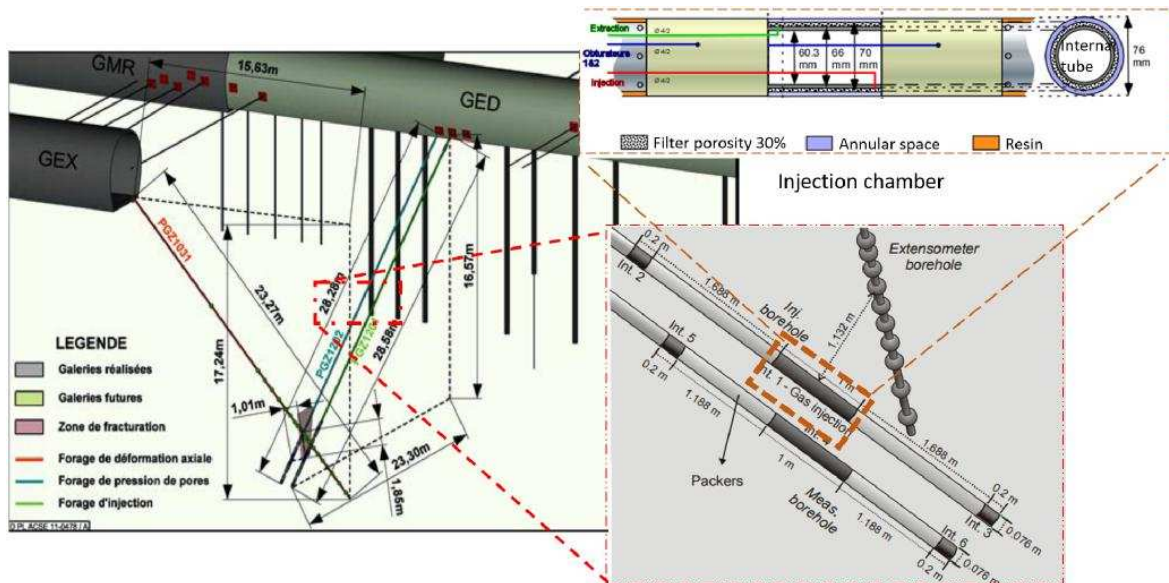


Figure 6-7 - Schématisation des galeries et des conduites dans le laboratoire souterrain de Bure avec un zoom sur la conduite de l'expérience PGZ1-GAZ et la chambre d'injection (de La Vaissière, 2011, 2014).

Les simulations numériques par les deux modèles de propriétés hydrauliques du COx et de l'EDZ, VGM ( $P_{c,e} = 0$ ) et VGMPE ( $P_{c,e} \neq 0$ ), seront comparées, et l'effet de la pression d'entrée sur le transfert de gaz dans l'argile du COx saturée (ou quasi-saturée) sera discuté.

### 6.5.1 Protocole expérimental

L'expérience PGZ1-GAZ consiste en 2 forages parallèles (PGZ1201, PGZ1202) et un forage incliné PGZ1031 comme illustré dans la Figure 6-8 dont les caractéristiques sont décrites en détails dans Harrington et al. (2012).

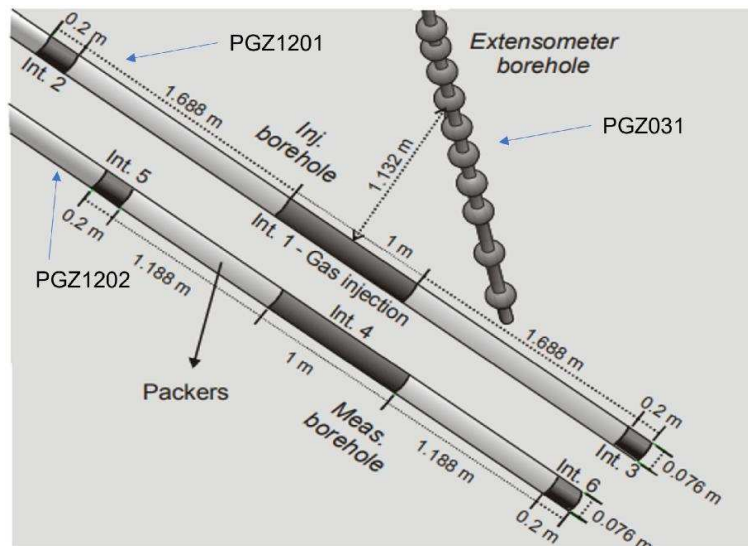


Figure 6-8 - Les trois forages installés dans l'expérience PGZ1-GAZ (Harrington et al., 2012).

Dans cette étude, on s'intéresse en particulier au forage **PGZ1201** (longueur de 28.6 m, et inclinaison de 350°) dédié à l'injection du gaz. La chambre d'injection de gaz se situe à l'intervalle 2 (PGZ1201\_PRE02) du forage. Deux autres intervalles notés PGZ1201\_PRE01 et PGZ1201\_PRE03 sont dédiés à la mesure de la pression interstitielle de l'eau.



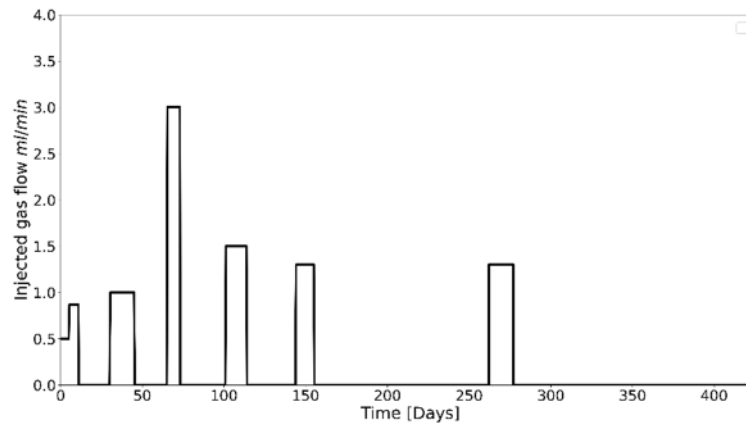


Figure 6-9 - Flux d'injection de l'azote  $N_2$  gazeux au cours de l'expérience PGZ1-GAZ (de La Vaissière et Talandier, 2012).

La phase d'injection GAZ1 a débuté en février 2010 et s'est achevée en mai 2011. Elle comprenait six phases d'injection de débits constants de l'azote gazeux ( $N_2$ ), chacun d'une durée de 7 à 15 jours, suivis de phases de récupération de la pression (chacune de 19 à 146 jours), Figure 6-9. Durant la phase d'injection, la pression de ce gaz dans la chambre (Intervalle 2 du forage PGZ1201, Figure 6-8) a été mesurée.

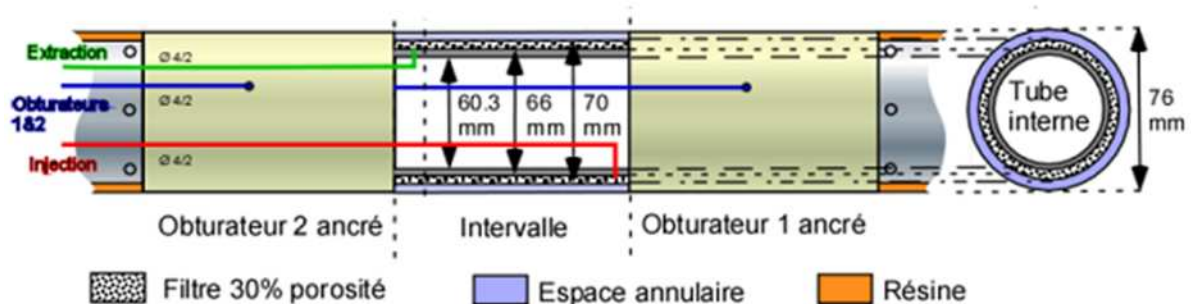


Figure 6-10 - Schématisation de la chambre d'injection de gaz (de La Vaissière et Talandier, 2012).

Techniquement, l'injection de gaz s'est effectuée par le tube rouge (Figure 6-10), à travers un filtre d'une porosité de 30%, dans l'espace annulaire entre le filtre et la roche. Il faut noter qu'il y aura une convergence de la roche au niveau du filtre ; cette convergence est freinée par les packers de compressibilité maximale de 2% à 3%. Dans l'hypothèse d'un milieu indéformable, on néglige la convergence de la roche. La porosité équivalente de la chambre  $\phi_{eq}$  est calculée comme étant le rapport du volume total de la chambre accessible au gaz ( $1584 \text{ cm}^3$ ) au volume géométrique de l'intervalle 2 d'injection de gaz (de La Vaissière et Talandier, 2012).

### 6.5.2 Le modèle mathématique

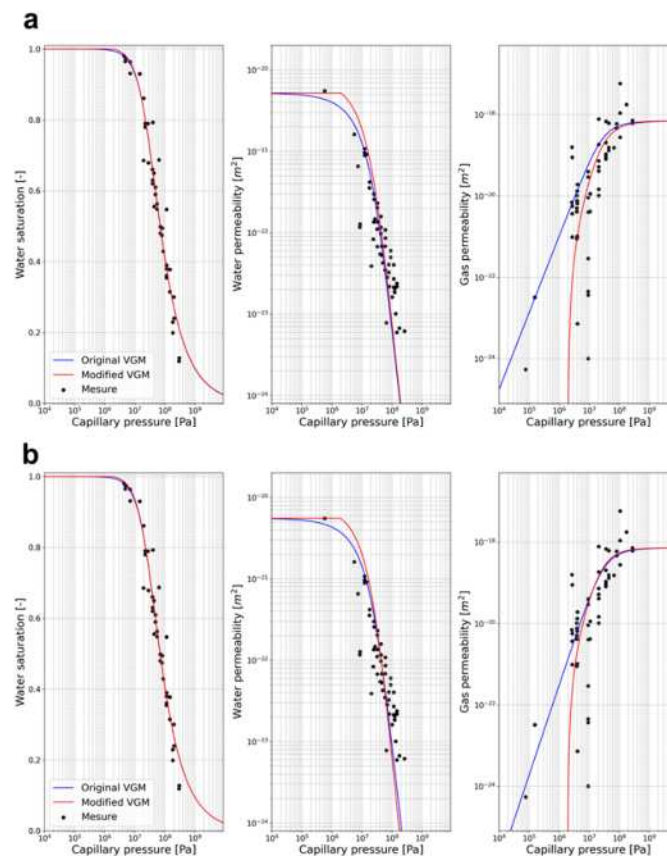
Pour décrire les propriétés hydrauliques des différents composants du forage PGZ1201 et leurs géométries modélisées, quelques hypothèses et approximations étaient nécessaires. En effet :

- **La chambre**, qui correspond à un intervalle de 1 m constitué d'un filtre d'une porosité de 30%, d'un espace annulaire (vide) et d'une conduite interne en acier imperméable (Figure 6-10), est modélisée comme un macroporeux, avec des caractéristiques hydrauliques  $S_l(P_c)$ ,  $k_{r,l}(P_c)$ , et  $k_{r,g}(P_c)$  particulières (Sentís, 2014; Saàdi et al., 2020) et une porosité équivalente  $\phi_{eq} = 0.3492$  correspondant au volume initial des vides de

1584 cm<sup>3</sup> dans un volume total géométrique de 4536 cm<sup>3</sup>, constitué de l'espace annulaire (vide), du filtre poreux et des canalisations du gaz (de La Vaissière, 2011);

- **Les packers**, en acier inoxydable, conçus pour une différence de pression de 18 MPa dans un forage de 76 mm, sont remplacés par une condition à la limite d'un flux nul à cause de leur très faible perméabilité ;
- **L'EDZ** d'épaisseur 4 cm se distingue de la **roche intacte** du COx uniquement par une perméabilité intrinsèque plus élevée de l'ordre de  $6.52 \times 10^{-18}$  m<sup>2</sup> (de La Vaissière, 2011). La partie modélisée de la roche est sous forme d'un cylindre de hauteur  $h = 12.968$  m et de rayon  $R = 7.3$  m.

Les deux modèles de propriétés hydrauliques VGM ( $P_{c,e} = 0$ ) et VGMPE ( $P_{c,e} \neq 0$ ) seront testés pour le cas du COx durant cette étude. Leurs paramètres ont été optimisés par les deux méthodes SOF et MOF (cf. § 6.2) en les ajustant aux données expérimentales de courbes de rétention et de perméabilités relatives à l'eau et au gaz du COx issues de Gérard (2011). Les résultats d'ajustement par les deux modèles et par les deux méthodes SOF et MOF sont présentés, Figure 6-11a et Figure 6-11b, respectivement. Les paramètres issus de cet ajustement sont présentés dans le Tableau 6-2. Les deux méthodes donnent des résultats presque semblables. En revanche, Comme montré par Amri (2021), la méthode MOF permet d'avoir un bon ajustement sur les trois objectifs de perméabilités et de la courbe de rétention. La méthode SOF donne un score de courbe de rétention  $NRMSE(S_l(P_c))$  semblable à celui de la fonction MOF mais fourni un score médiocre sur  $NRMSE(\log(k_l(P_c)))$ ,  $NRMSE(\log(k_g(P_c)))$ .



**Figure 6-11 - Optimisation simultanée des propriétés hydrauliques de l'argile du COx (courbe de rétention  $S_l(P_c)$ , et courbes de perméabilités absolues à l'eau  $k_l(P_c)$  et au gaz  $k_g(P_c)$ ) avec les deux modèles VGM et VGMPE et par les deux méthodes d'ajustement : (a) fonction mono-objectif (RETC) ; (b) fonction multi-objectif. Les données mesurées sont issues de Gérard (2011).**

Tableau 6-2 - Paramètres des deux méthodes d'ajustement des propriétés hydrauliques du COx.

	Optimisation mono-objectif		Optimisation multi-objectif	
	VGM	VGMPE	VGM	VGMPE
$P_{c,e}$ (MPa)	0	1.997	0	1.962
$n$	1.636	1.63	1.648	1.648
$\alpha$ (Pa <sup>-1</sup> )	$3.76 \times 10^{-08}$	$3.86 \times 10^{-08}$	$3.63 \times 10^{-08}$	$3.747 \times 10^{-08}$
$S_{ls}$	1	1	1	1
$S_{lr}$	0	0	0	0
$\tau'$	0.517	0.482	0.553	0.398
$\tau$	0.373	0.574	0.107	0.904
$k_{0,g}$ (m <sup>2</sup> )	$2.12 \times 10^{-19}$	$2.12 \times 10^{-19}$	$7.35 \times 10^{-19}$	$7.35 \times 10^{-19}$
$k_{0,l}$ (m <sup>2</sup> )	$5.22 \times 10^{-21}$	$5.22 \times 10^{-21}$	$5.56 \times 10^{-21}$	$5.56 \times 10^{-21}$

Vue l'étendu du domaine, on néglige l'effet gravitaire face à l'effet capillaire, et on considère une géométrie 2D axisymétrique autour de l'axe Oz.

Initialement, la roche est supposée saturée en eau, avec une pression hydrostatique de 4.5 MPa. Le volume d'eau initialement injecté dans la chambre correspond à une saturation en eau de 0.225 et une pression de gaz de 4 MPa (de La Vaissière et al., 2014). A la frontière latérale de rayon R = 10 m et aux bases du domaine cylindrique (z = 0 et z = 12 m), une pression hydrostatique de 4.5 MPa est imposée. Enfin, une condition de flux nul a été fixée sur la frontière de la chambre et les frontières des interfaces Packers-EDZ.

Le maillage du domaine est quadrilatéral rectangulaire (e.g., Figure 6-12). Il est très raffiné au niveau de la chambre et de l'EDZ.

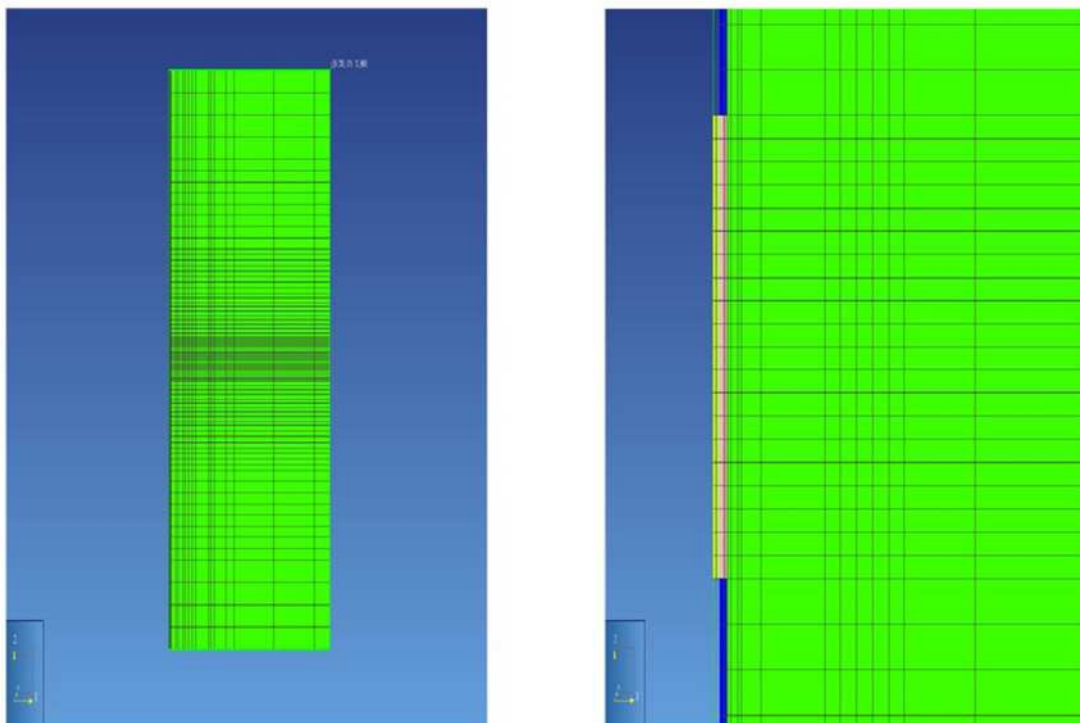


Figure 6-12 - Visualisation sous PetraSim de la géométrie radiale 2D discrétisée par MESHMAKER (à gauche) et zoom sur le maillage de la chambre (couleur jaune) et de l'EDZ (couleur magenta : en face de la chambre ; couleur bleu : en face des packers).

### 6.5.3 Résultats des simulations PGZ1-GAZ

#### ➤ *Etude numérique simplifiée des schémas PCM et SGM*

La durée maximale de la simulation est de 423 jours, elle correspond à la durée de l'expérience PGZ1-GAZ. Les simulations numériques ont été réalisées avec un schéma de pondération amont (*upstream weighting scheme*) de la perméabilité et de la mobilité internodales, et avec un pas de temps maximal de 9600 s. Trois maillages de 1976, 2917 et 5230 éléments ont été choisis afin d'étudier la sensibilité de la solution numérique au maillage et pour statuer sur la performance des méthodes numériques  $P_c$  (PCM) et  $S_g$  (SGM) pour les deux modèles VGM et VGMPE en termes de temps de calcul CPU, du nombre total de pas de temps et du nombre total d'itérations de Newton-Raphson NR (Tableau 6-3).

Les essais numériques réalisés en considérant une moyenne harmonique de la perméabilité et de la mobilité entre les centres de deux éléments adjacents ont montré que les grandeurs des variables de pression du gaz et de flux peuvent changer mais l'effet de la pression d'entrée de gaz est presque le même. En revanche, pour tout schéma de pondération (amont, harmonique ou arithmétique), plus le maillage est raffiné plus la pression du gaz simulée s'approche de celle mesurée dans la chambre.

Une différence significative a été observée sur le temps de calcul CPU et sur le nombre total d'itérations de Newton-Raphson pour les trois maillages testés. En effet, pour des calculs par le modèle VGM avec  $P_{c,e} = 0$ , la méthode  $P_c$  est plus rapide que la méthode  $S_g$  puisqu'elle requiert un nombre de pas de temps et un nombre d'itérations NR plus petits. Le temps CPU calculé par la méthode  $S_g$  est presque deux fois celui calculé par la méthode  $P_c$  pour le maillage le plus fin (i.e., 5230 éléments). En revanche, l'inverse est observé pour des calculs par le modèle VGMPE avec  $P_{c,e} \approx 2$  MPa (Tableau 6-3). La remarque la plus frappante est que l'introduction d'une pression d'entrée non nulle par la méthode  $S_g$  réduit drastiquement le temps CPU, le nombre de pas de temps et le nombre d'itérations NR simulés par la méthode  $P_c$ , et cela pour les trois maillages testés.

**Tableau 6-3 – Comparaison entre les deux méthodes  $P_c$  et  $S_g$  pour les deux modèles VGM et VGMPE en termes de temps de calcul CPU, du nombre total de pas de temps et du nombre total d'itérations de Newton-Raphson (NR).**

	Méthode $P_c$		Méthode $S_g$	
	VGM	VGMPE	VGM	VGMPE
Nombre d'éléments	Temps de calcul CPU (s)			
1976	770	1381	856	501
2917	1428	2154	1522	818
5230	2820	4076	5338	2580
	Nombre de pas de temps			
1976	6914	8840	7107	5105
2917	6822	8780	7266	5286
5230	6960	9624	10240	7485
	Nombre d'itérations NR			
1976	41759	55087	44696	24742
2917	40986	61903	48430	27621
5230	43239	73333	98420	63560

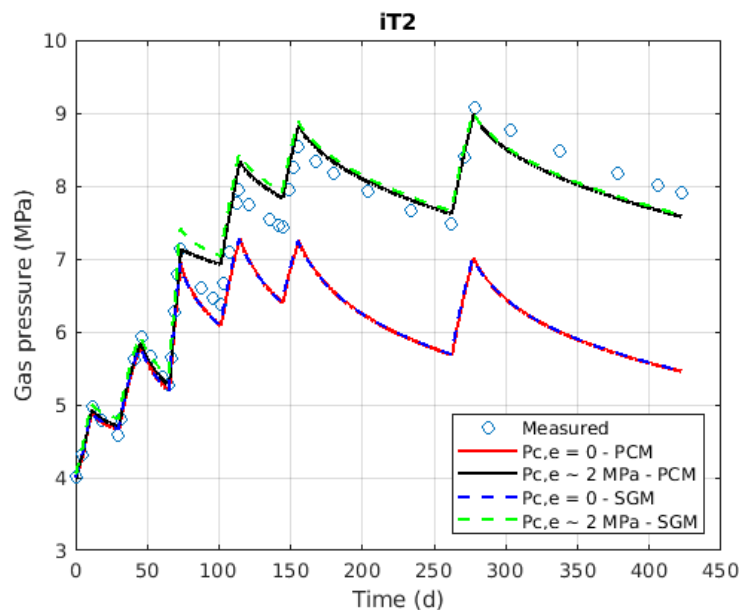
Pour le modèle de l'expérience PGZ1-GAZ testé ici, il apparaît *a priori* que la méthode  $S_g$  est plus performante en termes de temps de calcul CPU. Toutefois, reste à savoir si ce résultat pourra être généralisé pour d'autres types de domaines introduisant des hétérogénéités importantes (e.g., alvéole) et qui sont soumis à des conditions initiales et aux limites différentes (e.g., dépendantes du temps) de celles décrites dans cette expérience. Reste aussi à savoir laquelle des deux méthodes  $P_c$  ou  $S_g$  sera la plus adaptée à traiter le problème d'hystérésis avec  $P_{c,e}$  non nulle.

Dans ce qui suit, le maillage le plus fin à 5230 éléments a été retenu pour la comparaison entre le modèle et l'expérience.

➤ Comparaison modèle - expérience

La Figure 6-13 montre les évolutions temporelles de la pression de gaz dans la chambre simulées par les méthodes SGM et PCM de iTOUGH2/EOS3 en considérant les modèles VGM ( $P_{c,e} = 0$ ) et VGMPE ( $P_{c,e} \approx 2$  MPa) pour le CO<sub>x</sub> dont les paramètres hydrodynamiques sont optimisés par la méthode SOF. L'accord entre les deux solutions numériques (PCM et SGM) est remarquable. De même, comme montré par Amri (2021), ces solutions n'étaient pas très différentes de celles simulées par les paramètres hydrodynamiques du CO<sub>x</sub> optimisés par la méthode MOF.

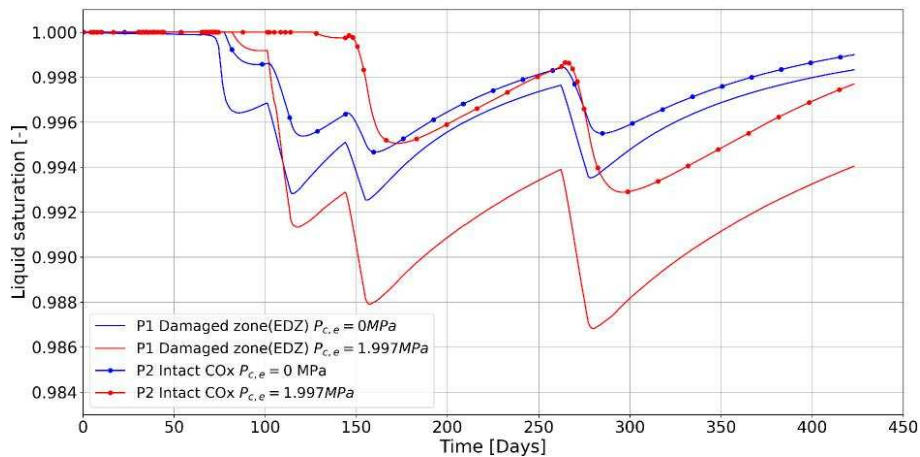
Sans aucun ajustement ad-hoc des paramètres du modèle VGMPE, le code iTOUGH2/EOS3 simule remarquablement la pression du gaz mesurée dans la chambre. L'ajustement simultané des paramètres du modèle VGMPE considérant des courbes de perméabilités relatives en fonction de la pression capillaire  $P_c$  (i.e.,  $k_{rg}(P_c)$  et  $k_{rl}(P_c)$ ), plutôt qu'en fonction de degré de saturation  $S_l$  (i.e.  $k_{rg}(S_l)$  et  $k_{rl}(S_l)$ ; Andra, 2012a; de La Vaissière et al., 2014; Charlier et al., 2013), améliore considérablement la modélisation de cette expérience.



**Figure 6-13 - Variations temporelles de la pression de gaz mesurée et simulée dans la chambre. Simulations par les Méthodes  $P_c$  et  $S_g$  avec les paramètres hydrauliques du CO<sub>x</sub> optimisés par la méthode mono-objectif SOF.**

Initialement, les deux modèles VGM ( $P_{c,e} = 0$ ) et VGMPE ( $P_{c,e} \approx 2$  MPa) présentent une simulation de la pression de gaz dans la chambre en accord avec les données expérimentales jusqu'à  $t = 73$  jours (les trois premiers pics). Au-delà du troisième pic, le modèle VGMPE simule une pression de gaz plus élevée que celle calculée par VGM et s'approche d'autant plus de la pression de gaz mesurée dans la chambre. Cet écart s'observe dès que le gaz commence à pénétrer dans la roche. En effet, le modèle VGM ( $P_{c,e} = 0$ ) simule une pénétration rapide de gaz dans la roche, ce qui explique la désaturation prématurée de la roche au point P1 (Figure 6-14). Tandis que la désaturation de la roche simulée avec le modèle VGMPE ( $P_{c,e} \approx 2$  MPa) est retardée, puisqu'elle nécessite une montée en pression plus importante afin de franchir le seuil de pression capillaire d'entrée  $P_{c,e}$ .

Il faut noter l'importance de cette désaturation dans le cas du modèle VGMPE, ce qui atteste d'un effet piston du gaz sur l'écoulement de l'eau plus important que celui simulé par le modèle VGM. Ceci est dû à l'accumulation d'une grande quantité de gaz à l'interface chambre-EDZ, avec une EDZ caractérisée par une perméabilité relative à l'eau plus élevée dans le cas du modèle VGMPE que dans le cas du modèle VGM (Figure 6-11).



**Figure 6-14 - Evolutions temporelles de la saturation en eau aux points P1 et P2, simulées avec les modèles VGM ( $P_{c,e} = 0$ ) et avec le modèle VGMPE ( $P_{c,e} = 1.997$  MPa). P1 et P2 sont deux mailles adjacentes. P1 est dans l'EDZ, tandis que P2 est dans la roche intacte du COx.**

Les distributions spatiales de la saturation en eau (Figure 6-15a,b) et de la fraction massique de  $N_2$  dissous dans l'eau (Figure 6-15c,d) confirment qu'initialement le gaz ne migre dans le COx que par diffusion pour les deux modèles VGM et VGMPE, et que ce transfert par diffusion prend un temps plus long pour le modèle VGMPE (110 jours) que pour le modèle VGM ( $t = 73$  jours). Ce mode de transfert est dû aux conditions initiales avec une pression de gaz dans la chambre de 3.92 MPa et une pression d'eau plus élevée dans la roche de 4.5 MPa.

En se basant sur la Figure 6-15a,c et la Figure 6-14, on peut conclure, que pour le modèle VGM ( $P_{c,e} = 0$ ) le transfert de fluide s'effectue uniquement par diffusion jusqu'à ce qu'une quantité de l'azote dissous génère une pression partielle (loi de Henry, Eq. (1-8)) supérieure à la valeur  $P_l - P_{sat}(T)$ . Tandis que pour le modèle VGMPE, un seuil supplémentaire de la pression d'entrée s'ajoute à cet équilibre, et pour que le gaz puisse pénétrer dans la cellule saturée, il faut que la quantité de gaz dissous vérifie l'équation (6-10).



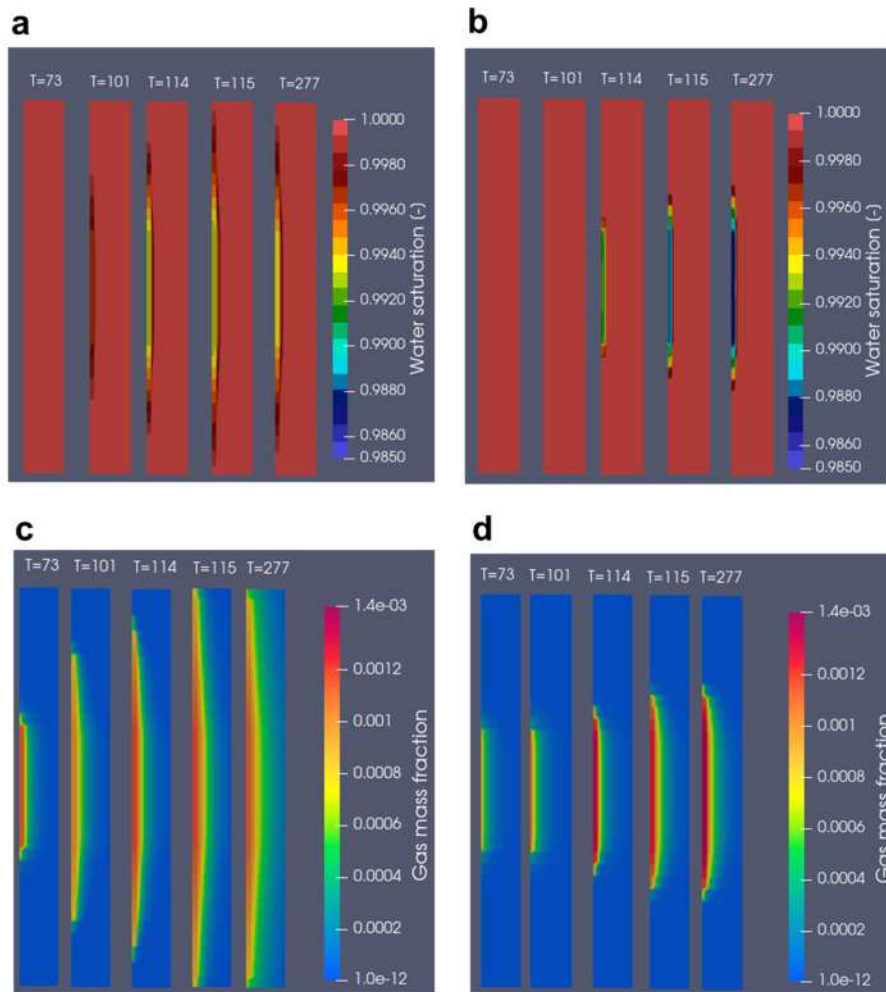


Figure 6-15 - Distributions spatiales de la saturation en eau (figures (a,b)) et de la fraction massique de l'azote gazeux dissous dans l'eau (figures (c,d)), simulées aux différents temps  $T$  en jours. À gauche les sous figures (a,c) sont relatives aux simulations avec le modèle VGM ( $P_{c,e} = 0$ ). À droite les sous figures (b,d) sont relatives aux simulations avec le modèle VGMPE ( $P_{c,e} = 1.997$  MPa).

## 6.6 Conclusion

Ce chapitre décrit une étude complète sur l'effet de l'introduction de la pression d'entrée sur le transfert des gaz en milieu argileux initialement saturé en eau. Un modèle de courbes de rétention et de perméabilités relatives à l'eau et au gaz a été établi (VGMPE), dont les paramètres peuvent être optimisés simultanément par deux méthodes différentes (MOF et SOF) à partir des mesures de ces trois propriétés. Puis, deux approches numériques de modélisation de la pression d'entrée dans le code iTOUGH2/EOS3 ont été implémentées (Méthodes PCM et SGM). Après des tests de vérification numérique, ces deux méthodes ont été validées sur l'expérience PGZ1-GAZ. Cette étude a permis de tirer un ensemble de conclusions pertinentes et les suites envisagées pour améliorer les prochaines études de transfert de gaz en milieu argileux.

### Ce qu'il faut retenir :

- Le nouveau modèle VGMPE développé sur la base de l'approche de Vogel et al. (2001) a permis de mieux reproduire les mesures expérimentales des courbes de rétention et des perméabilités relatives à l'eau et au gaz du CO<sub>x</sub>, mettant en évidence une perméabilité à l'eau du CO<sub>x</sub> plus élevée au voisinage de la saturation totale en eau ;

- En raison de la forte sensibilité de la perméabilité à l'eau au voisinage de la saturation, il sera donc nécessaire de prendre en compte une pression d'entrée non nulle dans les propriétés hydrauliques pour l'étude de transport des fluides dans le milieu poreux. Plus particulièrement, il faut être très vigilant lorsque la courbe de la perméabilité relative à l'eau est prédite à partir des paramètres de VGM issus de l'ajustement des courbes de rétention ;
- L'optimisation simultanée des paramètres du modèle VGMPE à partir des mesures de courbes de rétention et de perméabilités à l'eau et au gaz du CO<sub>x</sub>, par l'une des deux méthodes (SOF ou MOF), prouve que les propriétés hydrodynamiques mesurées de tout type de milieu poreux non saturé doivent être analysées par des modèles à base physique plutôt que par de simples fonctions mathématiques dont les paramètres sont indépendants ;
- De point de vue numérique, les tests réalisés pour différents maillages du modèle PGZ1-GAZ montrent que la méthode S<sub>g</sub> est plus performante en termes de temps de calcul CPU. En revanche, reste à tester la performance de cette méthode par rapport à la méthode P<sub>c</sub> pour des milieux poreux très hétérogènes et des conditions aux limites transitoires. En outre, reste également à savoir si la méthode S<sub>g</sub> est plus adaptée que la méthode P<sub>c</sub> pour traiter des courbes d'hystérésis avec P<sub>c,e</sub> non nulle ;
- Les simulations numériques de l'expérience PGZ1-GAZ ont montré que le modèle VGM (P<sub>c,e</sub> = 0) sous-estime largement la pression de gaz mesurée dans la chambre, et permet un passage rapide du gaz dans le CO<sub>x</sub>. Toutefois, le modèle VGMPE avec un seuil de pression capillaire (P<sub>c,e</sub> ≈ 2 MPa) limite le transfert de gaz dans la roche et présente des résultats plus proches des données expérimentales ;
- Enfin, la pression d'entrée P<sub>c,e</sub> est un paramètre clé dans les transferts de gaz dans les milieux poreux saturés. En effet, dans un milieu saturé en eau, une pression d'entrée non nulle impose un seuil d'entrée au gaz et tolère une quantité de gaz dissous plus élevée. Cette modification du mécanisme de transfert par diffusion et par advection peut induire une montée en pression significative à l'amont de la roche.

#### Ce qu'il faut résoudre, améliorer et/ou compléter :

- Ajouter l'effet **Klinkenberg** qui existe aussi dans le réseau de pores où passe le gaz dans l'argile du CO<sub>x</sub>. Dans l'essai PGZ1-GAZ, la saturation de la roche au voisinage de la chambre varie, ce qui modifie le réseau poral. Pour cela, on peut introduire la notion de perméabilité apparente  $k_a$  qui s'écrit sous la forme suivante :

$$(6-11) \quad k_a = k_{p \rightarrow \infty} \left( 1 + \frac{b_k}{p_g} \right)$$

Avec  $k_{p \rightarrow \infty}$  et  $b_k$  des paramètres qui dépendent maintenant de la teneur en eau  $\theta$ .

On ne peut plus donc réellement parler de coefficient de perméabilité intrinsèque  $k_{o,g}$  mais plutôt de perméabilité effective  $k_{eff} = k_{p \rightarrow \infty}$ .

Si cet effet n'a pas pu être testé sur l'expérience PGZ1-GAZ c'est par ce qu'il rajoute deux paramètres en plus ( $k_{eff}$  et  $b_k$ ) qu'il faudra les optimiser par le code iTOUGH2 (Pruess et al., 1999). Malheureusement, le problème inverse pour les identifier est mal posé puisque seules les mesures de pression de gaz dans la chambre ont été considérées pour l'ajustement. Des mesures en plus, comme celles de la pression de l'eau ou du gaz dans la roche ou l'EDZ seraient nécessaires pour une bonne identification de ces deux paramètres afin d'améliorer les simulations.

Le divergence observée entre la pression du gaz calculée par le modèle VGMPE et celle mesurée dans la chambre dès que P<sub>c</sub> dépasse P<sub>c,e</sub> (après 3<sup>ème</sup> pic de pression de gaz montré dans la Figure 6-13) et aux temps infinis (au-delà du 6<sup>ème</sup> pic de pression de gaz montré dans la Figure 6-13) peut être attribuée à ce manque d'information dans le modèle.

- Ajouter l'effet de **l'hystérésis** : les courbes du COx présentent également un comportement hystérétique (Gérard, 2011), qu'il faudra prendre en compte durant la phase d'injection de pulse d'azote (séchage) et la phase post-injection (imbibition) dans le COx ;
- **Les perméabilités intrinsèques du COx** en conditions monophasiques liquide et gazeuse ont été supposées identiques dans le modèle de simulation de l'expérience PGZ1-GAZ (cf. § 6.5.3). En revanche, cette hypothèse reste valide tant que le COx possède une saturation en phase liquide très proche de 1. Il faudra être vigilant quant à l'utilisation de cette hypothèse pour des pressions de gaz très élevées (désaturation importante) et des matériaux à base d'argile initialement très secs ;
- Introduire la **pression de percée et la pression de fracturation hydraulique** : A part le comportement élastique de déformation du COx qui pourrait améliorer le calcul de la porosité effective de la chambre (la réduire) suite à la convergence de la roche dans l'espace annulaire (Figure 6-10) au cours du temps, le comportement plastique du COx doit également être pris en considération dans le modèle de migration du gaz dans le COx. En effet, pour des pressions de gaz importantes, dépassant la pression de percée dans le COx non-saturé, la fracturation hydraulique peut avoir lieu et créer des chemins préférentiels non saturés.

## 7. L'hystérésis en milieu diphasique

### Abstract

*In this chapter, an extensive critical review of the commonly conceptual models of hysteresis in porous media (Mualem 1974, 1984; Haverkamp et al., 2002; Doughty, 2007; Beriozkin and Mualem, 2018) is presented. The performance of each model is evaluated and tested from theoretical point of view (hypotheses) on different porous materials (cements, sands, bentonite MX80). The advantages and drawbacks of the different hysteretic models are discussed. Finally, numerical modelling of an intermediate experiment of two immiscible fluids is developed by using code iTOUGH2. This modelling enabled us to implement and compare between the constitutive relations of the models with and without hysteresis, as well as with and without capillary entrapment. The main objective of this comparative study is to highlight the importance of the hysteresis phenomenon in modelling multiphase flow in porous media when they are subjected to drying-imbibition cycles.*

Dans ce chapitre, on présente une revue critique extensive d'un ensemble de modèles conceptuels de l'hystérésis en milieux poreux, communément connus dans la littérature : Mualem (1974, 1984), Haverkamp et al. (2002), Doughty (2007) et Beriozkin et Mualem (2018). La performance de ces modèles est évaluée et testée d'un point de vue théorique (hypothèses) mais aussi en les confrontant à des données mesurées extraites de la littérature pour divers matériaux poreux (ciments, sables, bentonite MX80). Les avantages et les inconvénients des différents modèles hystérétiques sont discutés. Enfin, la modélisation numérique d'une expérience d'écoulement diphasique de deux fluides non miscibles à l'échelle du laboratoire a été développée en utilisant le code iTOUGH2. Cette modélisation a permis de mettre en œuvre et comparer les modèles de relations constitutives avec ou sans hystérésis, et aussi, avec ou sans piégeage capillaire. L'objectif de cette étude comparative est de mettre en lumière la nécessité de prendre en compte le phénomène d'hystérésis dans les modélisations d'écoulements multiphasiques en milieux poreux lorsque ceux-ci sont soumis à des cycles de dessèchement-humectation.

### 7.1 Revue synthétique des modèles théoriques choisis

#### 7.1.1 Modèles empiriques sans piégeage de la phase non mouillante

Les modèles classiques d'hystérésis sont basés sur l'interpolation des courbes intermédiaires (*scanning curves*) à partir des courbes principales. Dans cette revue, nous nous focalisons sur les modèles d'hystérésis obtenus à partir de deux théories : la première est basée sur les théories des domaines dépendants (Mualem, 1974) et/ou indépendants (Mualem, 1984) et la seconde est basée sur l'extrapolation rationnelle de Parlange (1976), modifiée par la suite par Haverkamp et al. (2002).

Dans cette partie, on présente succinctement ces modèles. Pour plus de détails sur les théories et équations de développement de ces modèles, se référer à la thèse d'Amri (2021).

#### ➤ Mualem 1974

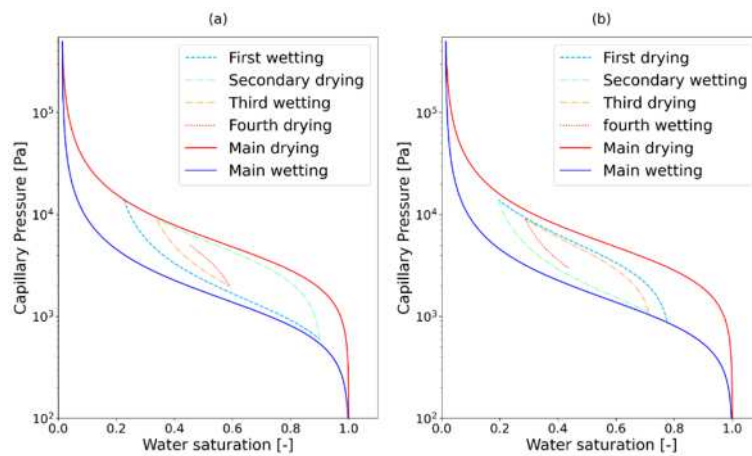
Mualem (1974) suppose que chaque groupe de pores est indépendant de ses voisins. Plus précisément, cette hypothèse stipule que la taille du diamètre de la gorge entre deux pores voisins (*pore neck size*) est totalement indépendante de la taille de ces pores (*pore body size*) selon le modèle de bouteille d'encre (e.g., M'Jahad, 2012), et que la fonction de la distribution bivariée des pores d'eau peut être exprimée comme étant le produit de deux fonctions indépendantes. La saturation en eau pour une pression capillaire donnée  $S_i(P_c)$  peut être obtenue par intégration de cette distribution sur des intervalles spécifiques. Mualem (1974) présente un diagramme illustrant les intégrales sur les domaines de tailles de pores vidés ou remplis par l'eau selon les processus de drainage ou d'imbibition des pores en milieu poreux, pour obtenir une formulation explicite de tout ordre de courbe intermédiaire de drainage ou d'imbibition (*First drying, second wetting, third drying...*), à partir de tout point de retournement (*turning point*). La Figure 7-1 illustre l'exemple d'une série de courbes intermédiaires obtenues par

ce modèle d'hystérésis, en utilisant l'équation (1-29) de van Genuchten VG (1980) pour les courbes principales d'un milieu poreux non saturé.

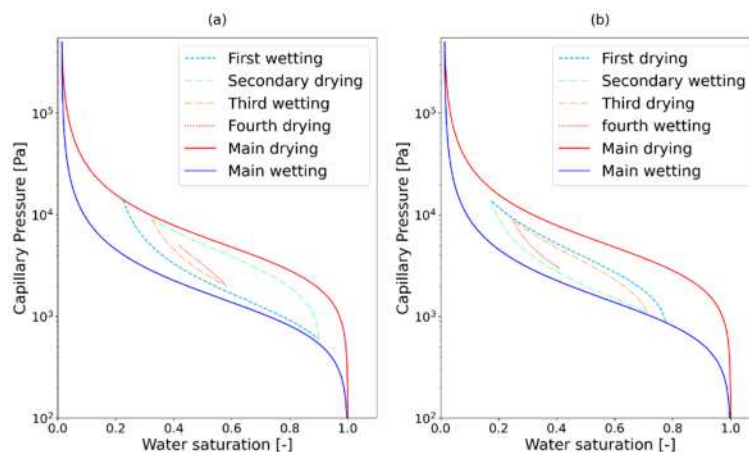
➤ *Mualem 1984*

Mualem (1984) considère que le drainage et l'imbibition des pores ne peuvent pas être indépendants dans un milieu poreux réel. Pour cela, il a développé un nouveau modèle, connu sous le nom de « modèle universel » (*universal model*) pour prendre en compte cette dépendance, et qui correspond à la théorie des domaines dépendants. Ainsi, il a introduit différents facteurs pour améliorer le calcul de la portion de pores drainés. Ce modèle intègre un seul facteur qui traduit le nombre de pores bloquant l'entrée de la phase non mouillante (air), mais il nécessite une méthode itérative pour le calcul des courbes de drainage intermédiaires.

La comparaison des courbes de VG issues des théories de domaines indépendants et dépendants de Mualem (1974, 1984) pour le même type de milieu poreux et les mêmes points de retournement, illustrés dans la Figure 7-1 et la Figure 7-2, respectivement, montre que la théorie des domaines dépendants calcule une désaturation plus importante que celle calculée par la théorie des domaines indépendants.



**Figure 7-1 - Illustration de l'hystérésis de l'eau du sol avec la théorie de Mualem (1974) et le modèle VG. (a) Courbes intermédiaires dérivées de la courbe principale de drainage ( $\alpha_d = 2.61 \times 10^{-4} \text{ Pa}^{-1}$ , points de retournement  $P_{c,1} = 1.4 \times 10^4 \text{ Pa}$ ,  $P_{c,2} = 600 \text{ Pa}$ ,  $P_{c,3} = 9 \times 10^3 \text{ Pa}$ , et  $P_{c,4} = 2 \times 10^3 \text{ Pa}$ ), (b) Courbes intermédiaires dérivées de la courbe principale d'imbibition ( $\alpha_w = 9.16 \times 10^{-4} \text{ Pa}^{-1}$ , points de retournement  $P_{c,1} = 900 \text{ Pa}$ ,  $P_{c,2} = 1.4 \times 10^4 \text{ Pa}$ ,  $P_{c,3} = 1.1 \times 10^3 \text{ Pa}$ , et  $P_{c,4} = 9 \times 10^3 \text{ Pa}$ ).  $n_w = n_d = 2.145$ ,  $S_{ls} = 1$ ,  $S_{lr} = 0$  pour les deux courbes principales.**



**Figure 7-2 - Illustration de l'hystérésis de l'eau du sol avec la théorie de Mualem (1984) et le modèle VG. (a) Courbes intermédiaires dérivées de la courbe principale de drainage ( $\alpha_d = 2.61 \times 10^{-4} \text{ Pa}^{-1}$ , points de retournement  $P_{c,1} = 1.4 \times 10^4 \text{ Pa}$ ,  $P_{c,2} = 600 \text{ Pa}$ ,  $P_{c,3} = 9 \times 10^3 \text{ Pa}$ , et  $P_{c,4} = 2 \times 10^3 \text{ Pa}$ ), (b) Courbes intermédiaires dérivées de la courbe principale d'imbibition ( $\alpha_w = 9.16 \times 10^{-4} \text{ Pa}^{-1}$ , points de retournement  $P_{c,1} = 900 \text{ Pa}$ ,  $P_{c,2} = 1.4 \times 10^4 \text{ Pa}$ ,  $P_{c,3} = 1.1 \times 10^3 \text{ Pa}$ , et  $P_{c,4} = 9 \times 10^3 \text{ Pa}$ ).  $n_w = n_d = 2.145$ ,  $S_{ls} = 1$ ,  $S_{lr} = 0$  pour les deux courbes principales.**

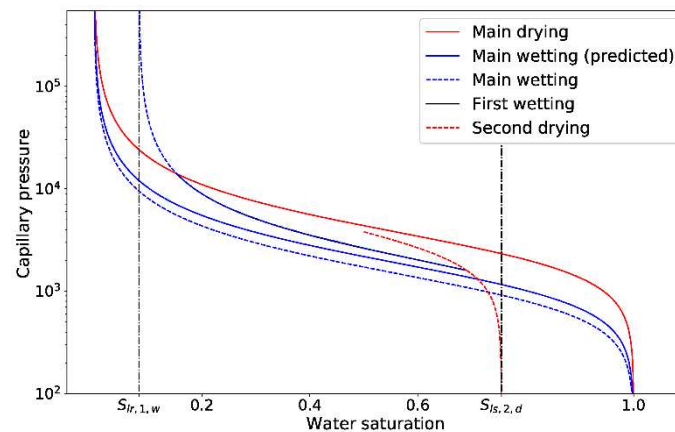
➤ Haverkamp et al. 2002

En se basant sur le modèle théorique de Parlange (1976), Haverkamp et al. (2002) ont développé des conditions de changement d'échelle géométriques pour définir un modèle d'hystérésis. Leur modèle suppose que toutes les courbes principales et intermédiaires ont la même formulation VG normalisée. La détermination des courbes intermédiaires à partir des paramètres de courbes principales est basée sur les relations suivantes : (i) toutes les courbes d'imbibition et les courbes intermédiaires ont les mêmes paramètres de forme; (ii) le paramètre d'échelle de pression de la courbe principale d'imbibition est proportionnel à celui de la courbe principale de drainage par un coefficient de proportionnalité fonction des paramètres de forme qu'ils ont élaboré; (iii) la fermeture des courbes intermédiaires implique que chaque courbe joint le point de départ de sa courbe parentale; (iv) le paramètre d'échelle de pression capillaire de chaque courbe intermédiaire est également proportionnel au paramètre d'échelle de pression capillaire de la courbe principale (en drainage et en imbibition). Le coefficient de proportionnalité est fonction des paramètres de forme, de la valeur de  $S_{1s}$  de la courbe principale et des valeurs de  $S_{1s}$  et  $S_{1r}$  de la courbe intermédiaire en question. La courbe intermédiaire est définie entre le point de retournement actuel de cette courbe et le précédent point de retournement.

Ces relations conduisent à un système d'équations non linéaires implicites en plusieurs paramètres, qu'il faudra le résoudre par une méthode itérative.

La Figure 7-3 montre une courbe intermédiaire débutant à partir de la courbe de drainage principale pour les mêmes paramètres de VG utilisés pour les calculs dans la Figure 7-1 et la Figure 7-2. Nous rappelons ici que le modèle de Haverkamp et al. (2002) utilise une seule courbe principale pour simuler les courbes intermédiaires.

Le modèle de Haverkamp et al. (2002) est décrit par une expression explicite pour déterminer tout ordre de courbe intermédiaire. En revanche, les courbes d'imbibition et de drainage principales doivent respecter la condition (iv), ce qui n'est pas souvent le cas. Un coût de calcul supplémentaire est lié à ce modèle, dû à la sauvegarde des paramètres de VG de chaque courbe intermédiaire en plus des points de retournement.



**Figure 7-3 - Illustration de l'hystérésis de l'eau du sol avec le modèle d'hystérésis de Haverkamp et al. (2002) et le modèle VG. Courbes intermédiaires dérivées de la courbe principale de drainage ( $\alpha_d = 2.61 \times 10^{-4} \text{ Pa}^{-1}$ ,  $n_d = 2.145$ ,  $S_{1s} = 1$  et  $S_{1r} = 0$  pour les deux courbes principales). Points de retournement  $P_{c,1} = 1.4 \times 10^4 \text{ Pa}$  et  $P_{c,2} = 1600 \text{ Pa}$ .**

### 7.1.2 Modèles avec piégeage de la phase non-mouillante

En milieux poreux multiphasiques, soumis à des cycles d'imbibition et de drainage, le fluide non-mouillant peut être présent sous forme de phase discontinue à cause des forces capillaires. Plusieurs expérimentations ont souligné l'importance de ce phénomène et son impact dans différentes applications, comme le cas du piégeage du  $\text{CO}_2$  (Hesse et Woods, 2010 ; Krevor et al., 2011 ; Trevisan et al., 2014).



Dans cette sous-section, nous discuterons les représentations différentes du piégeage de la phase non-mouillante et leur implémentation dans différents modèles d'hystérésis.

Comme reporté dans plusieurs études expérimentales (e.g., Raeesi et al., 2014), la saturation correspondant à la quantité de la phase non-mouillante piégée ( $S_{nw,r}^A$ ) est fortement corrélée à la saturation initiale de cette dernière ( $S_{nw,i}$ ). Les formules linéaires de Land (1968) ou d'Aissaoui (1983) ont souvent été utilisées pour décrire ces corrélations à partir des données expérimentales.

Le paramètre principal représentant la relation entre la saturation initiale de la phase non-mouillante ( $S_{nw,i}$ ) et le piégeage de cette phase résiduelle est la valeur maximale de la saturation de la phase non-mouillante piégée. Ce paramètre dépend du type du fluide utilisé (huile/air - eau) et de la microstructure du milieu poreux. Doughty (2007) considéra que ce paramètre est une propriété constante du matériau poreux, et qu'il ne dépend que de sa porosité  $\phi$ , selon la formule de Holtz (2002) communément utilisée dans le domaine pétrolier.

Suzanne et al. (2003) ont conduit une série de mesures de la saturation en gaz résiduelle maximale pour différents milieux poreux. Ils ont conclu que la saturation en gaz piégée maximale ne peut pas être prédite à partir de la porosité et la perméabilité.

➤ *Parker et Lenhard (1987) et Lenhard et Parker (1987)*

Afin de tenir compte du piégeage de la phase non-mouillante dans le modèle de **courbe de rétention** dans un système diphasique, Parker et Lenhard (1987) introduisaient la notion de saturation apparente, qui est une fonction de la pression capillaire  $P_c$  et qui peut être exprimée comme étant la somme d'une saturation de la phase mouillante (eau liquide) et d'une saturation effective de la phase non-mouillante.

Plus tard, Lenhard et al. (1992) ont amélioré le modèle de Parker et Lenhard (1987) afin d'éviter le problème de fermeture des boucles hystériques (*pumping effect*) généré par ce dernier modèle. En effet, ils se sont basés sur l'approche de Scott (1983) pour simuler des courbes intermédiaires et pour calculer la saturation apparente. La saturation effective est déduite de la saturation apparente en considérant une relation linéaire entre  $S_{nw,r}^A$  et  $S_{nw,i}$ .

Lenhard et Parker (1987) ont supposé que l'hystérésis dans la **perméabilité relative** soit le résultat du piégeage de la phase non-mouillante. Ainsi, ils ont introduit une correction à la formulation originale de Mualem (1976) des perméabilités à l'eau et au gaz, afin de tenir compte du piégeage de la phase non-mouillante dans les phases fluides mobiles. Ce modèle a été obtenu sous une forme plus générale. Il a été utilisé dans la suite de notre étude afin d'aboutir à des expressions analytiques des perméabilités à l'eau et au gaz à partir de toute fonction  $S_l(P_c)$ . La formule de Land (1968) a été également utilisée pour prendre en compte le piégeage de la phase non-mouillante. De même, son adaptation peut être faite pour d'autres relations entre  $S_{nw,r}^A$  et  $S_{nw,i}$ .

De même, le modèle de Lenhard et Parker (1987) est plus réaliste dans la mesure où il prend en compte le phénomène de piégeage de la phase non-mouillante et son effet sur les perméabilités relatives. En revanche, il représente une opération intermédiaire pour commuter entre la saturation en eau effective et la saturation en eau apparente.

➤ *Doughty 2007*

Doughty (2007) appliqua la théorie des domaines dépendants de Mualem (1984) à une nouvelle formulation de la relation  $P_c(S_l)$  de Van Genuchten-Mualem (VGM), en prenant en compte la saturation en gaz piégée dans l'eau liquide. Dans cette nouvelle formulation de  $P_c(S_l)$ , la saturation en gaz (phase non-mouillante) piégée dépend du chemin suivi de la saturation en gaz depuis le point du retournement situé dans la courbe de drainage vers celle de l'imbibition, et du maximum de la saturation en gaz résiduelle, qui est une caractéristique du sol. Cette dernière a été estimée à partir de la courbe d'imbibition principale et le modèle de Land (1968) pour la relation entre  $S_{nw,r}^A$  et  $S_{nw,i}$ . La Figure 7-4 présente les courbes intermédiaires hystériques provenant de la courbe principale de drainage pour le même exemple de la Figure 7-1.

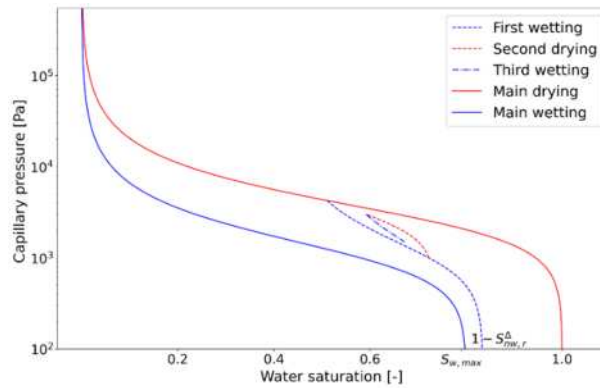


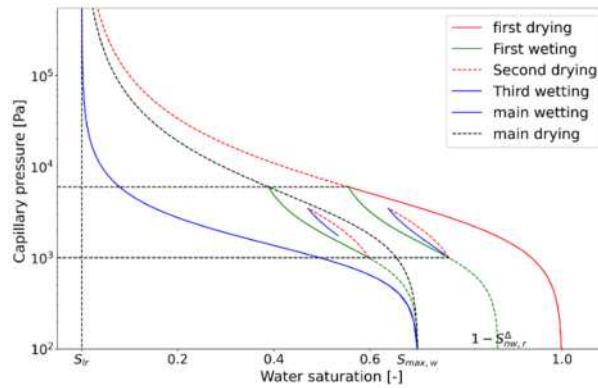
Figure 7-4 - Illustration de l'hystérésis de l'eau du sol avec le modèle d'hystérésis de Doughty (2007) et le modèle VG. Idem paramètres de VG dans la Figure 7-1. Points de retournement  $P_{c,1}=4.25 \times 10^3$  Pa,  $P_{c,2}=1.0 \times 10^3$  Pa, et  $P_{c,3}=3 \times 10^3$  Pa.

En utilisant la formulation VGM de Doughty (2007) pour la courbe de rétention, cet auteur a pu obtenir des expressions explicites de perméabilités relatives à l'eau et au gaz (i.e.,  $k_{rl}(S_l)$  et  $k_{rg}(S_l)$ ) en utilisant le modèle de Mualem (1976) modifié par Lenhard et Parker (1987).

Ce modèle a été implémenté dans la plateforme iTOUGH2 (Doughty, 2013), avec trois courbes intermédiaires, 1<sup>ère</sup> courbe d'imbibition (*first wetting*), 2<sup>ème</sup> courbe de drainage (*second drying*), et des lignes droites semi-log pour approximer la 3<sup>ème</sup> courbe d'imbibition (*third wetting*) comme suggéré par Niemi et Bodvarsson (1988). Le modèle de Doughty (2007) utilise une astuce technique pour déterminer la saturation de la phase non-mouillante piégée. Ce modèle présente l'inconvénient de faire plusieurs approximations au voisinage de la saturation en eau totale ( $S_l = 1$ ). En outre, ce modèle n'est pas basé sur des aspects empiriques, puisqu'il utilise uniquement la théorie des domaines dépendants de Mualem (1984) appliquée à une nouvelle courbe d'imbibition après le premier point de retournement du chemin principal de drainage vers le premier chemin d'imbibition.

#### ➤ *Beriozkin et Mualem 2018*

Beriozkin et Mualem (2018) ont conclu que le modèle d'hystérésis pour la courbe de rétention suggéré par Parker et Lenhard (1987) avec une phase non-mouillante piégée est basé sur des hypothèses (présomptions) non valides et que l'utilisation de la formule de Land (1968) pour exprimer cette phase non-mouillante piégée implique un non-parallélisme entre deux courbes primaires d'imbibition débutant à partir de la courbe de séchage principale et de la première courbe de drainage, comme corroboré dans le modèle de Mualem (1974). Ce non-parallélisme signifie que deux chemins d'imbibition qui débutent à partir du drainage principal et du premier drainage sous un changement inégal de la pression capillaire n'impliquent pas la même variation de la saturation en eau. Beriozkin et Mualem (2018) affirmèrent que le modèle de Parker et Lenhard (1987) présente des opérations intermédiaires superflues pour prédire la saturation effective à partir de la saturation apparente. En utilisant la technique de changement d'échelle proposée par Mualem et Beriozkin (2009), Beriozkin et Mualem (2018) proposèrent des équations totalement explicites pour prédire la courbe intermédiaire désirée jusqu'au troisième ordre. La Figure 7-5 illustre un exemple de calcul d'une séquence de courbes intermédiaires parallèles en drainage et en imbibition générées par le modèle d'hystérésis de Beriozkin et Mualem (2018) et le modèle de courbe de rétention VG avec les mêmes paramètres de la Figure 7-1.



**Figure 7-5 - Illustration du modèle d'hystérésis de Beriozkin et Mualem (2018) avec le modèle VG : génération de deux séquences parallèles de courbes intermédiaires débutant à partir de la courbe de mouillage principale (MWC : *Main Wetting Curve*) et à partir de la première courbe de séchage (FDC : *First Drying Curve*). Idem paramètres de VG dans la Figure 7-1.**

Le modèle de Beriozkin et Mualem (2018) se base sur une formulation explicite de calcul des courbes intermédiaires, ce qui ne nécessite pas une méthode itérative au sein de chaque élément du maillage, et pourrait ainsi être très prometteur sur la réduction du coût de calcul (temps de calcul CPU réduit) de l'hystérésis. Cependant, ce modèle n'a jamais été implémenté ni validé sur des données expérimentales.

## 7.2 Modèles théoriques versus données mesurées pour différents milieux poreux

Dans cette section, nous procédons à des inter-comparaisons entre les modèles de courbes de rétention d'eau hystérétiques. Plusieurs études se sont focalisées sur la comparaison entre modèles d'hystérésis (Pham et al., 2005 ; Zhang et al., 2014, Terleev et al., 2018). Ces études ont montré que les modèles conceptuels sont simples et plus exacts pour prédire les courbes intermédiaires en utilisant uniquement les courbes principales. Cependant ces études, ne couvrent pas tous les modèles conceptuels existants, et n'incluent pas les concepts les plus récents comme le phénomène de piégeage de la phase non mouillante décrit dans les études de Doughty (2007) et de Beriozkin et Mualem (2018). Dans cette étude, cinq des six modèles d'hystérésis discutés dans la section précédente 7.1 seront testés à travers une comparaison avec des données d'hystérésis mesurées sur différents milieux poreux (sables, ciment, bentonite MX80) collectées à partir de la littérature.

Le Tableau 7-1 présente les références bibliographiques qui ont servi pour collecter les données d'hystérésis de cinq matériaux afin de réaliser cette étude inter-comparative entre les cinq modèles.

**Tableau 7-1 – Propriétés hydrauliques hystérétiques des milieux poreux étudiés.**

Material N°	References	Type of soil	Scanning curves
1	Terleev et al. (2018)	Dune sand	First wetting
2	Baroghel-Bouny (2007)	Paste (CEM I)	First wetting, Secondary drying
3	Huang et al. (2005)	Compacted Sand	First wetting, Secondary drying, Third wetting
4	Qiao et al. (2021)	Bentonite MX80	First wetting
5	Lins et al. (2007)	Hostun sand	First wetting, Secondary drying, Third wetting

Dans un premier temps, le modèle VG a été ajusté aux courbes expérimentales d'imbibition et de drainage principales. La valeur de  $S_b$  a été choisie identique pour l'ajustement de ces deux courbes pour les modèles

d'hystérésis suivants : Mualem 1974, Mualem 1984, Haverkamp et al. 2002, Doughty 2007 et Beriozkin et Mualem 2018. Dans un second temps, les modèles d'hystérésis ont été utilisés pour simuler les courbes intermédiaires. La qualité de l'ajustement du modèle sur ces courbes mesurées intermédiaires est évaluée en termes de l'erreur absolue moyenne (MAE : *Mean Absolute Error*).

La Figure 7-6 illustre un exemple de courbes intermédiaires prédites par les cinq modèles d'hystérésis pour le matériau N°4 (Bentonite MX 80). Pour les autres matériaux, se référer à la thèse d'Amri (2021). L'erreur MAE sur chaque courbe intermédiaire est montrée au-dessus de chaque figure.

Le MAE global pour chaque matériau et pour chaque modèle d'hystérésis est présenté dans le Tableau 7-2. Ce résultat provient de l'ajustement des courbes principales de drainage et d'imbibition aux données expérimentales  $P_c(S_i)$ , et des courbes intermédiaires prédites par les modèles théoriques d'hystérésis.

A partir de la comparaison des valeurs de MAE, nous pouvons conclure que tous les modèles d'hystérésis représentent bien les tendances des boucles intermédiaires, excepté le modèle de Haverkamp et al. 2002, qui échoue à prédire les branches de la courbe d'imbibition principale pour tous les matériaux, à part le matériau N° 4 (Figure 7-6). Les modèles Mualem 1974 et Mualem 1984 produisent la même première courbe de drainage (*first drying curve*), mais le modèle de Mualem 1974 est meilleur que Mualem 1984 pour des courbes intermédiaires déterminées à des ordres plus élevés (e.g., matériaux N° 2 et N° 3).

**Tableau 7-2 – Résultats MAE (*Mean Absolute Error*) pour les courbes intermédiaires ajustées par les différents modèles d'hystérésis sur les données expérimentales de chaque matériau.**

Material N°	Mualem 1974	Mualem 1984	Haverkamp et al. 2002	Doughty 2007	Beriozkin and Mualem 2018
1	0.057376	0.057376	<b>0.041484</b>	0.056555	0.060396
2	0.025105	0.03221	0.248106	0.057228	<b>0.023964</b>
3	0.028895	0.05733	0.239818	0.088316	<b>0.027986</b>
4	0.040658	0.040658	0.043215	0.04062	<b>0.04062</b>
5	0.02472	<b>0.019982</b>	0.153037	0.058866	0.021562
Mean	0.035351	0.041511	0.145132	0.060317	<b>0.034906</b>

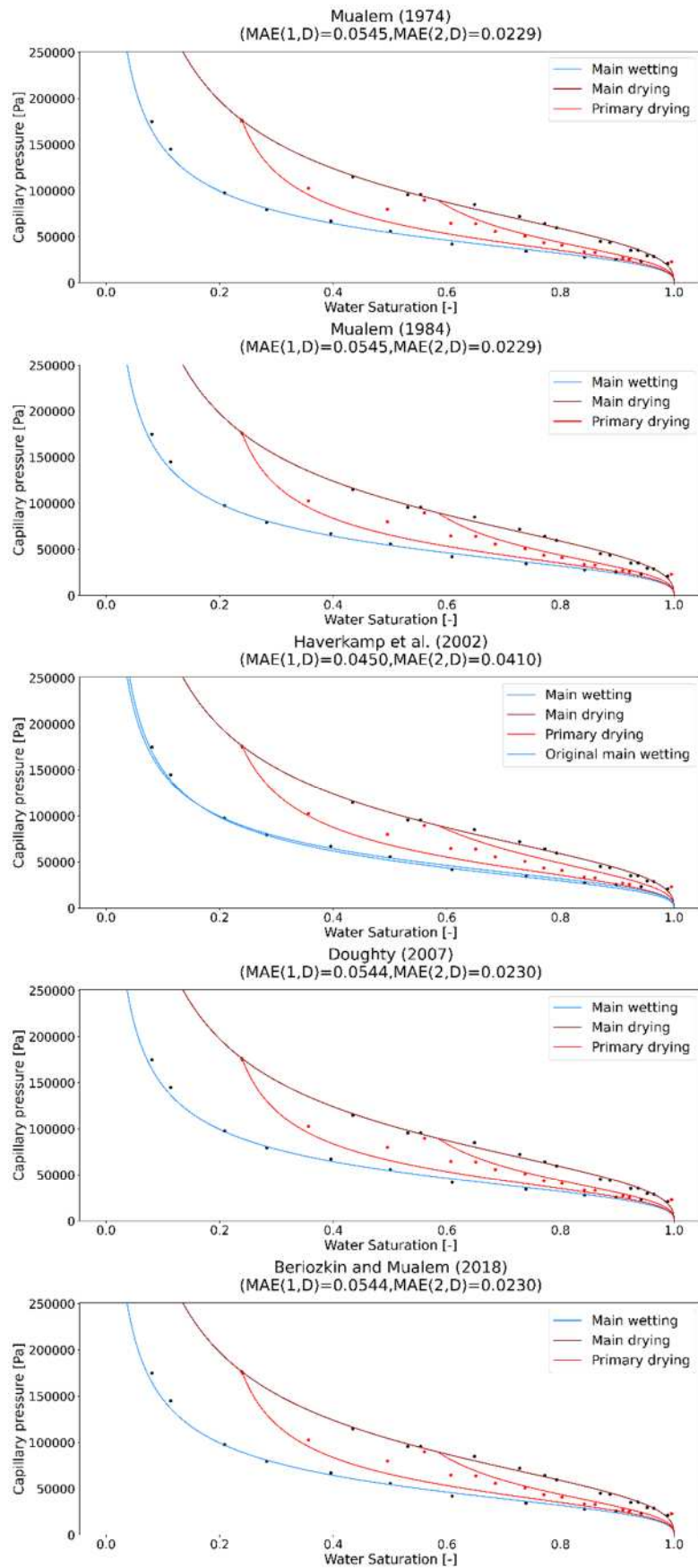


Figure 7-6 - Courbes principales de mouillage et de séchage de la bentonite MX80 (Qiao et al., 2021) ajustées et première courbe intermédiaire de mouillage prédite par chacun des cinq modèles d'hystérésis.

Le modèle Doughty 2007 est une application du modèle Mualem 1984 avec une nouvelle courbe d'imbibition déterminée après un retournement inverse du point du drainage principal au premier mouillage. Le modèle Doughty 2007 présente des erreurs plus élevées que celles issues du modèle Mualem 1984. En effet, l'introduction de la saturation de la phase non-mouillante piégée améliore le modèle Mualem 1974, mais pas celui de Mualem 1984. Finalement, le modèle Beriozkin et Mualem 2018 simule mieux les données expérimentales, comme montré par les valeurs de MAE les plus faibles dans le Tableau 7-2. En plus, ce modèle possède l'avantage par rapport aux autres quatre modèles, dans la mesure où il utilise une expression explicite de la saturation en fonction de la pression capillaire pour simuler une courbe intermédiaire donnée ; Il ne nécessite pas un calcul itératif en plus pour déterminer la solution des équations représentant les courbes intermédiaires.

### 7.3 Modélisation de l'expérience de laboratoire de Trevisan et al. (2014)

Pour étudier l'effet de l'hystérésis sur le comportement de l'écoulement diphasique liquide-gaz, un modèle constitutif, avec et sans hystérésis, a été testé sur une expérience qui a été conduite au laboratoire par Trevisan et al. (2014). Cette expérience met en jeu l'injection de fluides substitutifs pour imiter le comportement du système CO<sub>2</sub> supercritique – sel (scCO<sub>2</sub>-brine) à l'échelle du réservoir. Malgré certaines différences dans les paramètres d'entrée entre la modélisation proposée et celle de Trevisan et al. (2014), nos résultats de simulation seront comparés aux données expérimentales afin d'illustrer l'importance de l'hystérésis sur la migration du panache (*plume*) injecté dans le réservoir.

#### ➤ *Expérience de Trevisan et al. (2014)*

Cette expérience consiste en l'injection d'un fluide non-mouillant (Soltrol-220) dans une dalle de sable (type 40/50) rectangulaire et bidimensionnelle (i.e., aquifère) ayant les dimensions (L×W×H) égales à (91.4 × 5.6 × 61 cm<sup>3</sup>) et est inclinée d'un angle de 2° (Figure 7-7). L'aquifère en sable est initialement saturé avec le fluide mouillant Glycérol-eau. La limite droite de l'aquifère est soumise à la pression hydrostatique. Le puits d'injection est placé sur la limite gauche de l'aquifère. Il consiste en un tuyau vertical en PVC avec un diamètre de 2.3 cm et une longueur verticale de 11 cm. Le fluide non-mouillant (Soltrol-220) possède une masse volumique de 860 kg.m<sup>-3</sup> et une viscosité de 4.9 mPa.s, alors que le fluide mouillant (Glycérol-eau) possède une masse volumique de 1210 kg.m<sup>-3</sup> et une viscosité de 61 mPa.s.

La première étape de l'expérimentation consiste à injecter le Soltrol-220 à un débit constant de 0.7 ml/min durant 5.5 h. La seconde étape consiste à suivre l'évolution de la redistribution du Soltrol-220 sur une durée supérieure à 15 jours. Pour plus de détails sur ce protocole expérimental, voir articles de Trevisan et al. (2014) et de Cihan et al. (2017).

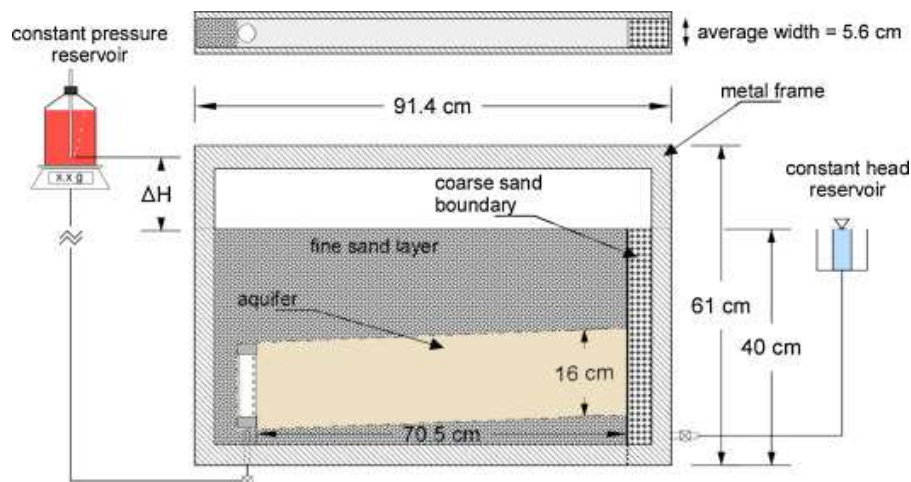


Figure 7-7 – Schématisation de l'expérience d'injection du fluide non-mouillant Soltrol-220 dans le réservoir de sable saturé en fluide mouillant eau-glycérol (d'après Trevisan et al., 2014).

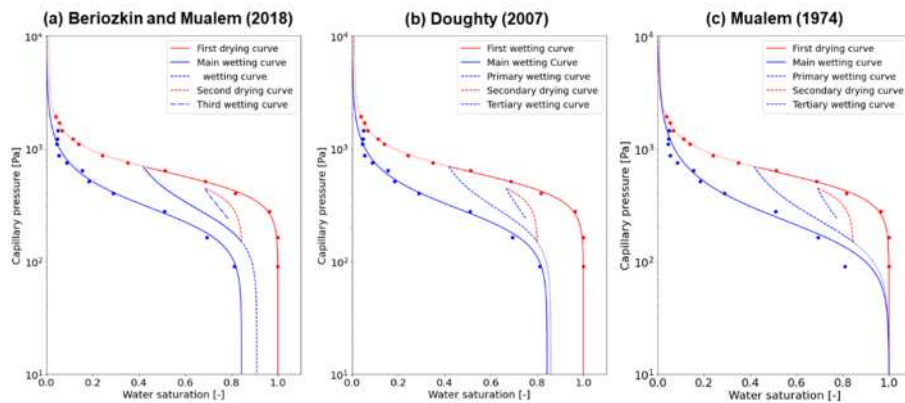


➤ *Propriétés hydrauliques et description du modèle*

Les données mesurées des courbes de rétention principales de drainage et d'imbibition du sable 40/50 ont été ajustées par le modèle VG (Figure 7-8). Deux scénarios ont été testés dans la procédure d'ajustement. La première consiste à prendre en compte le piégeage du Soltrol-220 (phase non-mouillante) en considérant  $S_{w,max}$  (Figure 7-4 et Figure 7-5) comme un paramètre libre inconnu à optimiser. La seconde consiste à négliger la saturation de la phase non-mouillante piégée en fixant la valeur de  $S_{w,max}$  à 1.0. Les paramètres optimisés par les deux scénarios sont donnés, Tableau 7-3. Les modèles d'hystérésis Beriozkin et Mualem 2018 et Doughty 2007 ont été choisis ici pour décrire l'importance du mécanisme de piégeage de la phase non-mouillante (Figure 7-8a,b). En revanche, le modèle de Mualem (1974) a été choisi pour décrire le phénomène d'hystérésis sans piégeage de la phase non-mouillante (Figure 7-8c). La porosité ( $\phi$ ) et la perméabilité intrinsèque ( $k_0$ ) du sable étudié ont été prises égales à 0.35 et  $6.43 \times 10^{-11} \text{ m}^2$ , respectivement.

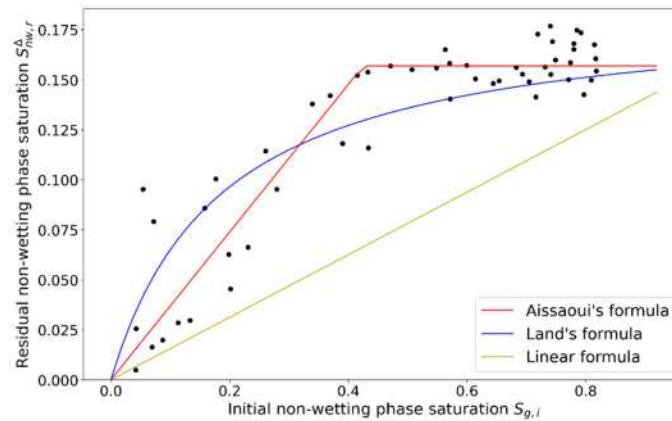
**Tableau 7-3 – Paramètres hydrauliques de VG ajustés pour le sable 40/50. Scénario#1 avec  $S_{w,max}$  comme paramètre libre. Scénario 2 avec  $S_{w,max}$  fixée à 1.0.**

Scenario $N^\circ$	$n_w$	$\alpha_w [Pa^{-1}]$	$S_{w,max}$	$S_{w,r}$	$n_d$	$\alpha_d [Pa^{-1}]$	$S_{d,max}$	$S_{d,r}$
1	2.95	$3.89 \times 10^{-3}$	0.8431	0.0073	3.91	$1.76 \times 10^{-3}$	1	0.0097
2	2.56	$5.26 \times 10^{-3}$	1	0	3.91	$1.76 \times 10^{-3}$	1	0.0097



**Figure 7-8 – Illustration de l'effet d'hystérésis sur les propriétés de la courbe de rétention du sable 40/50. Les boucles intermédiaires sont calculées avec différents modèles : (a) Beriozkin et Mualem (2018). (b) Doughty (2007). (c) Mualem (1974).**

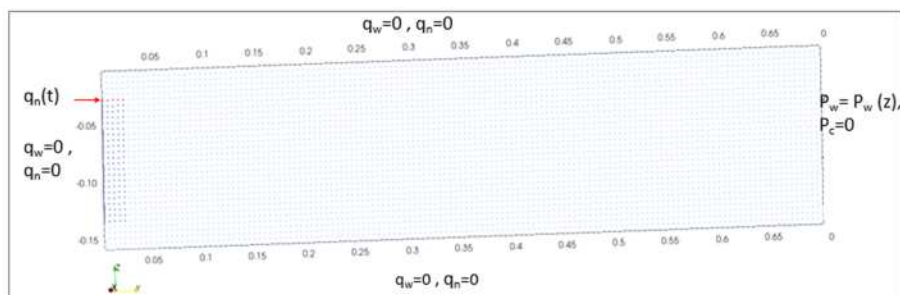
Puisqu'il n'y a pas de données disponibles pour les courbes intermédiaires, celles-ci ont été prédites par les trois modèles étudiés. La différence principale entre le modèle Doughty 2007 et Beriozkin et Mualem 2018 réside dans la manière est calculée la saturation de la phase non-mouillante piégée  $S_{nw,r}^\Delta$  à la fin de la première courbe d'imbibition intermédiaire générée en fonction de  $S_{tp}$  (saturation en eau au point de retournement). Par exemple, le modèle Beriozkin et Mualem 2018 utilise un modèle linéaire pour représenter la relation  $S_{gr}$  en fonction de  $S_{tp}$ . En effet, en utilisant un modèle linéaire, la saturation de la phase non-mouillante piégée est de l'ordre de 0.105 pour une saturation au point de retournement  $S_{tp} = 0.41$ . En revanche, le modèle Doughty 2007 utilise la formule de Land (1968) qui calcule une valeur de  $S_{nw,r}^\Delta$  plus élevée de l'ordre de 0.147 pour la même saturation  $S_{tp} = 0.41$ . Cette différence entre les deux relations  $S_{gr}$  en fonction de  $S_{tp}$  est montrée dans la Figure 7-9, en comparaison avec les données expérimentales du sable 40/50 étudié par Trevisan et al. (2014). L'ajustement de ces données expérimentales montre bien que la formulation d'Aissaoui (1983) est meilleure. Ce résultat est en accord avec les travaux de Suzanne et al. (2003) et Pentland et al. (2010).



**Figure 7-9 – Comparaison entre les différentes représentations de la saturation de la phase non-mouillante (Solvrol-220) piégée en fonction de sa saturation initiale, par le modèle linéaire, le modèle d'Aissaoui (1983) et le modèle de Land (1968) pour les données expérimentales du sable 40/50 (black dots) étudié par Trevisan et al. (2014).**

Le choix a porté sur l'équation d'état EOS10 de la plateforme iTOUGH2 (ancien code T2VOC de la plateforme TOUGH2 ; Falta et al., 1995) pour simuler cette expérience. Des modifications à EOS10 étaient nécessaires pour inclure les propriétés des deux fluides étudiés, mouillant et non-mouillant. Pour pouvoir tester les modèles d'hystérésis Beriozkin et Mualem 2018 et Mualem 1974, d'autres modifications ont été apportées à l'architecture de la plateforme iTOUGH2. Leur implémentation dans iTOUGH2 a été réalisée de manière indépendante, de telle sorte à ne pas se limiter au seul modèle d'hystérésis de Doughty 2007 déjà implémenté.

Les simulations ont été réalisées sur une grille uniforme avec des éléments de taille  $0.5 \text{ cm} \times 0.5 \text{ cm}$  pour représenter le domaine 2D montré dans la Figure 7-10. La durée maximale de la simulation est de 15 jours.



**Figure 7-10 – Représentation du domaine 2D et des conditions aux limites y imposées pour simuler l'expérience de Trevisan et al. (2014).**

Dans ce qui suit, une comparaison entre les résultats de simulation obtenus par un modèle non hystérique et les modèles hystériques Beriozkin et Mualem 2018, Doughty 2007 et Mualem 1974, sera présentée. Dans un premier temps, l'effet de l'hystérésis sera discuté en utilisant le modèle Beriozkin et Mualem 2018. Dans un second temps, l'effet de piégeage du Solvrol-220 sera discuté en comparant les trois modèles. Finalement, une comparaison entre les saturations simulées et mesurées sera également présentée.

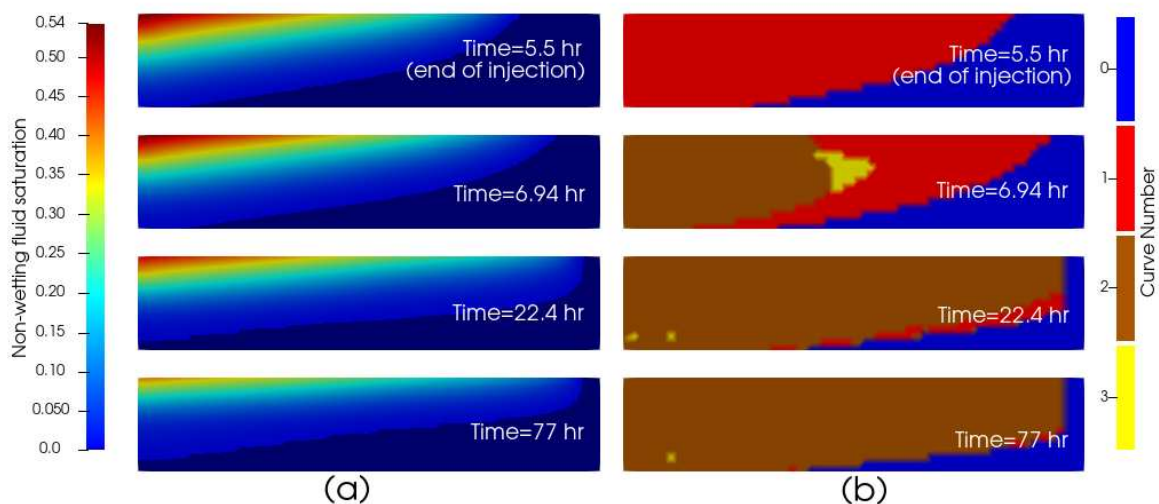
➤ Etude de sensibilité de différents modèles d'hystérésis sur la distribution du Solvrol-220 durant la phase post-injection

Comme discuté dans la section 7.2, le modèle d'hystérésis de Beriozkin et Mualem (2018) présente un avantage par rapport aux autres modèles d'hystérésis. La Figure 7-11a montre la distribution 2D du Solvrol-220 simulée par ce modèle. De même, une démonstration de changement du processus de drainage en imbibition, et vice-versa, exprimé par l'indice de réversibilité *icurve* (*curve number index*), est également présentée dans la Figure 7-11b. A

la fin de l'injection ( $t = 5,5$  h), un nouvel indice *icurve* égal à 2 commence à apparaître au voisinage du puits d'injection, correspondant au premier chemin d'imbibition dans les relations  $P_c(S_l)$ . En même temps, la région de drainage (*icurve* = 1) commence à migrer vers la limite droite du domaine. Comme l'imbibition se produit à cause de la condition à la limite hydrostatique, l'eau pousse le Soltrol-220, créant ainsi un drainage secondaire dans certaines régions (couleur jaune avec *icurve* = 3).

La Figure 7-12 présente une comparaison entre les résultats de simulation avec hystérésis (modèle Doughty 2007) et sans hystérésis. La saturation du Soltrol-220 diffère bien entre les deux modèles. Le modèle d'hystérésis simule une saturation en Soltrol-220 plus élevée au voisinage du puits d'injection. Le processus d'imbibition au voisinage du puits d'injection affecte la perméabilité du Soltrol-220 et augmente sa saturation par rapport à celle calculée sans hystérésis. La non-prise en compte de l'hystérésis provoque un mouvement très important du Soltrol-220 au cours du temps. Au temps  $t = 77$  h, une différence significative dans la saturation en Soltrol-220 entre les deux modèles est observée. Cette différence est due au piégeage du Soltrol-220, qui induit une faible perméabilité dans la région d'imbibition. Les mêmes observations ont été reportées par Zhao et al. (2014), où les courbes de ré-imbibition correspondant à la première courbe d'imbibition de la perméabilité relative sont situées au-dessous de la courbe de drainage principale.

Aucune différence notable n'a été observée entre les résultats obtenus par le modèle Doughty 2007 (Figure 7-12b) et ceux obtenus par le modèle Beriozkin et Mualem 2018 (Figure 7-13a).



**Figure 7-11 – (a) Distribution 2D de la saturation du fluide non-mouillant (Soltrol-220), simulée à différents temps par le modèle d'hystérésis de Beriozkin et Mualem (2018). (b) Numéros des indices de réversibilité de l'écoulement où *icurve* = 0 désigne l'état complètement saturé ( $S_l = I$ ), *icurve* = 1 désigne la courbe de drainage principale, *icurve* = 2 désigne la première courbe d'imbibition, et *icurve* = 3 désigne la courbe de drainage secondaire.**

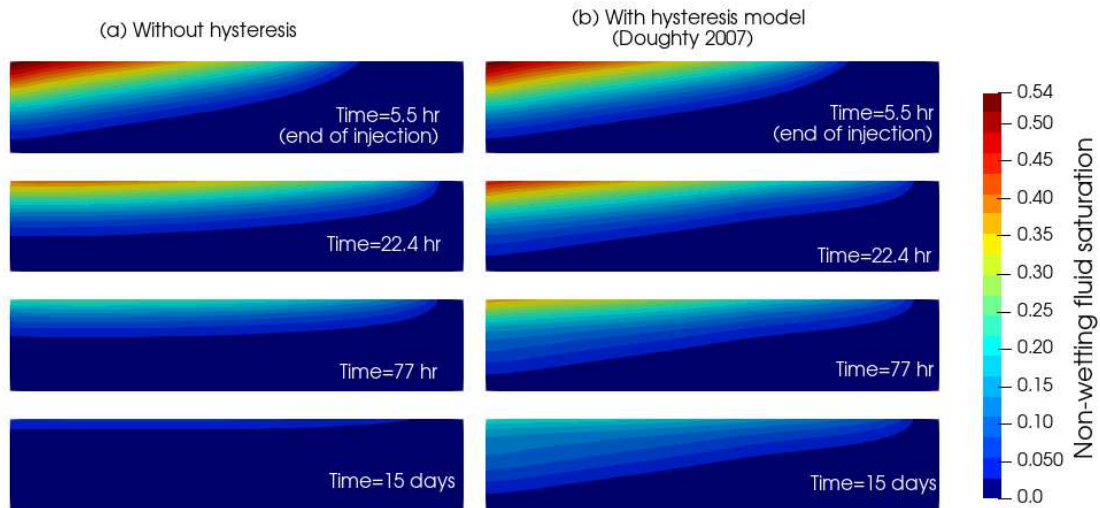


Figure 7-12 – Distribution 2D simulée de la saturation du fluide non-mouillant (Soltrol-220) à différents temps. (a) Calcul sans hystérésis. (b) Calcul avec le modèle d'hystérésis de Doughty (2007).

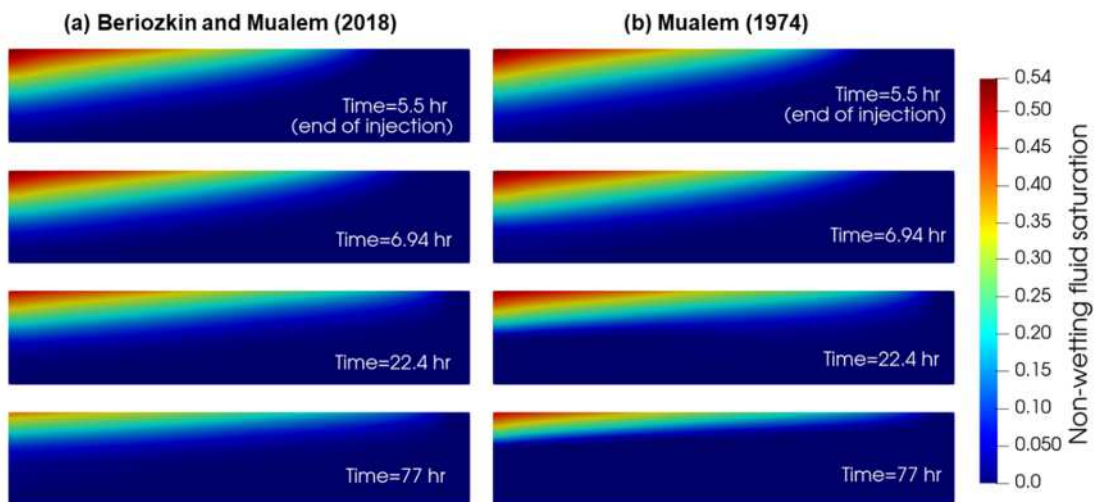


Figure 7-13 – Distribution 2D de la saturation du fluide non-mouillant (Soltrol-220) simulée à différents temps. Calculs avec les modèles d'hystérésis (a) Beriozkin & Mualem 2018 et (b) Mualem 1974.

Pour montrer l'importance de la saturation en Soltrol-220 piégé dans les modèles d'hystérésis, une comparaison du modèle Beriozkin et Mualem 2018 avec celui de Mualem 1974 a été présentée dans la Figure 7-13 (voir paramètres des scénarios #1 et #2, Tableau 7-3). A la fin de la période post-injection ( $t = 15$  jours), ces deux modèles d'hystérésis simulent approximativement la même évolution du fluide non-mouillant Soltrol-220. La différence entre les deux modèles devient significative dès lors que le temps dépasse 6,94 h. En fait, selon le modèle Mualem 1974, une phase non-mouillante plus importante reste dans le système, comparée à celle simulée par le modèle Beriozkin et Mualem 2018, en particulier au voisinage de la région où le processus d'imbibition s'est produit. Ceci peut être attribué à la première courbe d'imbibition intermédiaire générée par le modèle Mualem 1974, située au-dessous de celle générée par le modèle Beriozkin et Mualem 2018, et qui augmente la capacité du milieu poreux à piéger le Soltrol-220 (phase non-mouillante).

A la lumière de ces résultats, le phénomène d'hystérésis joue un rôle important dans la modélisation de la migration d'une phase non-mouillante dans un milieu poreux initialement saturé en une phase mouillante. Ce résultat est cohérent avec les formes de courbes intermédiaires comparées à celle de la courbe de drainage principale (Figure 7-11b). En fait, la courbe intermédiaire générée présente une capacité de rétention de la phase

mouillante plus réduite que celle de la courbe de drainage principal, ce qui augmente la rétention du fluide non-mouillant. Le phénomène de piégeage du fluide non-mouillant accentue sa rétention, conduisant ainsi à des quantités très élevées de ce fluide dans le système.

➤ *Simulations du modèle vs observations*

Dans cette sous-section, une comparaison des résultats de simulation avec les mesures de la saturation en Soltrol-220 dans le domaine de la Figure 7-10 est présentée.

La distribution 2D de la saturation en Soltrol-220 mesurée à la fin de la période post-injection est montrée dans la Figure 7-14 (image prise de Trevisan et al., 2014). La comparaison de cette distribution mesurée avec celles simulées avec hystérésis (Figure 7-15a ; modèle Beriozkin et Mualem 2018) et sans hystérésis (Figure 7-15b), montre que l'effet de l'hystérésis améliore considérablement la migration du panache du Soltrol-220 observée expérimentalement. Contrairement au modèle non hystérétique, qui simule approximativement une migration de toute la masse du fluide non-mouillant injecté dans le système, le modèle d'hystérésis arrive à reproduire le piégeage observé du panache dans le système.

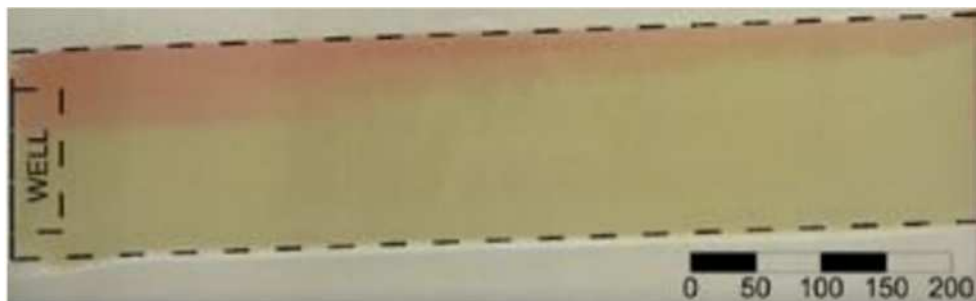


Figure 7-14 – Image prise de l'expérience de Trevisan et al. (2014) à la fin de la période post-injection ( $t = 15$  jours), montrant la distribution du Soltrol-220 (couleur rouge) dans le réservoir saturé en eau-glycérol.

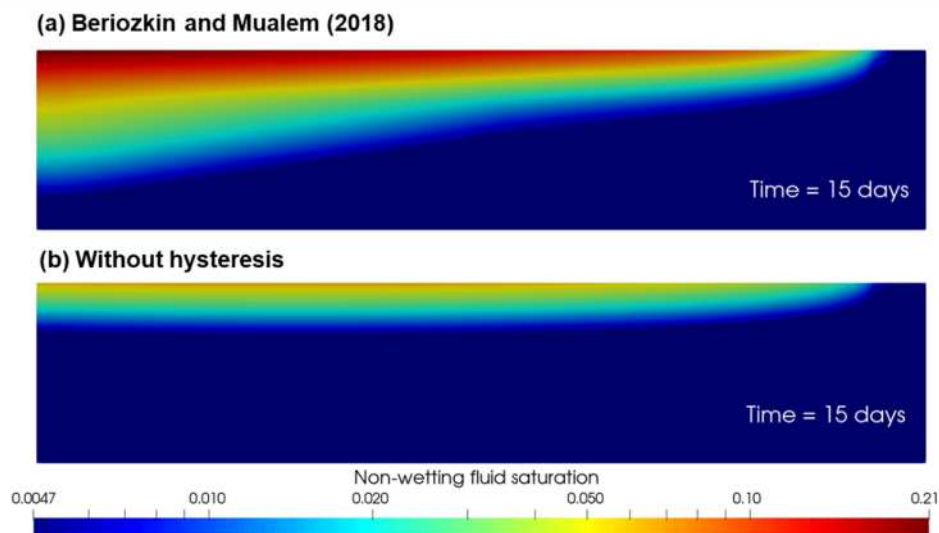


Figure 7-15 – Distribution 2D de la saturation en Soltrol-220 simulée à la fin de la période post-injection ( $t = 15$  jours) : (a) avec hystérésis (modèle Beriozkin et Mualem 2018) ; (b) sans hystérésis.

Afin d'estimer la différence entre un modèle hystérétique et un modèle non-hystérétique en termes de reproduction de la migration du panache du Soltrol-220, les moments spatiaux fournis par des mesures par les rayons X (Trevisan et al., 2014) ont été comparés avec ceux simulées (Eq. (7-1)) :



$$(7-1) \quad M_{i,j}(t) = \iint \phi(x, z) S_{nw}(x, z, t) x^i z^j dx dz$$

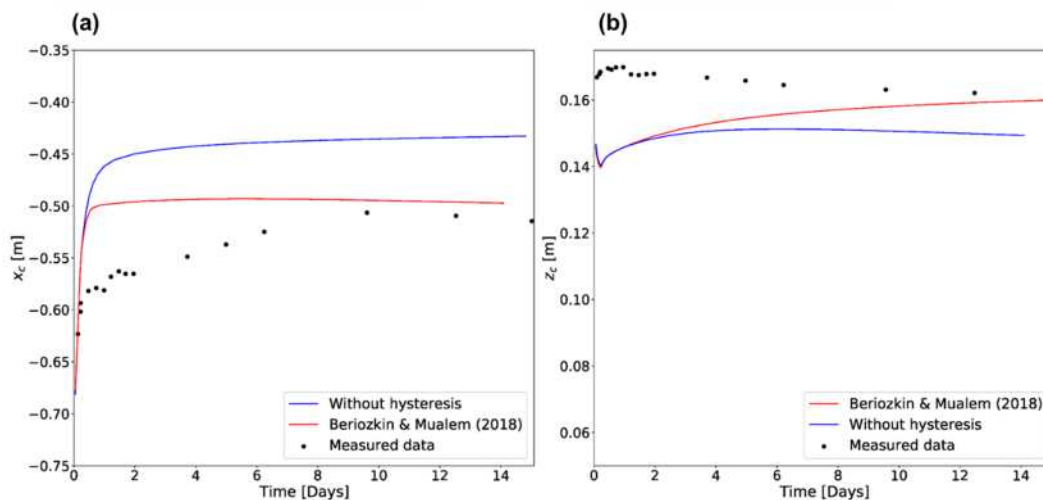
Où  $M_{i,j}$  est le moment spatial d'ordre  $i$  et  $j$  au temps  $t$ ;  $\phi(x, z)$  est la porosité du centre de l'élément de coordonnées  $(x, z)$ ; et  $S_{nw}$  est la saturation de la phase non-mouillante dans ce même élément à chaque instant  $t$ .

Les premiers moments de  $S_{nw}$  dans les directions Ox et Oz, sont définis par les relations suivantes :

$$(7-2) \quad x_c(t) = \frac{M_{1,0}(t)}{M_{0,0}(t)}$$

$$(7-3) \quad z_c(t) = \frac{M_{0,1}(t)}{M_{0,0}(t)}$$

Les coordonnées  $x_c$  et  $z_c$  peuvent être interprétées comme étant les coordonnées du centre de masse du panache.



**Figure 7-16 – Evolutions temporelles de la position du centre de masse du panache, simulées (avec et sans hystérésis) et mesurées (prises de Cihan et al., 2017) : a/ position horizontale ( $x_c$ ) ; b/ position verticale ( $z_c$ ).**

La Figure 7-16 montre les variations temporelles mesurées et simulées (avec et sans hystérésis) de la position du centre de masse du panache. Durant la période d'injection du Soltrol-220 ( $t < 5.5$  h), on constate que les deux modèles (avec et sans hystérésis) sous-estiment (en valeur absolue) les positions  $x_c$  et  $z_c$  du panache, avec une légère amélioration des courbes simulées par le modèle d'hystérésis. En revanche, dès le début de la période post-injection ( $t > 5.5$  h), la différence entre le modèle d'hystérésis et les mesures  $x_c(t)$  et  $z_c(t)$  commence à s'estomper, pour devenir très faible aux temps finaux (régime stationnaire) ; alors que celle entre le modèle sans hystérésis et les mesures continue à augmenter jusqu'à la fin de la phase post-injection.

Cette différence observée durant la phase transitoire d'injection du Soltrol-220 est probablement due aux propriétés des fluides très différentes de celles utilisées dans les travaux de Trevisan et al. (2014) et Cihan et al. (2017), ainsi qu'au traitement différent de la condition à la limite imposée au niveau du puits (Amri, 2021).

Cihan et al. (2017) ont obtenu des résultats légèrement meilleurs durant la période d'injection du Soltrol-220 en utilisant un modèle d'hystérésis différent de celui proposé dans cette étude, mais la différence entre l'évolution temporelle du centre de masse du panache simulée par notre modèle et celle simulée par Cihan et al. (2017) n'était pas substantielle durant la phase post-injection.



A la lumière de ces résultats de simulation et leur comparaison avec des données expérimentales, nous pouvons conclure que les modèles d'hystérésis sont plus appropriés à prédire la migration du panache durant la période post-injection. La comparaison entre les différents modèles d'hystérésis montre que la prise en compte du piégeage d'un fluide non-mouillant dans un milieu poreux initialement saturé par un fluide mouillant est nécessaire pour améliorer les résultats de simulation à long terme du mouvement du fluide non-mouillant durant les phases de redistribution.

## 7.4 Conclusion

Dans ce chapitre, une revue détaillée et une évaluation quantitative des modèles conceptuels les plus importants concernant la représentation de l'hystérésis ont été présentées. Cette revue critique indique que les modèles hystérétiques diphasiques sont globalement en accord avec les données expérimentales, du moins par comparaison avec les modèles sans hystérésis.

### Ce qu'il faut retenir :

- ✓ La comparaison entre les différents modèles hystérétiques théoriques communément connus dans la littérature sur les données mesurées de courbes de rétentions hystérétiques de différents matériaux poreux non saturés suggère que le modèle de Beriozkin et Mualem (2018) produit les meilleurs résultats ;
- ✓ La modélisation de l'expérience de Trevisan et al. (2014), dans laquelle un fluide non-mouillant est injecté dans un réservoir initialement saturé en un fluide mouillant, confirme la nécessité de tenir compte de l'hystérésis dans un tel système diphasique, en particulier en régime post-injection ;
- ✓ L'éventuel piégeage de la phase non-mouillante peut également affecter les résultats des simulations et devrait être pris en compte ;
- ✓ Les simulations numériques de l'expérience de Trevisan et al. (2014) par les différents modèles d'hystérésis confirment que le modèle de Beriozkin et Mualem (2018) est le plus performant pour représenter l'hystérésis, d'une part, vu son adéquation avec les résultats expérimentaux, et d'autre part, vu la simplicité de son implémentation et ses faibles temps calculs CPU.

### Ce qu'il faut résoudre, améliorer et/ou compléter :

- ✓ Prendre en compte l'existence d'une pression d'entrée capillaire non nulle dans le modèle d'hystérésis de Beriozkin et Mualem (2018) par une nouvelle méthode ; Pour résoudre ce problème, la méthode  $P_c$  (ou PCM ; cf. § 6.3.1) apparaît la plus convenable. Toutefois, l'inversion des courbes sera une condition nécessaire au calcul des courbes intermédiaires. Ainsi, il faudra distinguer dans les tests thermodynamiques entre les courbes intermédiaires et les courbes principales lors de la résolution par cette méthode numérique. Ces deux points sont essentiels pour pouvoir appliquer le modèle de Beriozkin et Mualem (2018) à toute fonction présentant la courbe de rétention avec une pression d'entrée non nulle (e.g., modèle VGMPE ; cf. § 6.1) ;
- ✓ L'effet de l'hystérésis du CO<sub>x</sub> sur l'expérience PGZ1-GAZ n'a pas pu être testé à la fin de cette étude pour les raisons suivantes :
  - i. Les données actuellement disponibles sur les courbes de rétention mesurées au cours du mouillage et de séchage du CO<sub>x</sub> (Figure 7-17a) ne sont pas directement exploitables. En effet, même si leur ampleur est bien observée (Figure 7-17b), deux chemins de séchage et de mouillage ne reflètent pas un chemin hydrique principal : à partir d'une saturation donnée, chaque auteur a suivi un chemin de mouillage ou de séchage. On observe également le chevauchement de certaines courbes mesurées en séchage avec celles mesurées en mouillage (Figure 7-17b), ce qui pose des difficultés pour la caractérisation des paramètres d'entrée des modèles pour la modélisation numérique de l'hystérésis ;

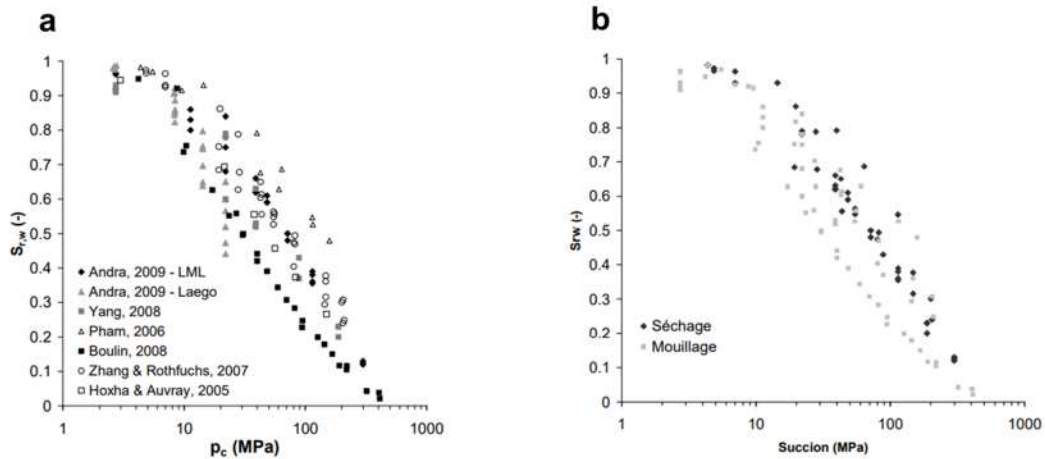


Figure 7-17 - Données expérimentales de courbes de rétention de l'argile du COx synthétisées par Gérard (2011). (a) Courbes de rétention issues des différentes études. (b) Mise en évidence de l'hystérésis.

- ii. En outre, si l'hystérésis a pu être identifié d'une manière approximative pour les courbes de rétention mesurées du COx ( $S_l(P_c)$ ), ce n'est pas le cas pour les courbes de perméabilités relatives à l'eau et au gaz ( $k_l(P_c)$  et  $k_g(P_c)$ ). Peu de mesures de ces deux dernières sont réalisées, et son souvent mesurées en cas de séchage ;
- iii. Enfin, la variation du degré de saturation en eau au voisinage de la chambre dans le COx et l'EDZ est très faible (Figure 6-14), ce qui ne permet pas de tester d'une manière lisible l'effet d'hystérésis dans cette expérience.

## 8. Transport de l'hydrogène à différentes échelles spatiales

### Abstract

*This chapter presents, firstly, the Cigéo project (Centre Industriel de stockage GÉologique) for the disposal of HL (high-level) and ILL (Intermediate long-lived) radioactive waste in a deep geological repository at Bure (Meuse / Haute Marne – North-East France), and secondly, example studies of modelling of two-phase flow and transfer of hydrogen (generated by anaerobic corrosion of metallic components in the repository) at different spatial scales of the disposal facility (waste cell, module of hundreds of cells, site of many modules). The models of a HLW cell and a module of one hundred HLW cells described in the benchmarks of FORGE (Wendling et al., 2019) are simulated by the modified iTOUGH2/EOS5 with non-negligible capillary entry pressure ( $P_{c,e} \neq 0$ ) for each porous material (COx, EDZ, bentonite, backfill). The main objective of these simulations is to assess differences in  $H_2$  pressure in both domains (cell and module) compared to the classical simulations with negligible capillary entry pressure ( $P_{c,e} = 0$ ). Results simulated by these models will serve, on the one hand, as a basis to ensure that our models are well implemented (meshing, initial and boundary conditions,  $H_2$  source term) by comparison to those simulated by other international institutions, and on the other hand, to identify numerical difficulties generated by non-negligible capillary entry pressure and by the presence of interfaces between seals and EDZ or COx, as well as their eventual impact on gas flow in the COx and backfilled drifts. Finally, the disposal site of 13 HLW modules, proposed in the safety case of Cigéo project, is modelled under some assumptions on the layout of the disposal (reduced to its main drift; Saâdi et al., 2020). A priori, simulations are conducted with negligible capillary entry pressure with the main objective to know whether piston effect of gas on water displacement (main driving mechanism of radionuclides transport) in the main drift to the wells is significant or not.*

Ce chapitre présente, tout d'abord le contexte du projet Cigéo pour l'installation d'un stockage géologique profond de déchets radioactifs en France, puis des exemples d'études de modélisation des transferts diphasiques de  $H_2$  (généralisé par corrosion anaérobie de l'acier des composants métalliques dans le stockage) aux différentes échelles spatiales d'une telle installation (alvéole HA, module d'une centaine d'alvéoles HA, quartier de plusieurs modules HA). Les modèles de l'alvéole et du module HA décrits dans les benchmarks de FORGE (Wendling et al., 2019) sont simulés par le code iTOUGH2/EOS5 modifié avec une pression d'entrée capillaire non négligée ( $P_{c,e} \neq 0$ ) pour chacun de leurs composants matériels (COx, EDZ, bentonite, remblai). L'objectif de ces simulations est d'évaluer la différence de pression de  $H_2$  au sein de ces deux ouvrages par rapport aux cas classiques étudiés avec une pression d'entrée capillaire négligée ( $P_{c,e} = 0$ ). Les modèles développés serviront, d'une part comme références pour s'assurer de la bonne implémentation de nouveaux modèles (maillage, conditions initiales et aux limites, terme source de  $H_2$ ), en les comparant à ceux des équipes internationales travaillant sur l'étude de faisabilité des stockages profonds, et d'autre part pour statuer sur les difficultés numériques qu'engendrent une paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$  et la présence des interfaces entre les scellements et l'EDZ ou le COx, ainsi que leur impact sur l'écoulement de la phase gazeuse dans le COx et dans le réseau de galeries remblayées. Enfin, le site du quartier HA (13 modules) de Cigéo proposé dans le cadre du dossier de sûreté 2016 sera modélisé moyennant des hypothèses très simplificatrices de son architecture (réduit à sa galerie principale ; Saâdi et al., 2020). A priori les simulations ont été conduites en négligeant la pression d'entrée capillaire, avec pour objectif d'estimer l'impact de l'effet piston du gaz  $H_2$  sur l'écoulement de l'eau (agent principal de transport de radionucléides) dans la galerie principale vers les puits.

### 8.1 Introduction

#### 8.1.1 Installation Cigéo

L'architecture générale de l'installation souterraine retenue au stade du DOS (Andra, 2016a,b) est présentée Figure 8-1.

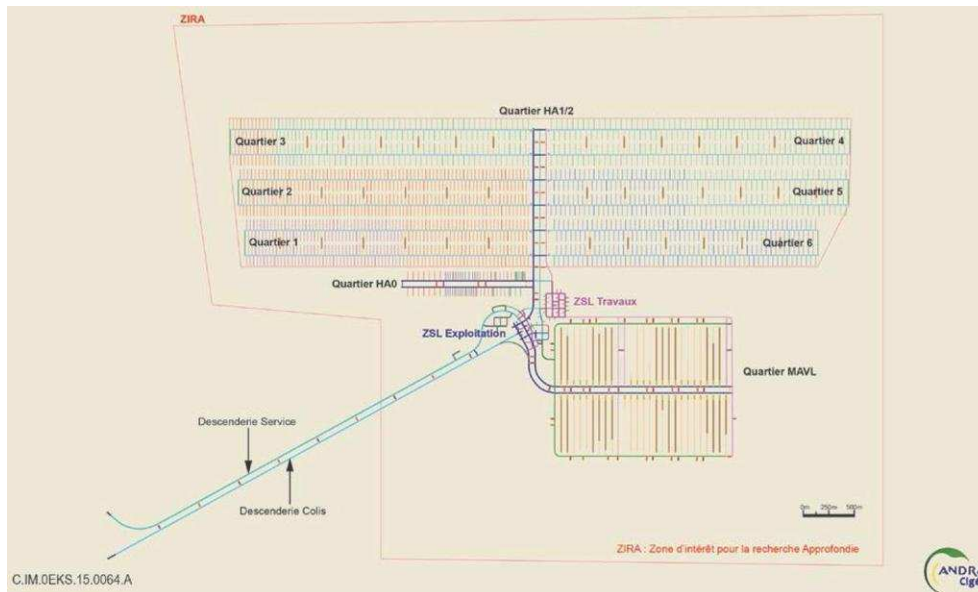


Figure 8-1 – Architecture à terminaison de l'installation souterraine du projet Cigéo (d'après Andra, 2016b).

La zone de soutien logistique pour l'exploitation prévue par l'Andra (2016a) dessert les différentes zones de stockage via des galeries de liaison, à savoir une zone de stockage MAVL, une zone de stockage HA0 dédiée aux colis de déchets vitrifiés moyennement exothermiques et une zone de stockage HA constituée de six quartiers pour les colis de déchets vitrifiés fortement exothermiques.

La galerie de liaison située dans le prolongement de la descenderie de service sera creusée au tunnelier alors que toutes les autres galeries seront creusées à l'aide d'une machine à attaque ponctuelle.

L'Andra (2016a) prévoit des galeries de recoupe au niveau des galeries de liaison (pour les zones de stockage MAVL et HA présentées ci-dessous) et des galeries d'accès (pour la zone de stockage HA). Ces galeries de recoupe peuvent avoir des fonctions techniques (sous-stations électriques, locaux techniques...), d'évacuation et/ou d'intervention des secours.

La profondeur moyenne d'implantation de l'installation souterraine est de 525 m. Ainsi que précisé au cours de l'instruction, le niveau d'implantation présente une légère pente qui tend à suivre le pendage du Callovo-Oxfordien (1,5° OSO).

#### ➤ Zones de stockage et alvéoles MAVL et HA

L'Andra (2016a) retient le principe de deux galeries de liaison desservant l'ensemble des alvéoles MAVL, chaque alvéole possédant une galerie d'accès. Le quartier de stockage MAVL comportera, à terminaison, environ 50 alvéoles. Celles-ci sont orientées selon la contrainte horizontale majeure (N155°) afin de limiter l'endommagement de la roche lors du creusement.

Au stade du DOS, les alvéoles MAVL sont espacées de 5 diamètres. Elles ont un diamètre utile qui varie selon le type de colis (3 à 7 m), et correspondent à des « tunnels » reliés d'un côté à une galerie d'accès menant à la galerie de liaison, et de l'autre à une galerie de jonction (environ 30 m) menant à une galerie de retour d'air (Figure 8-2). Les colis de stockage sont placés dans la partie utile des alvéoles de 500 m de long sur un, deux ou trois niveaux et rangés en fonction du type de colis de stockage.

Les conteneurs de stockage MAVL retenus par l'Andra (2016a) sont de forme parallélépipédique en béton pour la majorité des familles de colis et en acier pour quelques familles de colis. La Figure 8-3 illustre la conception d'un conteneur de stockage MAVL à couvercle vissé. Ces conteneurs sont dimensionnés pour accueillir un à quatre colis primaires. Les colis de stockage MAVL ont des dimensions de 1,28 à 2,25 m de côté et une masse maximale de 17 tonnes.

La solution de stockage proposée par l'Andra dépend du type de colis primaire de déchets MAVL (IRSN, 2017a).

Pour les zones de stockage HA (HA0 et HA1/HA2), l'Andra envisage des galeries de liaison desservant les galeries d'accès, qui à leur tour desservent 72 alvéoles (Figure 8-1). Les six quartiers de la zone HA contiennent chacun environ 250 alvéoles (1465 en tout). Les alvéoles HA sont orientées selon la contrainte horizontale majeure comme pour le cas des alvéoles MAVL. L'Andra retient un concept d'alvéole HA basé sur un micro-tunnel borgne d'une longueur de 80 m pour les alvéoles HA0 et 100 m pour les HA1/HA2 (Figure 8-4, en haut). Deux diamètres d'alvéole HA sont retenus à ce stade : 610 mm ou 712 mm, selon la taille des colis de stockage. Les colis sont positionnés les uns derrière les autres, éventuellement séparés pour les plus chauds par des intercalaires.

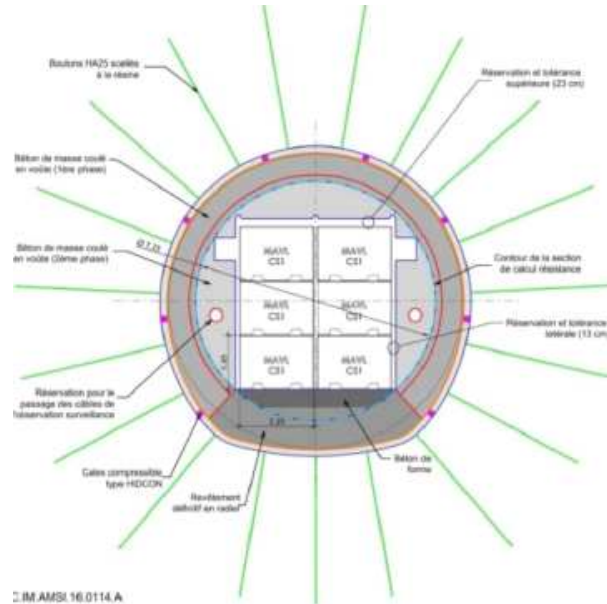
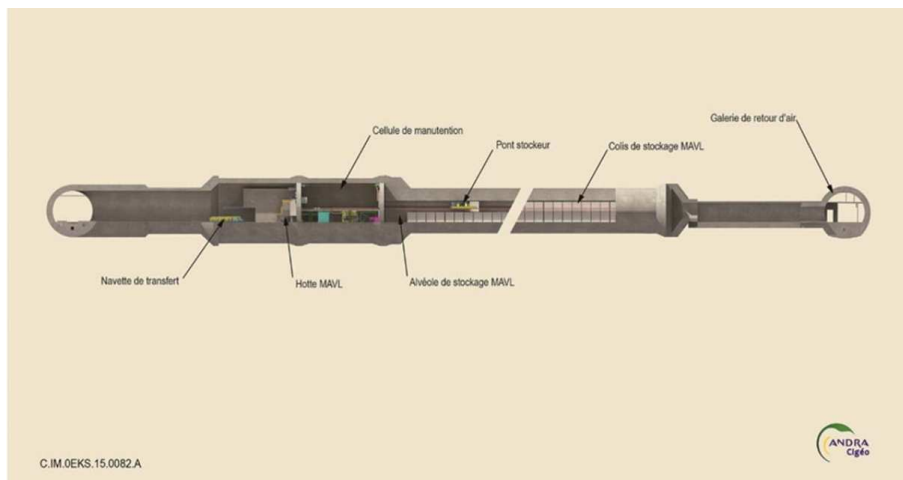
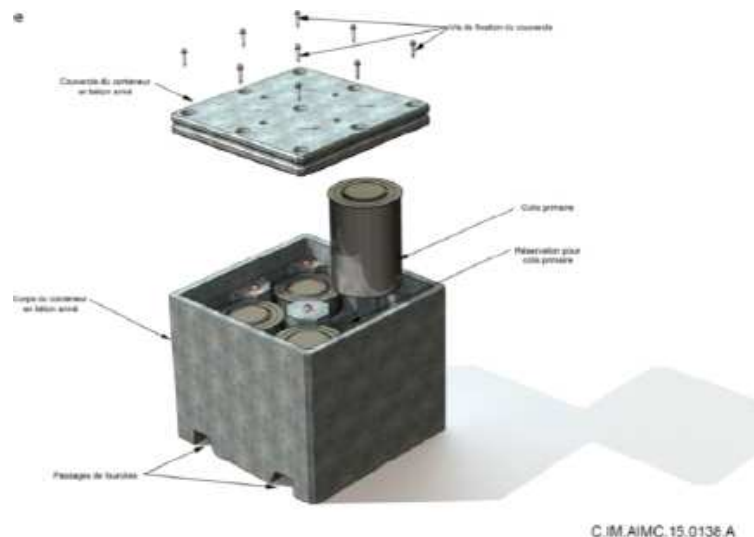


Figure 8-2 – En haut, schéma d'un alvéole MAVL. En bas, section type d'alvéole MAVL CS1, avec soutènement, revêtement et béton de remplissage (d'après Andra, 2016a).



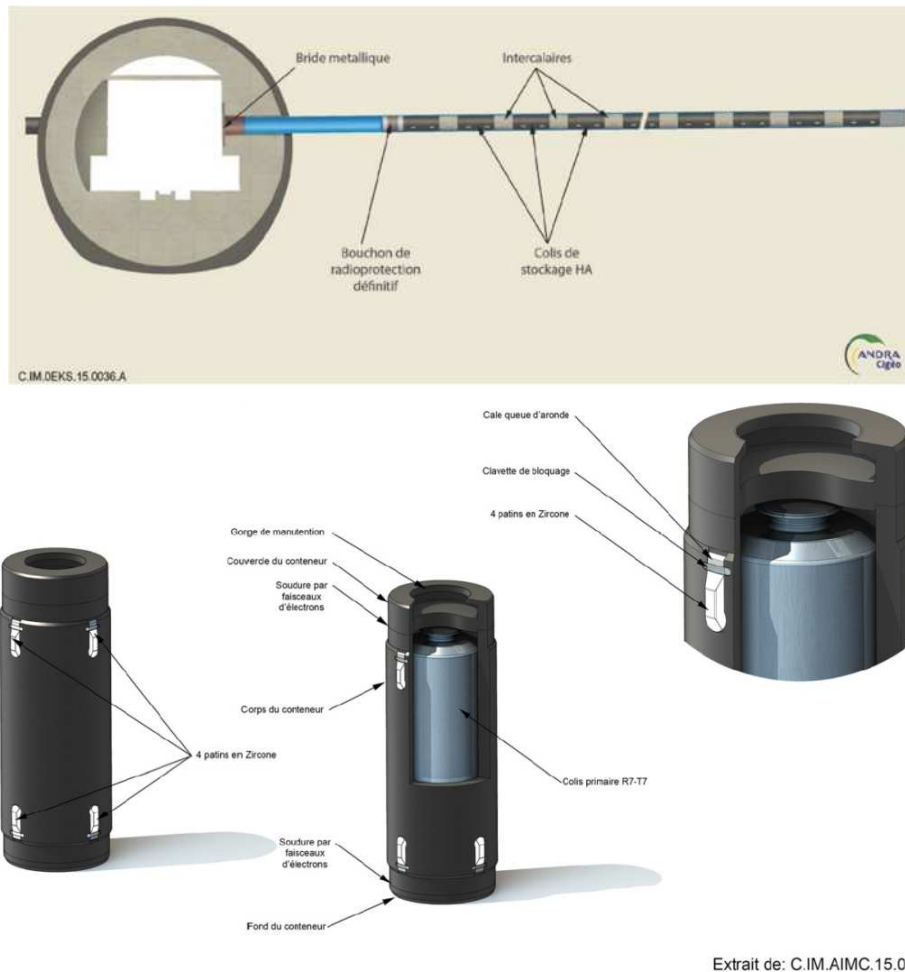
**Figure 8-3 – Schématisation d'un conteneur de stockage MAVL en béton (CS4) à couvercle vissé accueillant quatre colis primaires (d'après Andra, 2016a).**

L'alvéole est légèrement inclinée ( $2\% \pm 1\%$ ) afin de permettre l'écoulement d'éventuels effluents vers la galerie d'accès. Chaque alvéole comprend une partie utile destinée à recevoir les colis, chemisée sur toute sa longueur par des tronçons de tubes cylindriques épais d'au moins 25 mm en acier à bas carbone, un insert en acier en tête d'alvéole, de diamètre supérieur à celui du chemisage pour permettre sa dilatation thermique et ancré au revêtement définitif de la galerie d'accès et au massif d'accostage, ainsi qu'un bouchon d'exploitation assurant la protection radiologique en dehors des périodes d'insertion de colis dans l'alvéole (Figure 8-4, en haut). L'espace annulaire entre le chemisage et la roche est rempli par un matériau de remplissage qui n'est pas encore défini. L'Andra (2016b) précise que ce matériau doit avoir une charge alcaline suffisante pour neutraliser le transitoire acide et constituer un environnement favorable à la passivation des aciers du chemisage et des conteneurs tout en respectant les exigences vis-à-vis des déchets, à savoir conduire à un pH inférieur à 10 lors de l'arrivée de l'eau au contact du verre nucléaire. Au cours de l'instruction, l'Andra a précisé que le matériau, actuellement étudié, est un mélange de ciment et de bentonite.

Le DOS indique (Andra, 2016a) que les conteneurs de stockage HA sont de forme cylindrique ; ils se composent d'un corps en acier forgé non allié constitué d'une virole d'épaisseur comprise entre 53 et 65 mm, d'un fond soudé d'une épaisseur adaptée à celle de la virole et d'un couvercle de forme convexe (limitant la surface de contact entre les colis de stockage en alvéoles) réalisés dans la même nuance d'acier. En outre, quatre patins en céramique évitant un contact direct acier/acier entre le colis de stockage et le chemisage des alvéoles de stockage sont prévus sur le corps du conteneur. Ils facilitent le glissement du colis de stockage lors de sa mise en place et de son éventuel retrait. Du fait de sa nature non sensible à la corrosion, le patin porte l'identification du colis (gravure). Enfin une gorge de manutention est prévue. La Figure 8-4 (en bas) illustre la conception du conteneur de stockage HA adapté à un colis primaire de déchets vitrifiés de type R7T7.

Les conteneurs de stockage HA sont dimensionnés pour accueillir un ou deux colis primaires, voire trois pour les colis primaires les plus courts. Les colis de stockage ont pour dimensions maximales environ 2,3 m de longueur, 64 cm de diamètre et pour masse maximale environ 3,2 tonnes.





Extrait de : C.IM.AIMC.15.0131.A

**Figure 8-4 – En haut, schéma d'un alvéole HA. En bas, illustration d'un conteneur de stockage HA pour colis primaire de déchets vitrifiés de type R7T7 (d'après Andra, 2016a).**

#### ➤ Fermeture du stockage - ouvrages de scellements

Après l'exploitation, l'installation sera fermée et placée en phase de surveillance. Cigéo est destiné, une fois fermé, à assurer de manière passive les fonctions de sûreté après fermeture. L'Andra prévoit que des opérations de fermeture progressives soient engagées pendant la période d'exploitation : ces opérations consistent en un démantèlement des équipements d'exploitation (« démantèlement ») et à la construction d'ouvrages de fermeture.

Pour l'installation souterraine, les équipements fixés dans les bétons ainsi que ceux des parties utiles des alvéoles de stockage sont laissés en place. Chaque quartier est fermé en une seule et même opération regroupant la construction des ouvrages d'obturation de tous les alvéoles et le remblaiement et le scellement des galeries nécessaires à sa fermeture. Au stade du DOS, hormis pour les alvéoles de stockage, toutes les cavités de Cigéo seront comblées (remblayées, scellées ou remplies de béton).

L'Andra (2016c) indique que Cigéo est conçu pour que les opérations de fermeture partielle puissent être engagées par l'exploitant sur toute la période d'exploitation de Cigéo. Ces opérations consistent à obturer des alvéoles de stockage et à remblayer et sceller des galeries.

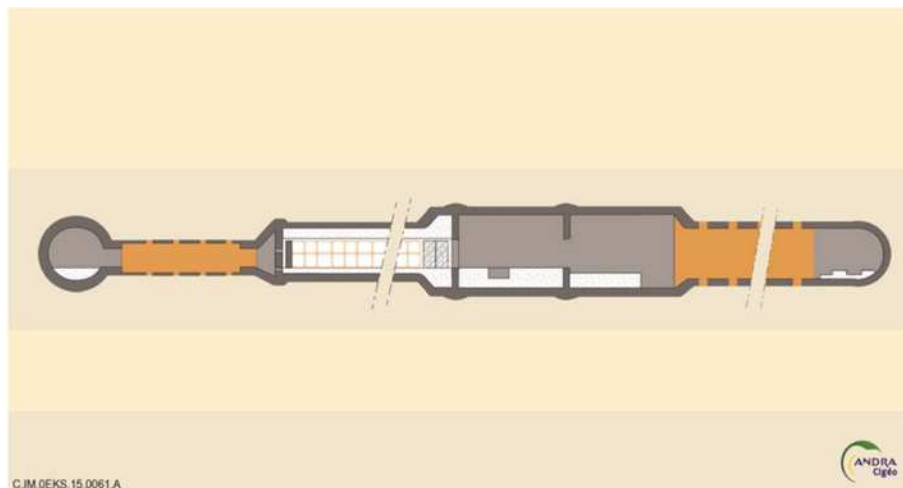
Dans le calendrier actuel, la fermeture définitive de Cigéo est prévue vers 2150. Elle consiste à remblayer les dernières galeries de la zone de soutien logistique ainsi qu'à sceller et remblayer les puits et descenderies. Le démantèlement des installations de surface se poursuivra quelques années après la fermeture définitive de l'installation souterraine de Cigéo.

Les scellements de puits et descenderies sont des ouvrages constitués de noyaux à base d'argile gonflante placés dans la partie supérieure du Callovo-Oxfordien (« toit » de la formation hôte).

Le remblaiement des galeries est prévu par réutilisation des déblais argileux excavés au moment du creusement et entreposés sur les verses en surface.

Le principe d'obturation (fermeture) des alvéoles HA est montré dans la Figure 8-4. Il consiste en un bouchon de radioprotection « de fermeture » ou « définitif » (cylindre métallique muni de patins, manutentionné de la même façon que les conteneurs), placé dès la fin du remplissage d'un alvéole (à environ 7 m de la galerie d'accès), suivi d'un « bouchon » à base d'argile d'une longueur d'environ 2 m au minimum. La composition du matériau argileux du bouchon n'est pas fixée à ce stade. Après la mise en place des bouchons d'argile, la ventilation nominale de la galerie d'accès est arrêtée et son remblaiement est mis en œuvre.

Le principe d'obturation de chaque alvéole MAVL est montré dans la Figure 8-5. A ce stade, l'Andra n'a pas d'option de référence pour la nature du matériau argileux comblant la galerie à l'entrée de l'alvéole et la galerie de jonction de retour d'air ; les deux options étudiées sont un scellement à noyau en argile gonflante ou la mise en place d'un remblai à base d'argilites excavées.



**Figure 8-5 – Schéma de fermeture de l'alvéole MAVL : illustration des scellements, au stade de fin d'avant-projet sommaire (d'après Andra, 2016a). Lors de l'exploitation : radiers et bétons de coffrage en blanc, béton de revêtement en gris foncé. Lors de la fermeture : béton de remplissage en gris clair, matériau argileux de scellement en orange.**

L'Andra (2016a) indique que les « scellements horizontaux » (ou « scellements de fond ») sont implantés dans l'unité argileuse du Callovo-Oxfordien, dans les galeries de liaison reliant les quartiers de stockage (quartier HA1/HA2 et quartier MAVL) aux liaisons surface-fond. Les tronçons de galerie destinés à recevoir des scellements horizontaux sont orientés parallèlement à la contrainte principale majeure afin de limiter la zone endommagée induite par l'excavation. Afin de maintenir ouverte à ce stade la possibilité de prendre en compte ou non le phénomène d'auto-colmatage de la zone endommagée, lié au gonflement des minéraux inter-stratifiés illite/smectite des argilites, l'Andra étudie les deux options montrées dans la Figure 8-6a.

A ce stade, la localisation précise des scellements horizontaux n'est pas encore fixée (Andra, 2016a). L'Andra a précisé au cours de l'instruction que le positionnement « sera ajusté en lien avec l'évolution de l'architecture rendue possible par son développement incrémental et sa conception modulaire de manière à prendre en compte les progrès scientifiques et techniques qui interviendront à cet horizon ».

L'Andra retient un objectif de performance pour les scellements horizontaux exprimé en termes de perméabilité en grand (incluant tous les composants, y compris l'interface noyau-argilites) inférieure à  $10^{-9}$  m/s. La longueur minimale du noyau est de deux fois le diamètre excavé de l'ouvrage, soit une vingtaine de mètres. Des massifs d'appui en béton de type « bas pH » seraient construits de part et d'autre pour confiner mécaniquement le noyau, en fonction de la pression de gonflement visée. Afin de limiter la perturbation chimique, les portions de revêtement laissées en place au droit des scellements seront de type béton « bas pH » (pH du béton sain [après prise]  $\leq 11$ )

jusqu'à une distance au moins égale à un diamètre de l'ouvrage de part et d'autre du noyau. Selon l'Andra, « la question de la mise en place des revêtements en béton bas pH au droit des futurs scellements dès la phase de construction ou de manière différée lors de la mise en place de ces scellements reste ouverte ».

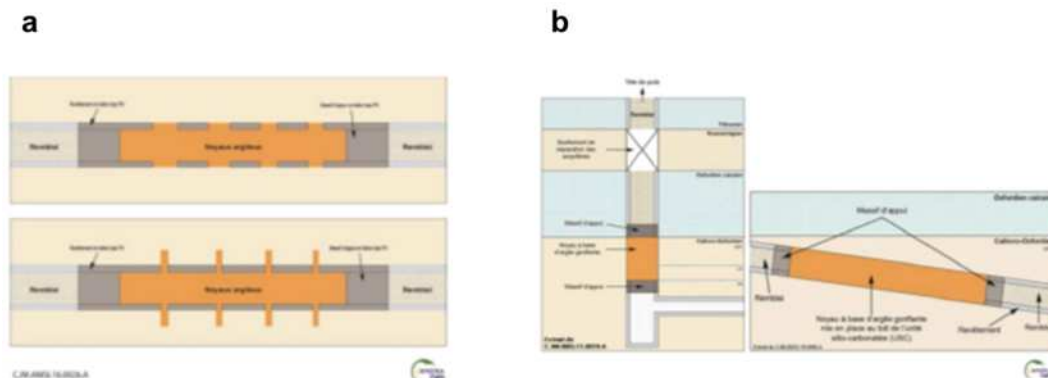


Figure 8-6 – a/ Schémas de principe des deux options de scellements horizontaux ; b/ Schémas de principe de scellements verticaux et inclinés des liaisons surface-fond (d'après Andra, 2016a).

Les scellements de liaisons surface-fond (Andra, 2016a) sont verticaux pour les puits et inclinés pour les descenderies (Figure 8-6b). Ils sont placés dans les unités silto-carbonatés et de transition du Callovo-Oxfordien pour les puits, et dans les unités silto-carbonatés pour les descenderies. Des scellements de séparation des formations aquifères sont prévus au droit du Kimméridgien, conformément au Code de l'environnement. L'Andra retient un objectif de perméabilité en grand du noyau à saturation de l'ordre de  $10^{-11}$  m/s et une pression de gonflement (pression effective) comprise entre quelques méga-pascals et 4 MPa. La longueur du noyau est le plus grand possible soit, compte tenu de l'épaisseur des unités silto-carbonatés, de 40 m dans les puits et d'au moins 100 m dans les descenderies. Le noyau est confiné mécaniquement par des massifs d'appui en béton qui doivent lui permettre de développer sa pression de gonflement. Afin de limiter la perturbation chimique liée aux bétons, l'emploi de formulations de type « bas pH » est retenu à la fois pour les massifs et pour les tronçons de revêtements qui pourraient rester en place (en particulier au droit des massifs jusqu'à une distance au moins égale à un diamètre de l'ouvrage de part et d'autre du noyau), à l'instar de l'option retenue pour les scellements de fond.

### 8.1.2 Problématique et démarche scientifique

L'évaluation de l'évolution hydraulique d'une installation de stockage est parmi les grands défis pour assurer sa sûreté à long terme. Dans cet objectif, la modélisation numérique permet d'avoir une simulation des éventuelles évolutions du stockage et de tester plusieurs architectures possibles (Brommundt et al., 2014 ; Kaempfer et al., 2014). Toutefois, la modélisation de transfert du gaz à l'échelle du stockage reste encore une tâche difficile. En effet, la disparité des échelles des composants du stockage (de cm à km), la représentation des interfaces par des milieux poreux équivalents, la sensibilité du modèle aux données d'entrée, et les moyens de calcul nécessaires, sont toutes des contraintes qui rendent cette tâche difficile. Dans ce contexte, plusieurs exercices (tests de Benchmark) ont été réalisés dans le cadre notamment de projets européens : COUPLEX-GAZ (Talandier, 2008), FORGE (Wendling et al., 2013a,b ; Wendling et al., 2019), EURAD (Levasseur et al., 2021), pour l'étude de transfert de l'hydrogène à différentes échelles spatiales (alvéole, module, stockage).

Pour pouvoir avancer dans la compréhension des phénomènes de transfert de l'hydrogène aux différentes échelles spatiales de Cigéo, l'IRSN a participé à ces benchmarks et nous étions contraints à développer nos propres modèles pour chaque composant du stockage. Cette démarche est importante pour les études et expertises que mène l'IRSN, elle facilitera par la suite la tâche de développement de différents scénarios incluant les différents phénomènes physiques et chimiques pertinents.

Ce chapitre se consacrera essentiellement aux études de modélisation de transport de gaz aux trois échelles spatiales dans un site de stockage décrites précédemment, en utilisant le code EOS5 des trois plateformes de calcul TOUGH2, iTOUGH2 et TOUGH2-MP. Ces études seront déclinées en trois sections, que l'on étaye comme suit :

- (i) **Echelle de l'alvéole** : Dans un premier temps, les résultats des simulations avec une paramétrisation  $P_{c,e} = 0$  pour le modèle d'un alvéole HA 2D-axisymétrique tel que proposé dans le benchmark FORGE (Wendling et al., 2013a) seront présentées. L'objectif est de vérifier nos hypothèses de développement du modèle de migration de  $H_2$  au voisinage de l'alvéole et de situer nos résultats de calcul par rapport à ceux obtenus par les différentes équipes (LEI, Andra, ENSI, Geofima/NWMO) qui ont participé à ce benchmark, et qui ont également utilisé le code EOS5 des plateformes TOUGH2 et TOUGH2-MP. Dans un second temps, un nouveau scénario avec une paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$  de ce même modèle d'alvéole sera simulé par EOS5 de la plateforme iTOUGH2 (méthode SGM, cf. § 6.3.2) afin de quantifier la différence de pression et de flux de gaz au voisinage de l'alvéole par rapport à un calcul avec paramétrisation  $P_{c,e} = 0$ ;
- (ii) **Echelle du module** : Dans un premier temps, les résultats de simulations par le modèle 3D du module proposé dans le benchmark FORGE avec une paramétrisation  $P_{c,e} = 0$  (Wendling et al., 2013b), seront présentés et discutés. Comme pour le cas de l'alvéole, l'objectif est de vérifier nos hypothèses de développement du modèle et de comparer nos résultats avec ceux obtenus par les équipes qui ont réussi à réaliser ce benchmark dans le cadre de ce projet. De même, ces résultats de calcul seront analysés en détails, en termes de solubilité de l'hydrogène dans le  $CO_x$ , et du mouvement du gaz en régions non saturées dans le réseau de galerie et son voisinage. Dans un second temps, un nouveau scénario sera proposé pour tester une paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$  de ce même modèle afin d'évaluer l'effet d'une pression d'entrée non nulle sur l'évolution de la pression du gaz au sein de ce réseau de galerie;
- (iii) **Echelle du stockage** : une étude numérique de transport de gaz à l'échelle de la zone de stockage HA de Cigéo (Figure 8-1) sera présentée en considérant *a priori* une simplification du terme source atteignant la galerie principale et une paramétrisation  $P_{c,e} = 0$ . Le premier objectif de cette étude consiste à vérifier l'importance de l'*effet piston* de l'hydrogène sur l'écoulement de l'eau au sein de la galerie principale jusqu'au voisinage du puits, en testant différents scénarios de conditions initiales et aux limites et de termes sources de  $H_2$  atteignant la galerie principale.

## 8.2 Echelle de l'alvéole

### 8.2.1 Benchmark sur le modèle 2D axisymétrique de FORGE-2013

L'échelle spatiale de l'alvéole correspond en général à quelques dizaines à une centaine de mètres. Dans ce benchmark, les calculs ont été réalisés avec une paramétrisation  $P_{c,e} = 0$ .

#### ➤ Le modèle d'alvéole HA

Le type d'alvéole HA étudié est celui généralement considéré pour le stockage des déchets HA dans la roche hôte argileuse (Figure 8-7 à gauche). Vue la petite échelle étudiée, les caractéristiques géométriques fines, en particulier les interfaces centimétriques entre le chemisage en acier des conteneurs de déchets HA (*waste canisters*) et l'EDZ (*Enhanced damaged Zone*) de la roche argileuse, et entre le bouchon en bentonite (plug) et l'EDZ de la roche argileuse (Figure 8-8) ont été représentées. Comme la perméabilité est très élevée dans l'EDZ, cette dernière est également représentée. Pour rester aussi générique que possible, un flux de  $H_2$  de **100 mol/an/alvéole** produit sur une durée de **10 000 ans** est considéré comme terme source à travers toutes les surfaces externes des conteneurs. Comme la plupart des matériaux possèdent des perméabilités très faibles, le processus de la capillarité dominera celui de la gravité. Ainsi, le maillage peut être construit comme axisymétrique (Figure 8-8) sans perdre l'importance de la phénoménologie étudiée. Les conditions aux limites dépendantes de temps (pression et saturation en gaz) appliquées à la frontière de la galerie d'accès (*access drift*) remplie par du remblai (*backfill*) sont présentés, Figure 8-7 à droite.

Les conditions initiales et aux limites prises en compte dans le modèle de l'alvéole ainsi que les paramètres physiques, hydrauliques (modèle VGM, Eqs. (1-29), (1-30) et (1-31)) et diffusifs du  $CO_x$ , de l'EDZ, du remblai, de la bentonite et des interfaces bouchon-EDZ et conteneurs-EDZ, sont décrits en détail dans le rapport de FORGE

(Wendling et al., 2013a). Les simulations numériques sont réalisées avec le code TOUGH2/EOS5 (version 2, 1999), pour une durée de **100 000 ans**.

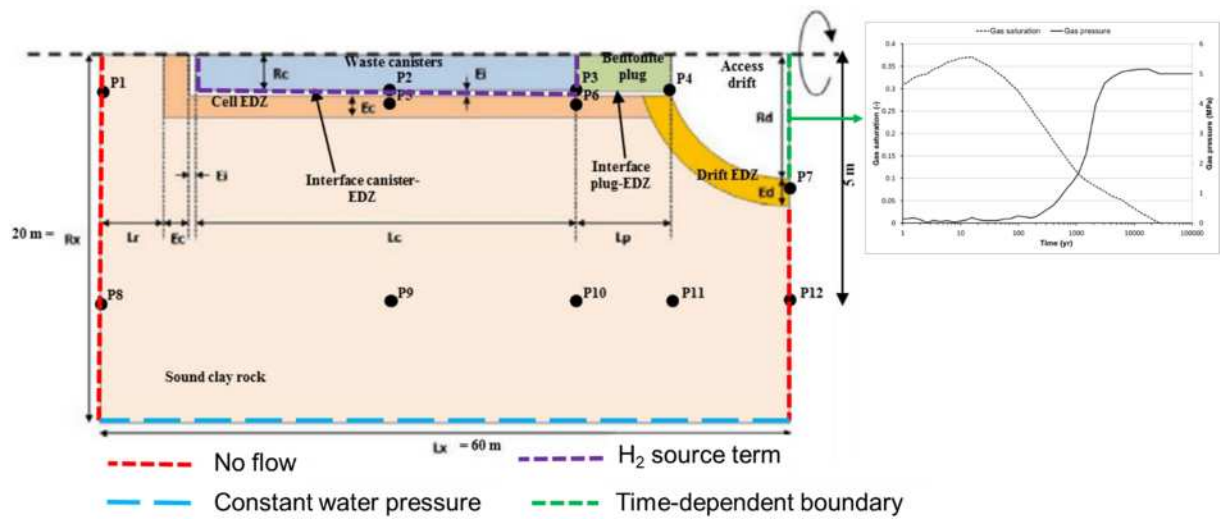


Figure 8-7 – Schématisation des dimensions de la section radiale du modèle d'alvéole HA cylindrique (plan de symétrie autour de son axe axial), des conditions aux limites imposées aux frontières, et de la région de la source de  $H_2$ , et des points de visualisation des résultats de calcul proposés dans l'exercice du benchmark FORGE (Wendling et al., 2013a).

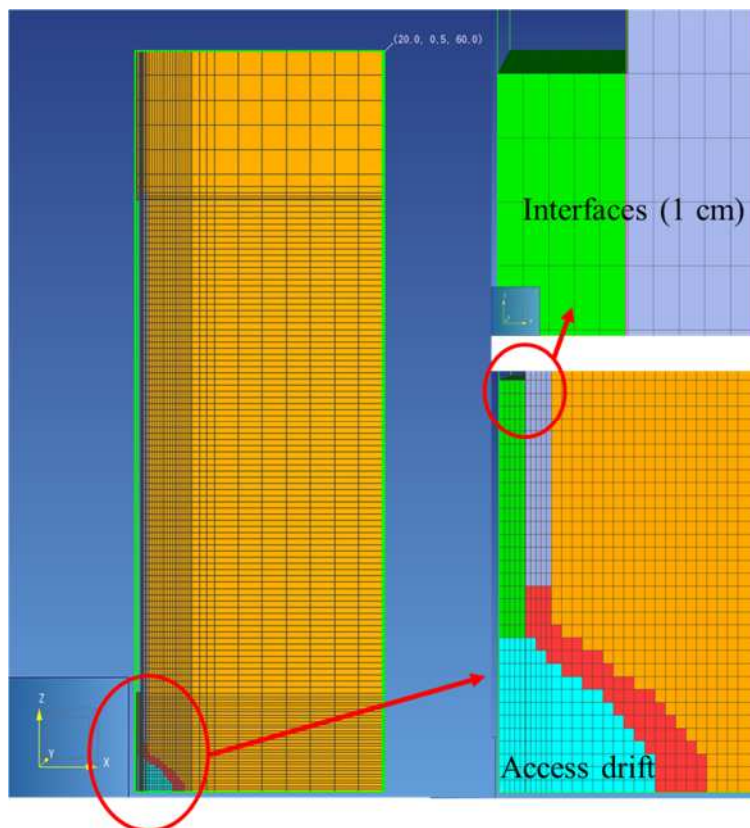


Figure 8-8 – Maillage radial de l'alvéole avec un zoom sur les régions finement maillées (galerie d'accès et interfaces bentonite-EDZ et conteneur-EDZ d'épaisseurs 1 cm).



### ➤ Le benchmark

Nos simulations (Saâdi et al., 2020) ont montré que les formes de courbes de variations temporelles de la pression de la phase liquide aux points P1 et P8-P12, de la pression de la phase gazeuse et du degré de saturation en gaz aux points P2-P7 sont presque identiques à celles simulées par l'équipe de l'Institut Lithuanien de l'Energie (LEI : *Lithuanian Energy Institute*). Un exemple de comparaison entre les courbes de degré de saturation en gaz est présenté Figure 8-9. Ces similitudes entre les courbes ont été observées malgré que certains paramètres du modèle LEI, les équations de la perméabilité relative au gaz ( $k_{r,g}(S_l)$ ) et du coefficient de diffusion effectif de  $H_2$  ( $D_{\beta}^{H_2}$ ,  $\beta \equiv l, g$ ), et l'initialisation de l'EDZ sont différents de ceux proposés par notre modèle, ainsi que de ceux spécifiés dans le benchmark. Même si en termes de grandeur quelques différences ont été observées entre les deux modèles, en particulier après le temps d'arrêt de production de  $H_2$ , ce résultat souligne que ces modèles simulent la même dynamique de transport du gaz au voisinage de l'alvéole. Ce résultat est probablement dû à leur utilisation du même type de maillage (rectangulaire et rectilinéaire), Figure 8-8.

Contrairement à notre modèle (IRSN) d'alvéole et celui de LEI, le modèle ANDRA et le modèle ENSI-IFNS (*Swiss Federal Nuclear Safety Inspectorate*) simulent différemment la dynamique de transport de gaz au voisinage de l'alvéole, en particulier aux points P2 et P3 où la saturation de la phase liquide totale peut être atteinte durant certaines périodes transitoires de l'écoulement (e.g., calculs ANDRA, Figure 8-10A). Le résultat le plus surprenant est que même si le modèle ANDRA diffère de notre modèle uniquement par l'utilisation du modèle de tortuosité de MQ (Eq. (1-19)) au lieu de celui spécifié dans le benchmark, ce modèle ne simule pas la même dynamique de transport du gaz simulée par notre modèle (Figure 8-10B). Ce résultat est probablement dû à l'utilisation du modèle ANDRA d'un maillage quadrilatéral et Cartésien non structuré ne respectant pas vraiment le principe d'orthogonalité de VORONOI au niveau des connections entre les éléments du maillage.

Les profils 2D de degré de saturation en gaz simulés par notre modèle aux temps  $t = 1, 1000$ , et  $10\ 000$  ans sont montrés dans la Figure 8-11. La comparaison entre ces profils et ceux simulés par le modèle de l'équipe Geofirma/NWMO (*Geofirma Engineering Ltd/Nuclear Waste Management Organization in Canada*), Figure 8-12 (Wendling et al., 2019), montre que les différences entre ces deux profils ne sont pas substantielles durant le premier millier d'années. En effet, les zones non-saturées simulées par les deux modèles, développées aux alentours de la galerie d'accès et de l'alvéole, à cause de l'avancement du front de la phase gazeuse, ne sont pas très différents. Cependant, pour des temps très élevés, notre modèle simule un transport radial rapide du gaz dans le COx sur des distances plus lointaines que celles simulées par Geofirma/NWMO : la différence entre les positions de fronts de gaz à  $10\ 000$  ans peut atteindre jusqu'à 5 m.

Ces différences proviennent essentiellement de l'utilisation par le modèle Geofirma/NWMO : i) d'un maillage optimal, considérant à la fois des mailles rectangulaires et radiales au sein de la grille 2D, différent de la discrétisation rectangulaire du modèle que nous utilisons. Cette nature irrégulière de la grille présente l'avantage de raffiner le maillage uniquement aux endroits souhaités, mais présente aussi l'inconvénient de ne pas adhérer aux conditions d'orthogonalité des distances internodales aux interfaces entre deux éléments voisins, nécessaires pour des calculs par la méthode des volumes finis (IFDM) du code TOUGH2 (i.e., certaines distances internodales ne sont pas perpendiculaires à la surface de la connexion, résultant ainsi à de petites distances entre ces nœuds de connexion); ii) d'une version modifiée du modèle de van Genuchten-Mualem (VGM) pour la perméabilité relative au gaz (i.e., modèle de Luckner et al., 1989), ce qui correspond à une déviation par rapport aux spécifications du benchmark; et iii) d'un degré de saturation en gaz résiduel  $S_{gr}$  infinitésimal de l'ordre de  $10^{-6}$  au lieu de zéro pour l'EDZ afin d'améliorer la stabilité numérique et minimiser les oscillations non physiques qui peuvent surgir suite à l'apparition et/ou à la disparition de l'une des deux phases (liquide ou gazeuse).



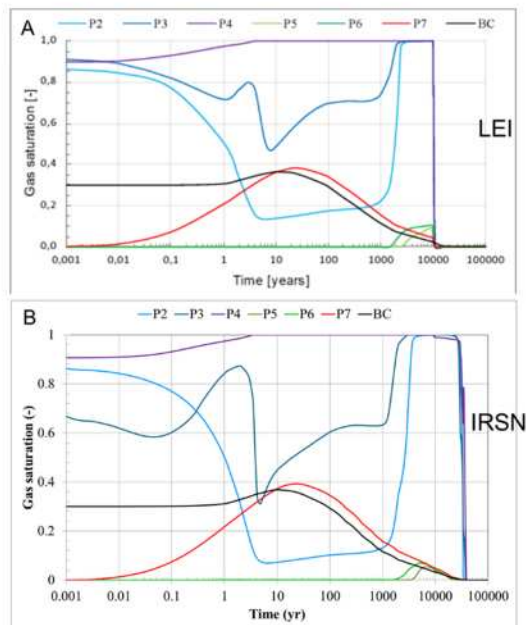


Figure 8-9 – Variations temporelles du degré de saturation en gaz aux points P2-P7 simulées par les modèles d'alvéole: A/ LEI (image prise de Wendling et al., 2013a); B/ IRSN (présente étude).

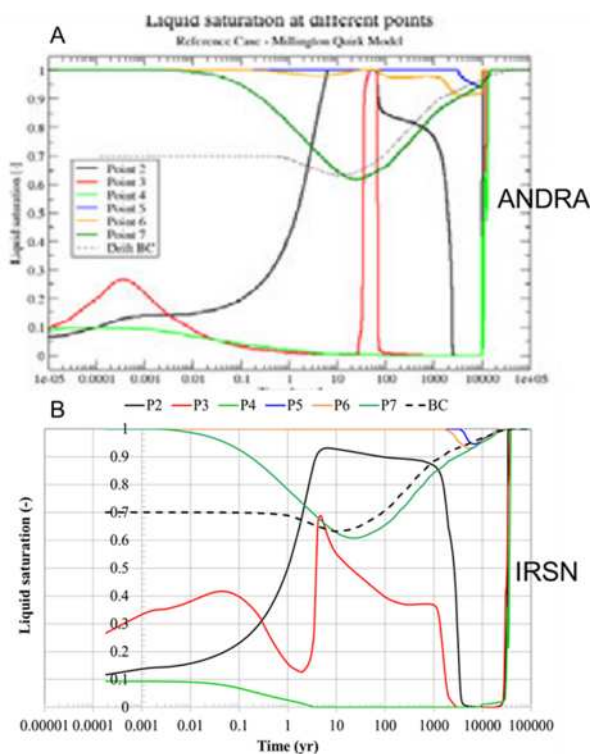


Figure 8-10 – Variations temporelles du degré de saturation en phase liquide aux points P2-P7 simulées par les modèles d'alvéole : A/ ANDRA (image prise de Wendling et al., 2013a) ; B/ IRSN (présente étude).

Comme conclusion de ce benchmark, les résultats simulés par les différentes équipes utilisant le même code EOS5 de la plateforme TOUGH2 ou TOUGH2-MP diffèrent principalement par leur utilisation de maillages différents. La comparaison entre notre modèle et celui de LEI est un très bon exemple. En revanche, cela n'exclut pas de différences en termes de grandeur des variables d'état et de flux.

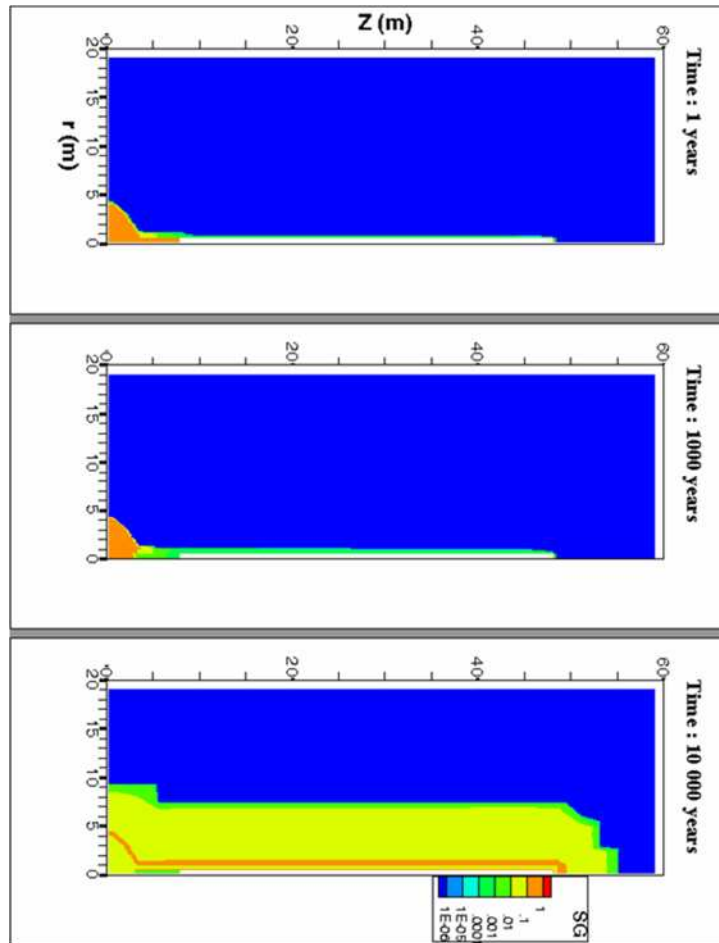


Figure 8-11 – Profils 2D de degré de saturation en gaz à  $t = 1, 1000, 10\ 000$  ans simulés par notre modèle d’alvéole à base du code TOUGH2/EOS5.

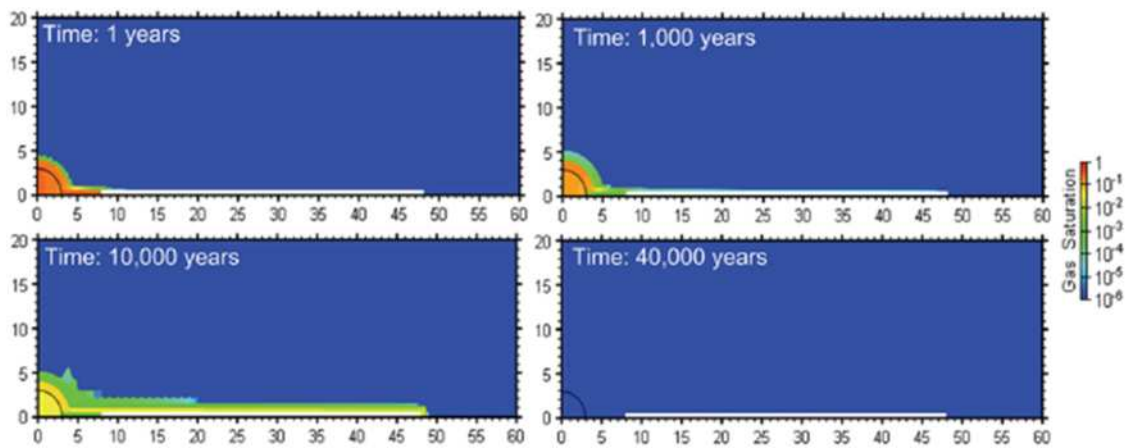


Figure 8-12 – Profils 2D de degré de saturation en gaz à  $t = 1, 1000, 10\ 000, 40\ 000$  ans simulés par le modèle d’alvéole proposé par l’équipe Geofirma/NWMO à base du code TOUGH2-MP/EOS5 (image prise de Wendling et al., 2019).

Finalement, pour que ce benchmark soit réaliste, toutes les équipes doivent utiliser les mêmes équations, les mêmes paramètres, et les mêmes conditions initiales spécifiées dans ce benchmark. En revanche, même si ces conditions sont complètement remplies, il est toujours probable d’obtenir des résultats différents, puisque les modélisateurs (opérateurs) de différentes équipes utilisent des maillages différents, manipulent différemment les conditions

initiales et aux limites, et les paramètres numériques (pas de temps, tolérance, nombre maximal d'itérations de Newton-Raphson...).

### 8.2.2 Paramétrisation $P_{c,e} \neq 0$ du modèle d'alvéole 2D axisymétrique de FORGE-2013

Les simulations ont été reprises en considérant le même modèle décrit dans la sous-section 8.2.1 (mêmes conditions initiales et aux limites de la Figure 8-7 et même maillage de la Figure 8-8), mais plutôt avec le code iTOUGH2/EOS5 (version 2007) modifié pour prendre en compte une pression d'entrée capillaire non nulle dans le modèle diphasique bi-composants eau-hydrogène (méthode  $S_g$  ou SGM, cf. § 6.3.2). Cette version limite nos simulations au modèle de tortuosité MQ (Eq. (1-19)), qui diffère de celui spécifié dans le benchmark (Wendling et al., 2013a).

La paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$  consiste à prendre les valeurs  $P_{c,e} = 2.0, 1.33, 0.67$  MPa pour les matériaux du COx, la bentonite et l'EDZ, respectivement. Les valeurs de  $P_{c,e}$  du remblai et des interfaces sont supposées nulles.

Pour les points P1 et P8-P12 initialement saturés en eau, situés dans le COx (Figure 8-7), on constate que la pression de la phase liquide calculée avec la paramétrisation  $P_{c,e} = 0$  (Figure 8-13a) est plus élevée que celle simulée avec la paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$  (Figure 8-13d) durant la phase transitoire. Dans ce dernier cas, la quantité de gaz produite par l'alvéole, et qui arrive par diffusion sous forme dissoute dans l'eau en ces points, est amoindrie sous l'effet de  $P_{c,e}$  qui bloque l'arrivée du gaz à l'interface EDZ-COx. Ces points se trouvent plutôt impactés durant la période transitoire de l'écoulement par la quantité de gaz provenant de la galerie d'accès, imposée par la condition non-saturée à la frontière de cette dernière. Cet impact se manifeste en particulier au point P12 situé au voisinage de la galerie d'accès qui commence à se dé-saturer (pression d'eau liquide négative) sur une durée s'étalant entre ~ 10 et 240 ans. Avec la paramétrisation  $P_{c,e} = 0$ , on assiste plutôt à une diffusion importante de l'hydrogène dissous, qui arrive en quantité importantes en ces points.

Aux points P2, P3 et P4 initialement non saturés ( $S_{g,ini} = 0.95$ ), situés aux interfaces (Figure 8-7), le passage du gaz est plus rapide dans le cas de la paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$  (Figure 8-13b,e). En effet, aux points P3 et P4 situés au voisinage de la galerie d'accès, le degré de saturation en gaz ( $S_g$ ) atteint presque instantanément l'unité alors qu'il l'atteint tardivement (~100 ans) au point P2 situé plus loin (centre de l'interface conteneurs-EDZ, Figure 8-7). Pour ce même point (P2), la durée d'atteinte de  $S_g = 1$  est beaucoup plus tardive (~ 2000 ans) lorsque  $P_{c,e} = 0$ . Le passage préférentiel du gaz dans les interfaces et l'EDZ s'explique par leurs valeurs de  $P_{c,e}$  plus faibles que celle du COx qui représente une barrière à l'écoulement de la phase gazeuse vers le COx. Lorsque la paramétrisation  $P_{c,e} = 0$  est considérée, on assiste durant les phases transitoires initiales à une diffusion importante de  $H_2$  dans le COx. Le passage d'un état monophasique en gaz à un état monophasique en eau au point P4 est brutal lorsque  $P_{c,e}$  est non nulle.

On note également une désaturation rapide et importante de l'EDZ avec la paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$  (Figure 8-13b,e), en particulier au niveau des points P6 et P7 initialement saturés, les plus proches de la galerie d'accès (Figure 8-7). Au point P5 initialement saturé dans l'EDZ, l'arrivée du front de gaz est tardive pour une paramétrisation  $P_{c,e} = 0$  (~ 700 ans).

A cause de l'accumulation du gaz dans les interfaces et le remblai, favorisée par leurs valeurs  $P_{c,e}$  les plus faibles ainsi que dans l'EDZ avoisinant ces deux matériaux, cela se traduit au cours du temps par une pression de gaz de l'ordre de 7.1 MPa (Figure 8-13f) plus élevée que celle simulée avec la paramétrisation  $P_{c,e} = 0$  (~ 6.47 MPa, Figure 8-13c), en particulier aux points P2, P3, P5 et P6 les moins influencés par la condition à la limite imposée à la frontière de la galerie d'accès.

Les évolutions temporelles du profil 2D de degré de saturation en gaz montrées, Figure 8-14, confirment bien l'effet de  $P_{c,e}$  non nulle sur les évolutions dans le temps de  $P_l$ ,  $P_g$  et  $S_g$  décrites précédemment aux points P1-P12. En effet, si on se place au niveau des profils simulés à la fin de la période de génération du gaz, soit 10 000 ans (Figures 8-14c,f), on constate :

- Un étalement important d'une zone non saturée dans le COx développée dans la direction radiale de l'alvéole, dans le cas d'une paramétrisation  $P_{c,e} = 0$ . Cet étalement est restreint à l'EDZ dans le cas d'une paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$  ;

- Une re-saturation plus rapide de la galerie d'accès et de la zone non saturée développée au voisinage de l'alvéole, dans le cas d'une paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$  ;
- Enfin, un début de re-saturation du bouchon de la bentonite, confirmé également par la chute brutale de  $S_g$  à 1 au point P4 (Figure 8-13e) lorsque la paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$  est considérée.

L'ensemble des résultats obtenus dans cette étude confirme de nouveau ce qui a été dit précédemment pour l'expérience PGZ1 (Figure 6-15, cf. § 6.5.3).

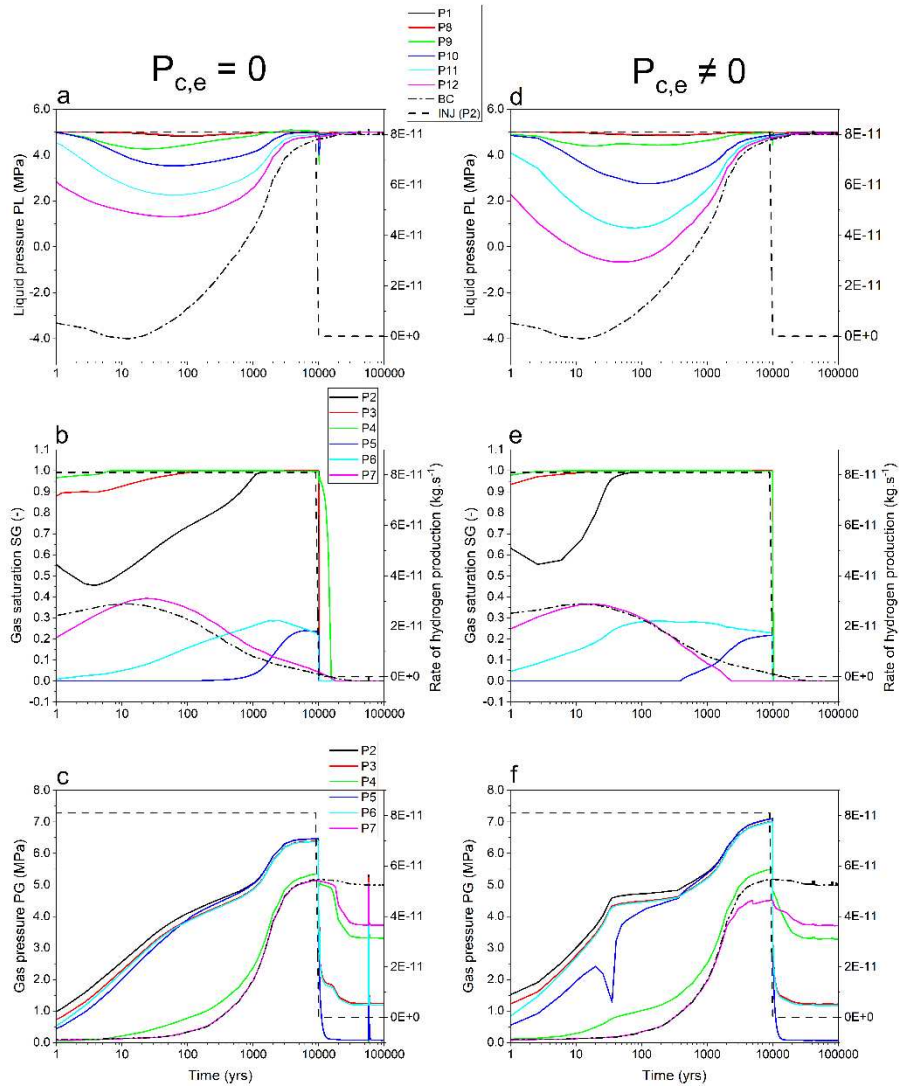


Figure 8-13 – Evolutions temporelles de la pression de la phase liquide simulées aux points P1 et P8-P12, et de la pression du gaz et du degré de saturation en gaz simulées aux points P2-P7 avec le code iTOUGH2/EOS5 modifié : (a,b,c) Paramétrisation  $P_{c,e} = 0$  (à gauche); (d,e,f) Paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$  (à droite).

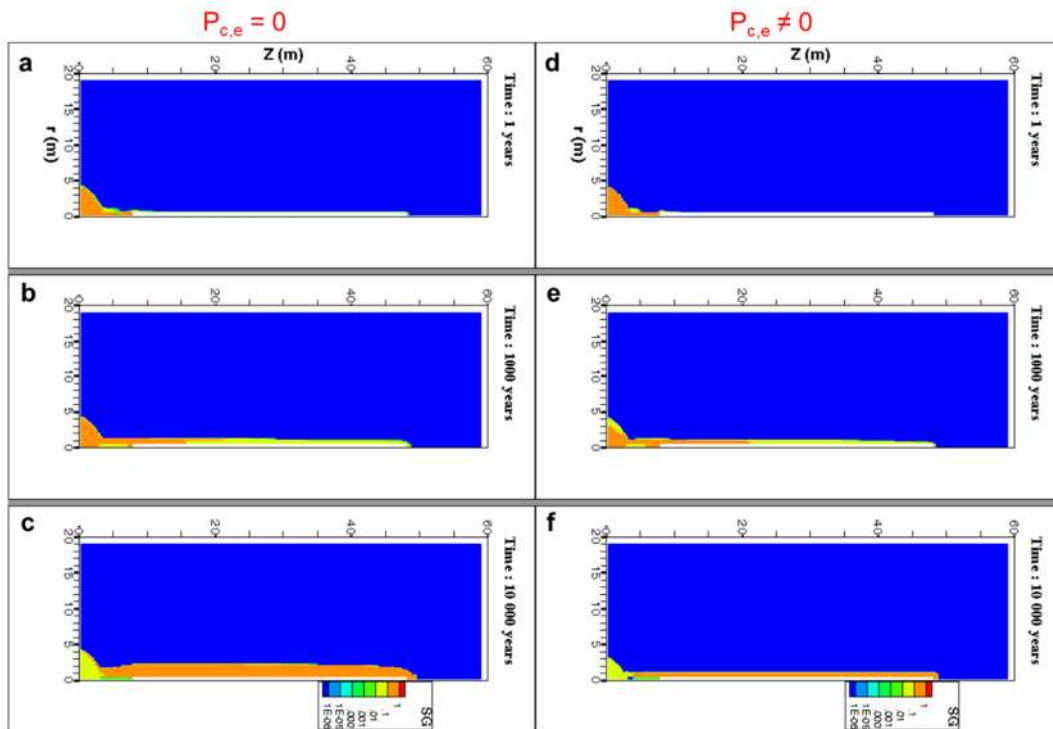


Figure 8-14 – Profils 2D de degré de saturation en gaz à  $t = 1, 1000, 10\ 000$  ans (de haut en bas) simulés par notre modèle avec le code iTOUGH2/EOS5 modifié (SGM) : (a,b,c) Paramétrisation  $P_{c,e} = 0$  (à gauche); (d,e,f) Paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$  (à droite).

### 8.2.3 Conclusion

Les résultats obtenus jusqu'ici pour la simulation des transferts eau-gaz à l'échelle d'un alvéole indiquent les éventuelles difficultés numériques liées à ces simulations dans des milieux présentant des discontinuités (interfaces, EDZ, barrières ouvragées) et dans lesquels les écoulements eau-gaz sont régis par des coefficients fortement non-linéaires (courbe de rétention, courbes de perméabilités eau et gaz) et parfois non-inversibles. Cette étude a souligné l'importance de prendre en compte la pression d'entrée pour la modélisation de transfert du gaz à grandes échelles.

Dans ce qui suit, un nombre de remarques importantes et de perspectives est proposé afin d'améliorer cette étude ultérieurement.

#### Ce qu'il faut retenir :

- ✓ Le benchmark à l'échelle de l'alvéole, à travers l'exemple du modèle 2D axisymétrique de FORGE, a révélé que les résultats simulés par les différentes équipes utilisant le même code EOS5 de TOUGH2 ou TOUGH2-MP ne diffèrent de point de vue dynamique des transferts de gaz que lorsqu'ils utilisent des maillages différents (structurés ou non structurés). En revanche, de point de vue quantitatif la différence entre les variables d'état et de flux, s'explique par la représentation différente des propriétés hydrauliques (pression capillaire, perméabilité relative) et certains de leurs paramètres, ou, des propriétés de transport (coefficient de diffusion), ou, de conditions initiales, ou, de paramètres numériques, cela afin de faire converger la solution numérique ;
- ✓ L'effet de la pression d'entrée sur une situation attendue dans le stockage à l'échelle de l'alvéole, modèle 2D axisymétrique de FORGE, est en cohérence avec la modélisation de l'expérience in-situ PGZ1-GAZ (cf. § 6.5). En effet, la pression de gaz simulée dans l'EDZ et les interfaces avec une paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$  est plus élevée que celle avec une paramétrisation  $P_{c,e} = 0$  et confirme le passage préférentiel du gaz dans ces milieux qui possèdent les valeurs de  $P_{c,e}$  les plus faibles.

### Ce qu'il faut résoudre, améliorer, et/ou compléter :

- ✓ Tester l'effet de l'hystérésis à l'échelle de l'alvéole, vu son importance (cf. chapitre (7)). Cet effet n'a pas pu être testé dans l'exercice du benchmark FORGE, car l'ordre de grandeur de la désaturation des matériaux simulés est trop faible (10 % pour les premières cellules de l'EDZ et moins de 1 % pour la roche hôte). Pour pouvoir réaliser une étude de sensibilité à l'hystérésis, il nous semble pertinent de simuler un modèle d'alvéole réduisant le forçage du système par des conditions limites adéquates, et probablement, d'utiliser un terme source d'hydrogène plus physique et comportant des aléas temporels ;
- ✓ Mettre en œuvre un modèle de production d'hydrogène à base physique qui permet de coupler la production locale d'hydrogène à la saturation locale et/ou à la pression locale de gaz. Ce modèle pourrait favoriser une forte hystérésis due à la quantité d'eau disponible. En effet, une montée en pression d'une phase gazeuse va induire un drainage des matériaux au voisinage de l'alvéole, et donc limiter la quantité d'eau disponible. Ceci pourrait diminuer la quantité d'hydrogène produite (par corrosion), ce qui provoquerait une ré-imbibition du domaine par l'eau de site ;
- ✓ Exploiter la base de données obtenue dans le cadre de la thèse d'Amri (2021) pour les différents matériaux constituant l'alvéole (COx, Figure 6-11 et Figure 7-17; bentonite; Figure 7-6) et la compléter en cas de manque de données ou en cas de mesures erronées non exploitables, puis développer un nouveau modèle d'hystérésis introduisant une pression d'entrée non nulle que l'on ajustera sur ces données pour déterminer une nouvelle paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$  avec hystérésis ;
- ✓ Réaliser un nouveau scénario par un modèle d'alvéole 3D incluant cette nouvelle paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$  avec hystérésis et un terme source à base physique pour des conditions aux limites adéquates.

## 8.3 Echelle d'un module à plusieurs alvéoles

### 8.3.1 Introduction

Dans cette étude on présente le développement d'un modèle 3D de transport de l'hydrogène ( $H_2$ ) à l'échelle d'un module à plusieurs alvéoles (quelques centaines de mètres) dans un site de stockage géologique profond de déchets radioactifs à haute activité (HA). L'objectif de ce modèle est de pouvoir simuler simultanément l'ensemble des sources de  $H_2$  (localisées dans les alvéoles de stockage) et les voies de transfert constituées par le réseau souterrain des galeries (galeries d'accès et galerie principale) après fermeture du stockage.

Pour pouvoir vérifier les résultats de calcul issus de notre propre développement de ce modèle, la géométrie d'un module à 100 alvéoles situé au sein d'un site de stockage (Figure 8-15), étudié précédemment dans le cadre du benchmark de FORGE (Wendling et al., 2013b ; Wendling et al., 2019), a été modélisée. Le modèle de l'alvéole HA est identique à celui présenté, Figure 8-7. Cette vérification numérique est essentielle pour la crédibilité du modèle à simuler les scénarios futurs de migration du gaz à l'échelle d'un site de stockage géologique profond constitué de plusieurs modules. Ces scénarios incluent différents sous-modèles physiques représentant le terme source de production de  $H_2$ , sa solubilité, son transfert thermo-hydraulique dans des milieux poreux à base d'argile peu perméables (roche hôte du site de stockage, matériaux des barrières ouvragées de scellement) et les interfaces entre l'EDZ de la roche et ces barrières ouvragées, ainsi que les paramètres associés à ces sous-modèles. Tout cela dans le but d'étudier l'impact de l'écoulement du gaz sur les scellements et sur le transfert convectif des radionucléides relâchés par les alvéoles vers l'environnement naturel durant la période de post-fermeture du stockage, soit durant une centaine de milliers d'années.

Par ailleurs, parmi les objectifs de réalisation d'une telle modélisation est de pouvoir quantifier les flux de  $H_2$  atteignant la galerie principale d'un site de stockage, afin de simplifier les modélisations à cette échelle (Saâdi et al., 2018 ; Saâdi et al., 2020) et, pouvoir ainsi, évaluer l'impact de l'**effet piston** de  $H_2$  sur l'écoulement de l'eau et sur le transport des radionucléides tout au long de la galerie principale.



Dans les sous-sections qui suivent, les résultats de calcul obtenus par notre modèle avec une paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$  seront comparés à ceux obtenus par les équipes qui ont réussi ce benchmark, puis un nouveau scénario avec une paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$  (identique à celle proposée pour l'alvéole; cf. § 8.2.2) sera simulé et discuté.

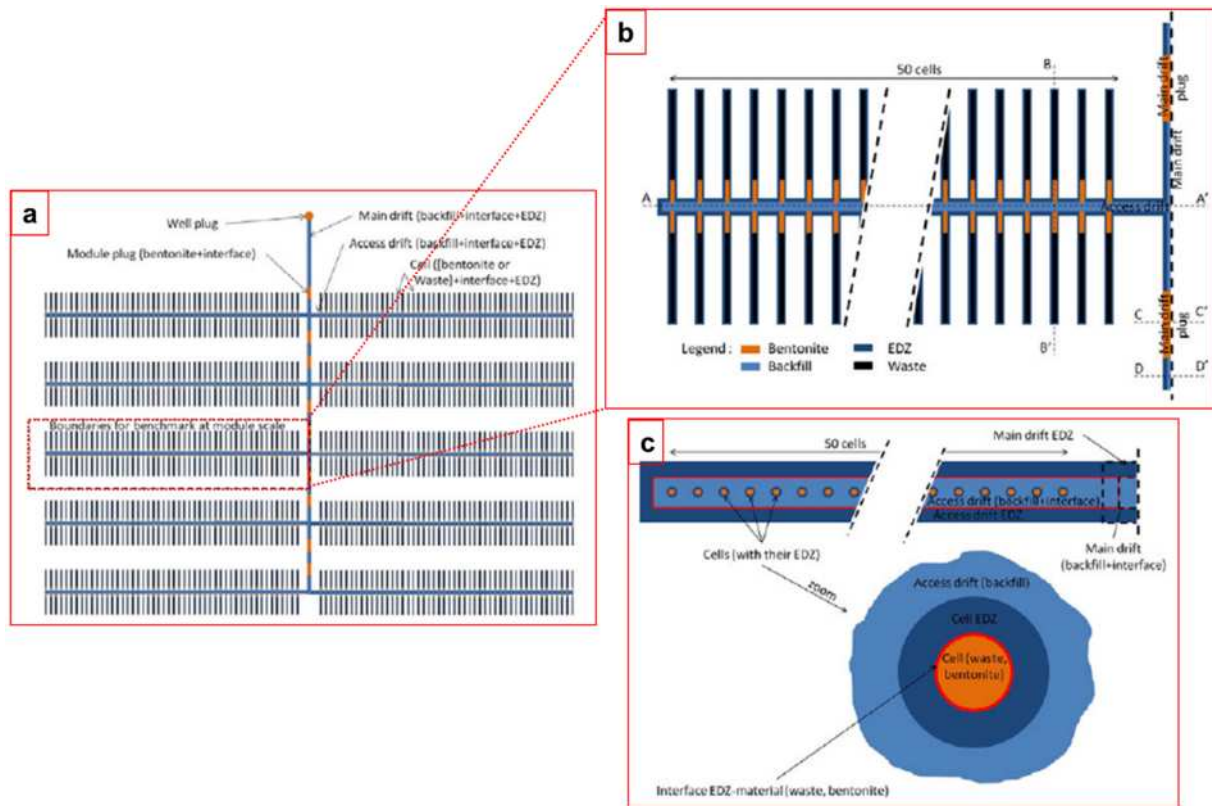


Figure 8-15 – (a) Modèle du site de stockage à plusieurs modules au sein du COx, proposé dans FORGE (Wendling et al., 2013b). (b) Module contenant 100 alvéoles. (c) Vue 2D de l'alvéole (conteneur et bouchon en bentonite).

### 8.3.2 Benchmark sur le modèle 3D du module de FORGE-2013

#### ➤ Géométrie du module

Dans le benchmark proposé (Wendling et al., 2013b ; Wendling et al., 2019), le module est représenté par la portion du stockage limitée à une zone de déchets HA comprenant deux rangées de 50 alvéoles (Figure 8-15b). Le domaine de calcul est tridimensionnel (3D), il possède les dimensions 714 x 126 x 150 m le long des trois axes OX, OY et OZ, respectivement. L'extension verticale est limitée à l'épaisseur de la couche du COx (150 m). Les extensions dans les deux autres directions sont représentatives de la distance inter-alvéoles. Un terme de production de gaz est donné pour chaque alvéole de stockage. Il est imposé sur la surface externe du cylindre qui représente schématiquement l'alvéole. Les matériaux à prendre en compte dans cette simulation sont le remblai de la galerie, la bentonite des scellements de la galerie et des alvéoles, l'argilite du COx, l'EDZ, et les interfaces EDZ-remblai, EDZ-bentonite et COx-Bentonite. L'alvéole est constitué par un matériau imperméable à l'eau et au gaz.

Les principales contraintes dans cette étude étaient de garder des temps de calcul acceptables pour les outils de simulation tout en respectant la physique du problème. La modélisation devrait se faire en utilisant le modèle physique complet, c'est à dire qu'il a fallu considérer une modélisation explicite de l'ensemble des objets présents dans le domaine de calcul (chaque alvéole avec son bouchon doit être maillé, Figure 8-15c).

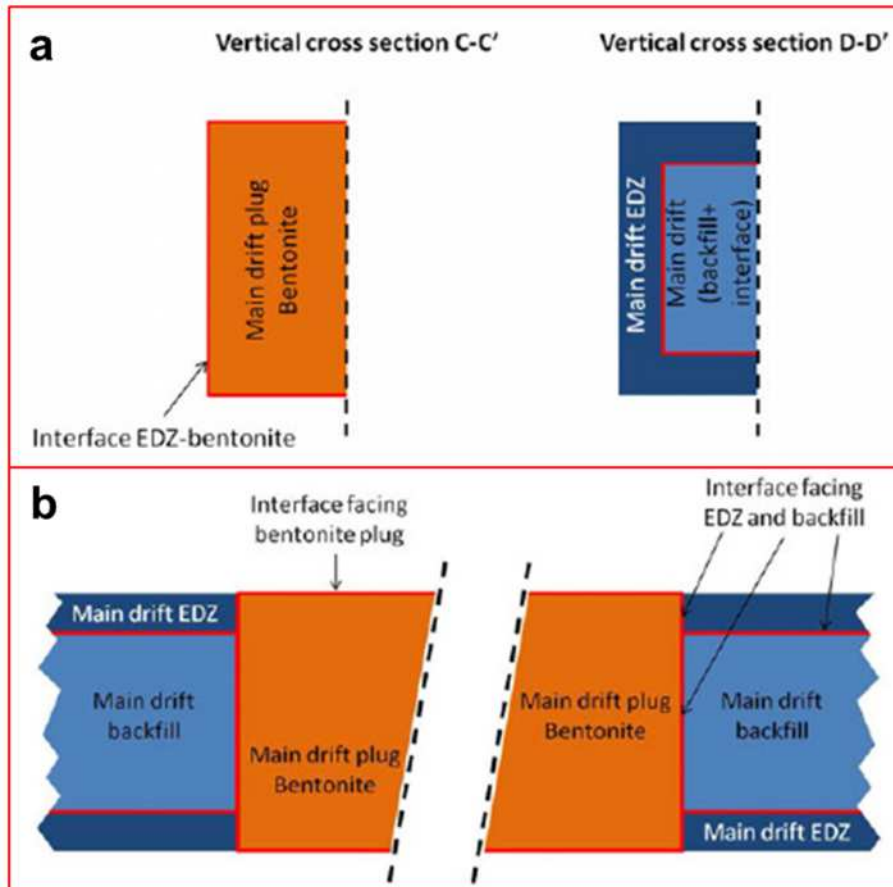


Figure 8-16 – (a) Section dans le plan (X, Z) du bouchon, de l'EDZ, du remblai, l'interface EDZ-Remblai et l'interface du bouchon avec le COx, l'EDZ et le remblai dans la galerie principale. (b) Section du bouchon dans le plan (Y, Z) le long de la galerie principale et ses interfaces avec les autres matériaux (EDZ, remblai, COx).

Dans ce qui suit, l'alvéole sera désignée par l'ensemble conteneurs et bouchon. Les alvéoles ont la même section circulaire (Figure 8-15c). Les sections de la galerie d'accès et de la galerie principale sont carrées,  $6 \times 6 \text{ m}^2$  (Figure 8-16a). Les alvéoles sont positionnées à mi-hauteur ( $Z = 75 \text{ m}$ ) dans la galerie d'accès et dans le domaine de calcul. Il y a 50 alvéoles de chaque côté de la galerie d'accès. La distance séparant les axes de deux alvéoles voisins est de 10 m, avec l'axe du premier alvéole, situé du côté gauche, est à une distance  $X = 200.5 \text{ m}$  de l'origine  $X=0$ . Chaque alvéole cylindrique possède une longueur de 45 m suivant l'axe OY (située entre  $Y = 3 \text{ m}$  et  $Y = 48 \text{ m}$ ) et un diamètre de 1 m. Le bouchon en bentonite de l'alvéole possède une longueur de 5 m (entre  $Y = 3 \text{ m}$  et  $Y = 8 \text{ m}$ , couleur orange, Figure 8-15b), il est entouré par une interface d'une épaisseur de 1 cm (couleur rouge, Figure 8-15c). Les conteneurs, situés après le bouchon, totalisent une longueur de 40 m suivant l'axe de l'alvéole (entre  $Y = 8 \text{ m}$  et  $Y = 48 \text{ m}$ ). Ils sont représentés par du vide qui ne fait pas partie du domaine de calcul. Ils sont entourés d'une interface de 1 cm d'épaisseur ayant des propriétés physiques différentes de celles entourant le bouchon. Le matériau EDZ entourant l'interface est d'une épaisseur de 0.5 m (couleur bleu foncé, Figure 8-15c), il est supposé uniforme tout au long de l'axe de l'alvéole (entre  $Y = 3 \text{ m}$  et  $Y = 48 \text{ m}$ ).

La galerie d'accès aux alvéoles, d'une longueur de 515.5 m, est suivant l'axe OX et elle est limitée entre  $X = 195.5 \text{ m}$  et  $X = 711 \text{ m}$ . Au-delà de  $X = 711 \text{ m}$ , on se situe dans la galerie principale orientée suivant l'axe OY, qui possède une longueur de 63 m à partir de l'origine  $Y = 0$ .

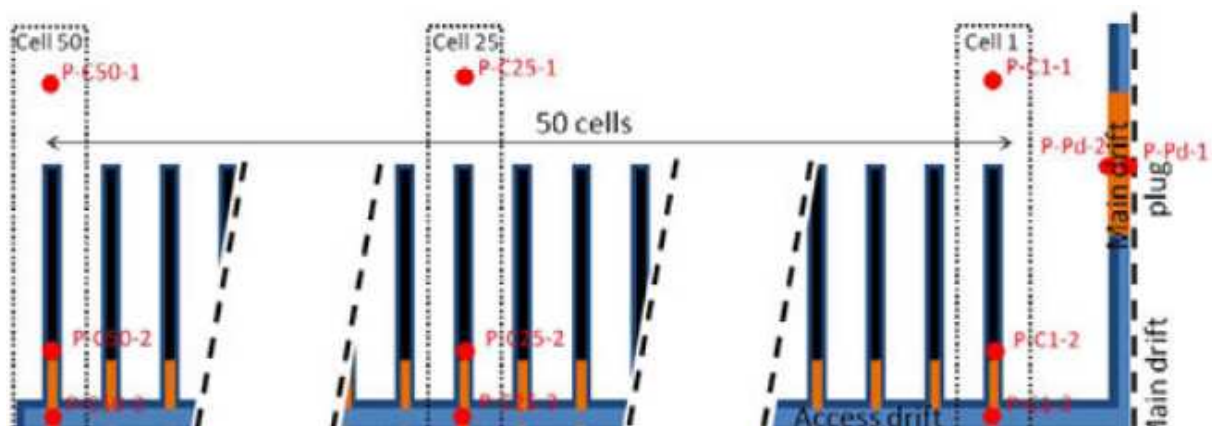
Le réseau de galeries représenté par les galeries d'accès et principale est complètement rempli par du remblai (couleur bleu maya, Figure 8-15b et Figure 8-15c), excepté dans la galerie principale où il y a présence d'un bouchon en bentonite de section  $8 \times 8 \text{ m}^2$  dans le plan (X, Z) (couleur orange, Figure 8-16a) et d'une longueur de 20 m (entre  $Y = 33 \text{ m}$  et  $Y = 53 \text{ m}$ ). Ce bouchon est entouré d'une interface de 1 cm d'épaisseur (couleur rouge, Figure 8-16b). Le réseau de galeries remblayées est également entouré par une interface de 1 cm d'épaisseur (couleur rouge, Figure 8-16) qui possède des propriétés physiques différentes de celles de l'interface entourant le

bouchon en bentonite. De même, cette interface est entourée par le matériau EDZ (couleur bleu électrique, Figure 8-15b,c; Figure 8-16) d'une épaisseur de 1 m.

La prise en compte des interfaces de 1 cm (EDZ-bentonite, EDZ-conteneurs, EDZ-remblai...) réduit les sections des galeries remplies par du remblai (2.99 m au lieu de 3 m suivant OX ou OY ; 5.98 m au lieu de 6 m suivant l'axe OZ), la section du bouchon dans la galerie principale (3.99 m au lieu de 4 suivant OX; 7.98 m au lieu de 8 m suivant l'axe OZ), et les sections des alvéoles (diamètre de 0.98 m au lieu de 1 m).

#### ➤ Implémentation du modèle

Selon les spécificités du benchmark, la tâche consiste d'une moitié aval et amont du module avec 50 alvéoles de chaque côté de la galerie d'accès. Puisque les conditions aux limites dépendantes du temps (pression et saturation du gaz) spécifiées aux extrémités amont et aval de la galerie principale sont très semblables, et que l'axe du centre de la galerie d'accès présente un axe de symétrie par rapport aux alvéoles situées de ces deux côtés, seule la moitié aval du domaine a été modélisée (Figure 8-17). Ainsi, la taille du domaine modélisé est réduite à 714 x 63 x 150 m.



**Figure 8-17 – Représentation schématique de la partie aval du module à 50 alvéoles modélisée et des points où les résultats de calcul sont analysés (Wendling et al., 2013b).**

La section circulaire de l'alvéole a été assimilée à un carré (à surface équivalente) pour simplifier la prise en compte des interfaces dans un maillage rectilinéaire. Cette approximation est similaire à celle adoptée par d'autres équipes dans le benchmark FORGE (Wendling et al., 2013b), telles que le LEI (*Lithuanian Energy Institute* ; Justinavicius, 2014) et le CNRS (Centre National de la Recherche Scientifique ; Ahusborde et al., 2015).

Les propriétés physiques et hydrauliques de VGM (i.e., Eqs. (1-29), (1-30) et (1-31)) des différents matériaux constituant le module, tels que l'argilite (roche hôte saine), l'argilite perturbée (EDZ), le bouchon en bentonite (alvéole ou galerie principale), le remblai, et les interfaces EDZ-conteneurs, EDZ-bouchon en bentonite, et EDZ-remblai, sont similaires à celles testées pour le cas de l'alvéole (cf. § 8.2.1). A priori seul le modèle de Millington et Quirk (1961) pour la tortuosité non-saturée (Eq. (1-19)) a été testé pour décrire la diffusion de l'hydrogène  $H_2$  en milieu poreux non-saturé.

Le prétraitement (*preprocessing*) de la géométrie du modèle et sa visualisation est réalisé sous PetraSim (Thunderhead Engineering, 2010), comme montré dans la Figure 8-18. La Figure 8-19 montre également un zoom sur l'ensemble des matériaux (remblai, bentonite, interfaces, EDZ) composant les alvéoles et les galeries du module au sein du COx. Toutes les interfaces sont supposées avoir une épaisseur de 1 cm et sont représentées par une seule couche de plusieurs éléments.

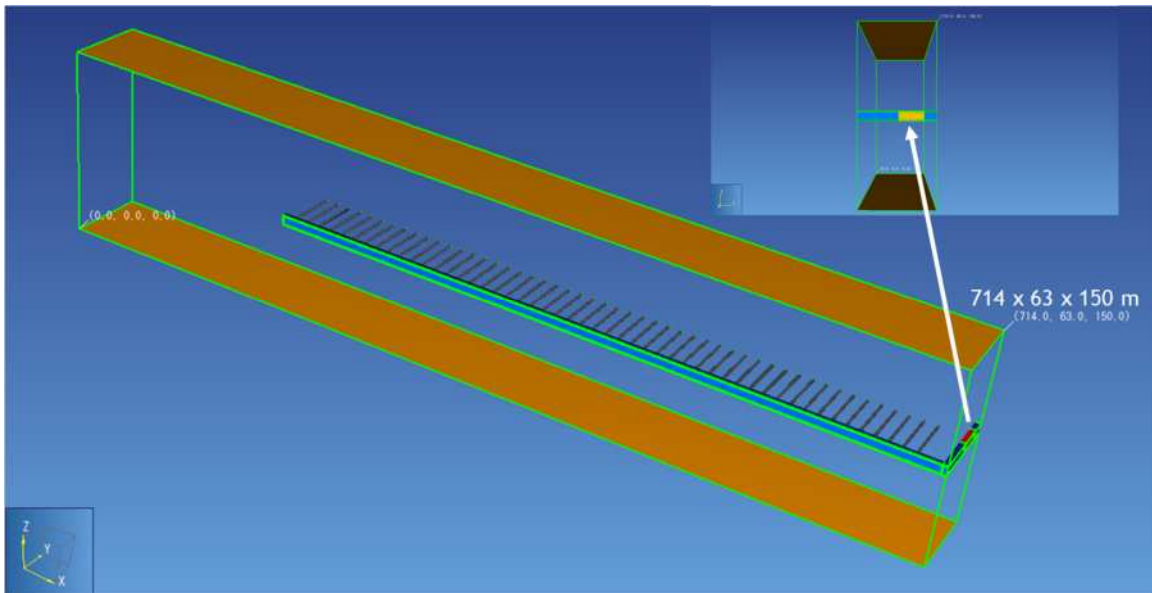


Figure 8-18 – Modèle de la moitié aval du module (50 alvéoles) au sein du COx. Pré-traitement et visualisation sous PetraSim.

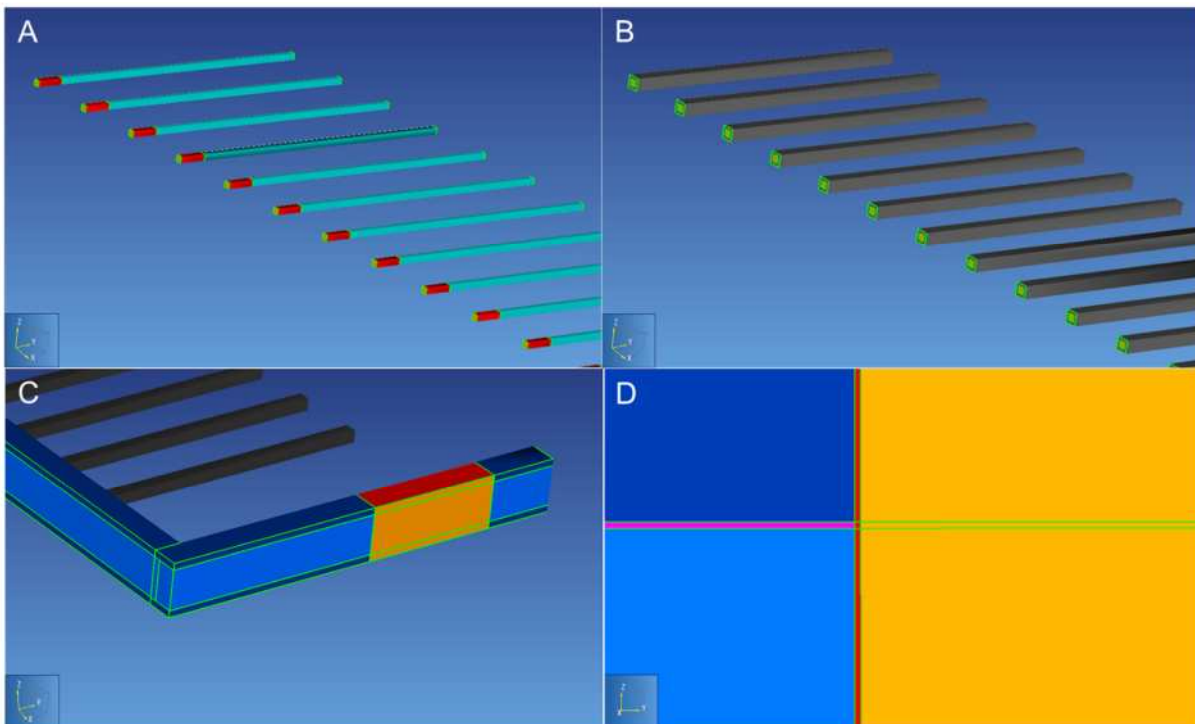


Figure 8-19 – A/ Alvéoles (bouchons en bentonite et conteneurs) et leurs interfaces avec l'EDZ. B/ l'EDZ entourant les alvéoles. C/ Bouchon en bentonite (couleur orange) et son interface de 1 cm (couleur rouge) l'entourant dans la galerie principale. D/ Zoom dans le plan (Y, Z) de l'interface EDZ-remblai (couleur rose) et de l'interface entourant le bouchon.

Les conditions initiales et aux limites du modèle ont été implémentées comme décrit dans les spécifications techniques du benchmark (Wendling et al., 2013b).

Une condition de type Neumann à flux nul est imposée sur toutes les frontières latérales, excepté à la sortie de la galerie principale, où l'on considère une condition de Dirichlet avec un degré de saturation en gaz et une pression de gaz imposés, dépendants du temps (voir ci-après courbes BC de la Figure 8-21 et de la Figure 8-22, ou, courbes

de la Figure 8-7 à droite). En bas ( $z = 0$ ) et en haut ( $z = 150$  m) du domaine, des conditions de Dirichlet à pressions hydrostatiques constantes de 4 et 6 MPa ont été respectivement imposées.

La saturation en gaz initiale est de 30 % dans les bouchons en bentonite (alvéole et galerie principale) et dans le remblai (galeries). Une saturation en gaz initiale de 95 % dans tout type d'interface est considérée. Les milieux géologiques perturbé (EDZ) et non perturbé (roche saine) sont complètement saturés en eau à l'état initial. Leurs pressions d'eau correspondent à celles calculées à l'équilibre hydrostatique entre  $z = 0$  et  $z = 150$  m avant l'excavation des galeries. Dans les parties du domaine qui sont initialement non saturées en eau, la pression du gaz est prise égale à 0.1 MPa. Ainsi, la pression de l'eau en équilibre capillaire avec la pression du gaz est déduite à partir de la pression de gaz et de la saturation en eau en appliquant le modèle de courbe de rétention de van Genuchten-Mualem (i.e., Eq. (1-29)).

Un terme source en  $H_2$  constant de **100 mol/an/alvéole** a été injecté sur une durée de **10 000 ans**, directement à travers les interfaces conteneurs-EDZ.

Les interfaces EDZ-remblai, EDZ-bentonite et COx-Bentonite ont été homogénéisées avec une fraction du matériau adjacent pour simplifier la taille du maillage et la discrétisation au niveau des interfaces, comme a été proposé par Ahusbord et al. (2015) et Sentís et Gable (2017). En effet, la combinaison interface-matériau adjacent a été réalisée comme suit :

- Au niveau des alvéoles, les interfaces EDZ-conteneur et EDZ-bouchon ont été combinées avec une épaisseur de 24 cm de l'EDZ,
- Au niveau des galeries, l'interface EDZ-remblai a été combinée avec une épaisseur de 0.49 m du remblai, et l'interface roche saine-bouchon a été combinée avec 0.49 m de bentonite.

Cette approche a conduit au changement des propriétés hydrauliques et de transport, et des conditions initiales de l'épaisseur homogénéisée. De même, elle a permis d'éviter les problèmes de convergence numérique qu'induit le volume infinitésimal (centimétrique) des interfaces devant les mailles grossières. Notons qu'une analyse récente par Wendling et al. (2019) a montré que les résultats de calcul obtenus avec la prise en compte explicite des interfaces dans le maillage ne diffèrent pas énormément de ceux obtenus en considérant leur homogénéisation avec les matériaux adjacents.

Le maillage est rectilinéaire (éléments parallélépipédiques), réalisé par le code MESHMAKER. Le maillage prenant en compte explicitement les interfaces de 1 cm consiste en 90 480 éléments (Figure 8-20A). La prise en compte de l'homogénéisation des interfaces augmente le nombre d'éléments du maillage à 95022. Trois éléments extra (*extra-cells*) ont été ajoutés pour manipuler les trois conditions de Dirichlet imposées aux frontières du domaine.

La durée de simulation est de **100 000 ans**. Les simulations ont été conduites avec la version massivement parallélisée de TOUGH2, soit TOUGH2-MP (Zhang et al., 2008), qui utilise la méthode de décomposition de domaine, conçue pour réaliser la simulation parallèle sur des plateformes multi-CPU (multi-cœurs). Ainsi, le module EOS5 a été choisi pour décrire la thermodynamique du gaz hydrogène ( $H_2$ ) avec présence de l'eau.

Pour être compatible avec les spécifications du benchmark, la version originale de ce code a été modifiée par implémentation de :

- La fonction perméabilité relative au gaz de van Genuchten-Mualem (Eq. (1-31)) ; et
- Une condition à la limite avec un degré de saturation en gaz variable dans le temps à la sortie de la galerie principale (Figure 8-7, à droite). La version originale du code ne permettait qu'une condition de pression dépendante du temps.



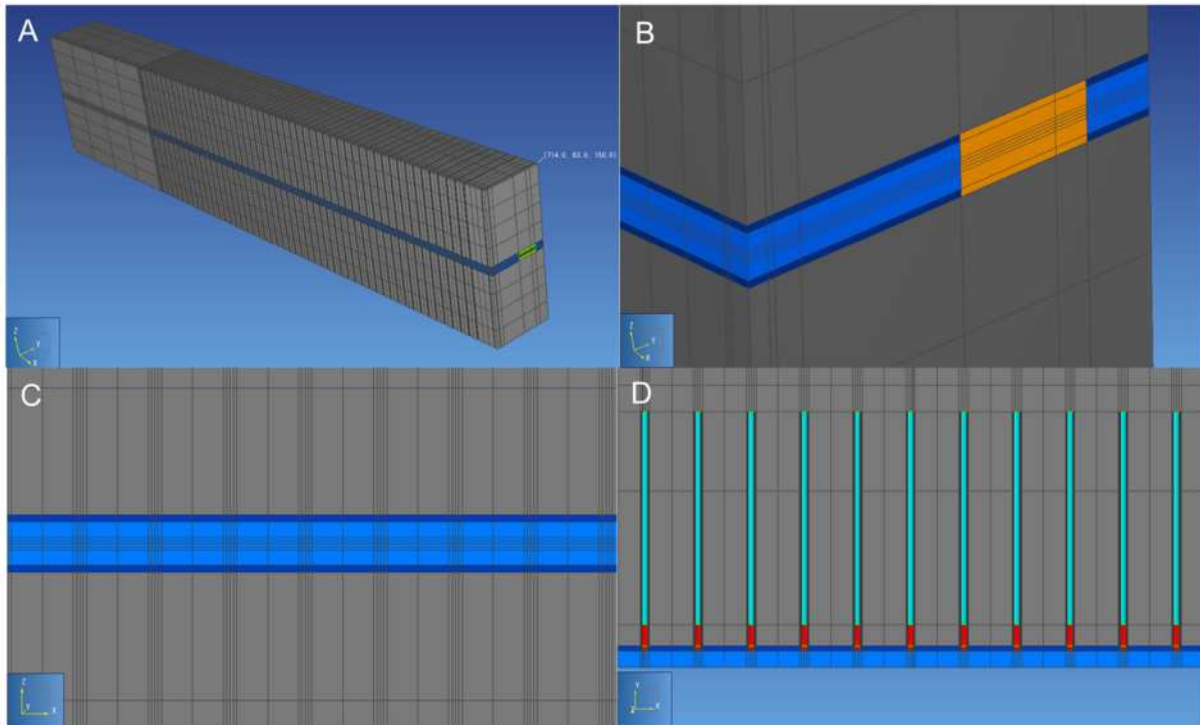


Figure 8-20 – A/ Maillage du domaine. B/Zoom sur le maillage des galeries. C/Maillage dans le plan (X, Z) de la galerie d'accès. D/Maillage dans le plan (X, Y) au voisinage des alvéoles.

A priori seuls les résultats de calcul avec homogénéisation des interfaces seront présentés. Les simulations numériques avec prise en compte explicite des interfaces dans le maillage divergeaient prématurément à un temps approximatif de 155 ans.

➤ Analyse des résultats des simulations et benchmark

La Figure 8-21 montre l'évolution temporelle de la pression du gaz aux trois points P-C1-3, P-C25-3 et P-C50-3 situés le long des axes des alvéoles n° 1, n° 25 et n° 50 (classement à partir de l'alvéole n°1 la plus proche de la galerie principale) dans la galerie d'accès remblayée (Figure 8-17), qui étaient initialement non saturés ( $S_{g,ini} = 0.3$ ). La pression du gaz augmente significativement dans la galerie d'accès et atteint son maximum ( $\sim 7.57$  MPa) au temps d'arrêt de production du gaz par les alvéoles (10 000 ans). La saturation en gaz évolue de la même manière en ces points (Figure 8-22), montrant ainsi une resaturation partielle de la galerie sur une période de l'ordre de 1000 ans ( $S_g \approx 0,1$ ), puis sa désaturation suite à la montée en pression du gaz pour atteindre  $S_g \approx 0,15$  à 10 000 ans, et enfin sa resaturation totale au bout de  $\sim 30$  000 ans ( $S_g = 0$ ) qui correspond au temps de passage à l'équilibre hydrostatique dans tout le réseau de galeries (voir courbes bleues BC dans la Figure 8-21 et la Figure 8-22 correspondant à la condition à la limite imposée à la frontière de la sortie de la galerie principale).

Les points P-C1-1, P-C25-1 et P-C50-1 situés le long des axes des alvéoles dans le COx (à 5 m derrière l'alvéole, Figure 8-17), qui étaient initialement à un état complètement saturé ( $S_g = 0$ ), commencent à se désaturer légèrement au bout d'un temps plus ou moins de l'ordre de 1000 ans suite à l'arrivée du front de gaz dans le COx (Figure 8-22). Cette évolution s'accompagne également par une évolution importante de la pression du gaz qui atteint approximativement un ordre de grandeur de **7.0 à 7.2 MPa** (selon positions des points par rapport à la sortie de la galerie d'accès).

La pression du gaz évolue de la même manière aux points P-Pd-1 et P-Pd-2 (chevauchement des courbes grise et rouge dans la Figure 8-21) initialement non saturés ( $S_{g,ini} = 0.3$ ), situés des deux côtés de l'axe central du bouchon en bentonite de la galerie principale (Figure 8-17). Cette évolution dans le temps (due à l'arrivée du gaz des deux côtés du bouchon) ne diffère pas énormément de celle imposée à la frontière de la sortie de la galerie principale



(courbe bleue : BC). Le gaz provenant des alvéoles fait augmenter légèrement le pic de pression du gaz à 10 000 ans ( $\sim 6.3$  MPa). En revanche le degré de saturation en gaz évolue différemment dans ces deux points (Figure 8-22). Le point P-Pd-2 se désature prématurément avant le point P-Pd-1, vu sa proximité du CO<sub>x</sub> saturé en eau. *In fine* ces évolutions montrent que le bouchon subit une resaturation importante et rapide au bout d'un temps de  $\sim 1000$  ans ( $S_g \approx 0.03$ ), puis une resaturation faible et très lente suite à l'arrivée du gaz, atteignant ainsi une valeur minimale  $S_g \approx 1 \times 10^{-5}$  à  $t \sim 28000$  ans. La resaturation totale ( $S_g = 0$ ) du bouchon est atteinte avant le temps de passage à l'équilibre hydrostatique (30 000 ans), ce qui explique le rôle primordial que joue ce matériau dans la réduction des flux de gaz atteignant la sortie de la galerie principale.

Les évolutions dans le temps simulées aux différents points du domaine montrent que la physique de l'écoulement du gaz dans le réseau de galeries est bien respectée.

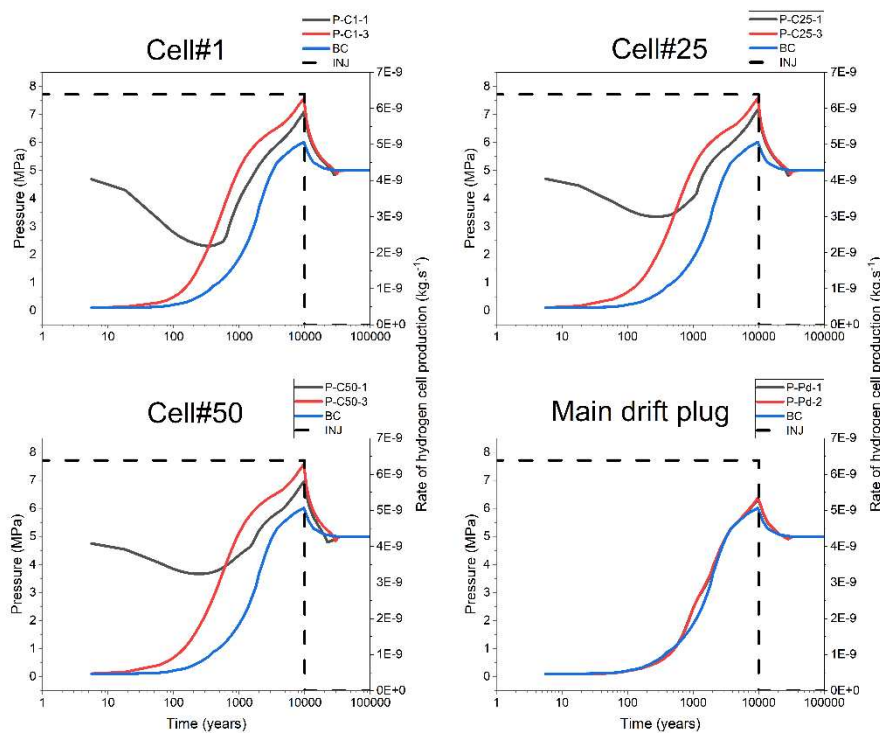


Figure 8-21 – Evolutions temporelles de la pression de gaz simulées par TOUGH2-MP/EOS5 aux points P-C#-1,3 (# : n° de l'alvéole) et P-Pd-1,2 situés dans la Figure 8-17.

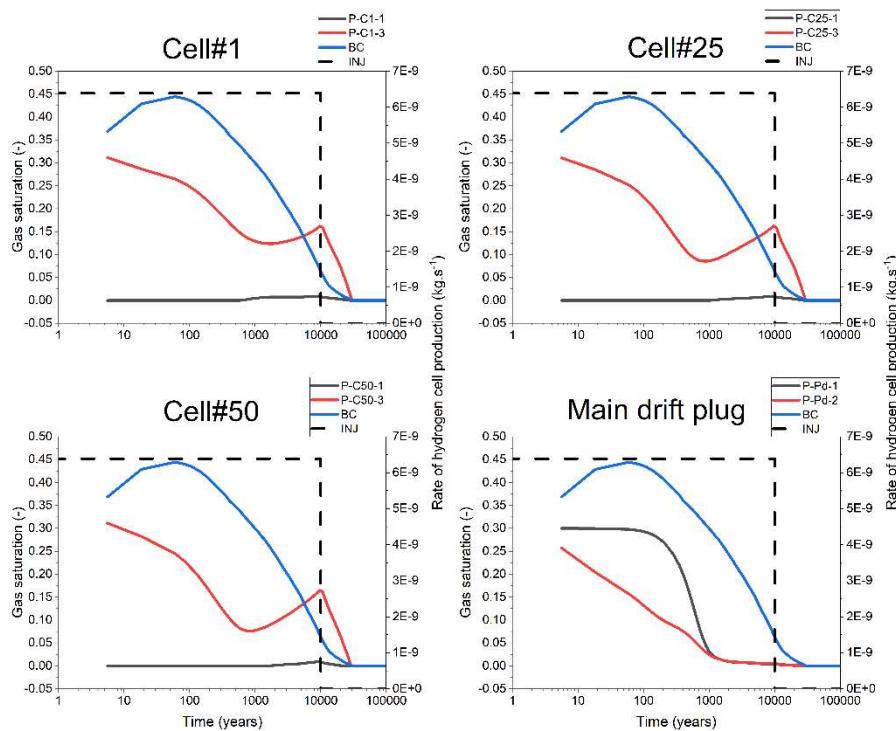


Figure 8-22 – Evolutions temporelles du degré de saturation en gaz simulées par TOUGH2-MP/EOS5 aux points P-C#-1,3 (# : n° de l'alvéole) et P-Pd-1,2 situés dans la Figure 8-17.

Le profil 2D de degré de saturation en gaz (Figure 8-23a) à mi-hauteur du domaine (section  $z = 75$  m), simulé au temps  $t = 10\,000$  ans, montre une désaturation importante des galeries remblayées et aux alentours des alvéoles dans le COx. Un zoom sur quelques alvéoles situées au voisinage de la galerie principale (Figure 8-24b) montre qu'une zone non saturée à degré de saturation en gaz très élevé (zone rouge avec  $S_g \approx 0.2$ ) se développe dans les EDZs des galeries remblayées et des alvéoles. On note cependant la resaturation presque complète du bouchon de la galerie principale (voir également profil 3D de  $S_g$  de la Figure 8-23d, et courbes  $S_g(t)$  aux points P-Pd-1 et P-Pd-2 de la Figure 8-22). Le profil de  $S_g$  à la section  $y = 3$  m (sorties des bouchons des alvéoles) confirme bien ce résultat (Figure 8-24c). Au sein de la galerie d'accès à la section  $y = 2.5$  m (Figure 8-24a),  $S_g$  est très élevée.

Le profil de  $S_g$  le long de l'axe de l'alvéole situé à la section  $x = 690.5$  m, montré dans la Figure 8-24d, explique bien la faible désaturation de la zone du COx située derrière l'alvéole comme montré également dans la Figure 8-22 (point P-C1-1).

Le profil 2D de pression (Figure 8-23b) à mi-hauteur du domaine (section  $z = 75$  m), simulé au temps  $t = 10\,000$  ans, montre le développement d'une zone rouge qui entoure l'ensemble des alvéoles et qui est à pression très élevée de l'ordre de **7 MPa**. Au-delà de cette zone, on simule une avancée du front d'eau dans les deux directions OX et OY. Cette avancée est due à la solubilité importante de l'hydrogène dans le COx, confirmée également par le profil 2D de la fraction massique de  $H_2$  dissous dans l'eau montré dans la Figure 8-23c.

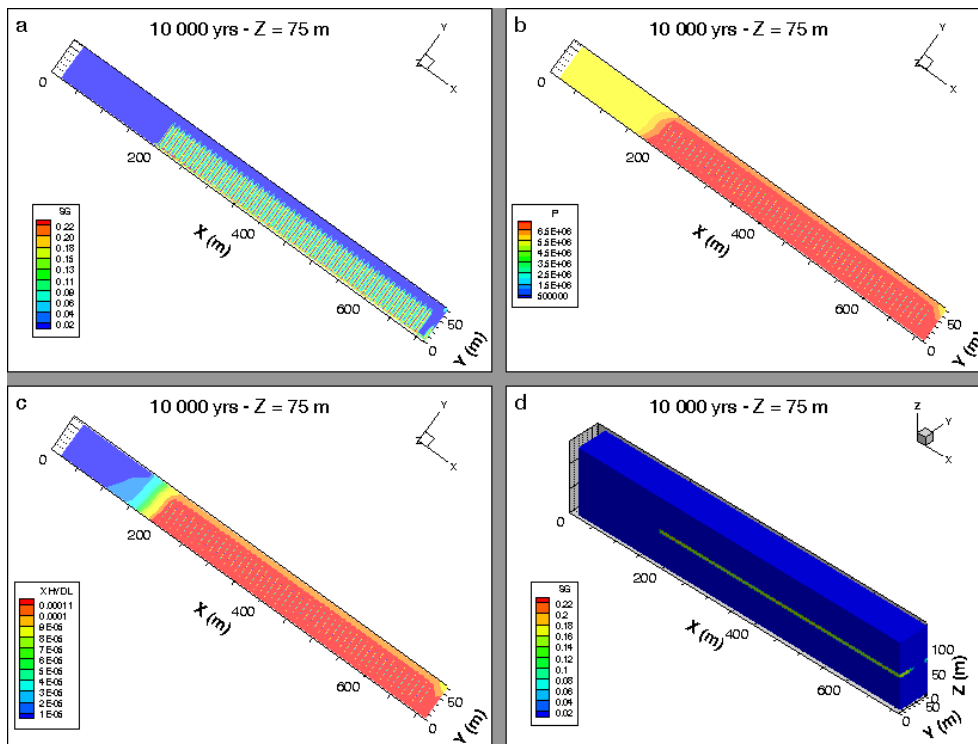


Figure 8-23 – Profils des variables physiques simulés à  $t = 10\,000$  ans dans le module au sein du COx (paramétrisation  $P_{c,e} = 0$ ). Vue 2D dans le plan (X, Y) à mi-hauteur ( $Z = 75$  m) de : a/ Degré de saturation en gaz, b/ Pression, c/ Fraction massique de  $H_2$  dissous dans l'eau ; d/ Vue 3D de degré de saturation en gaz dans le domaine global.

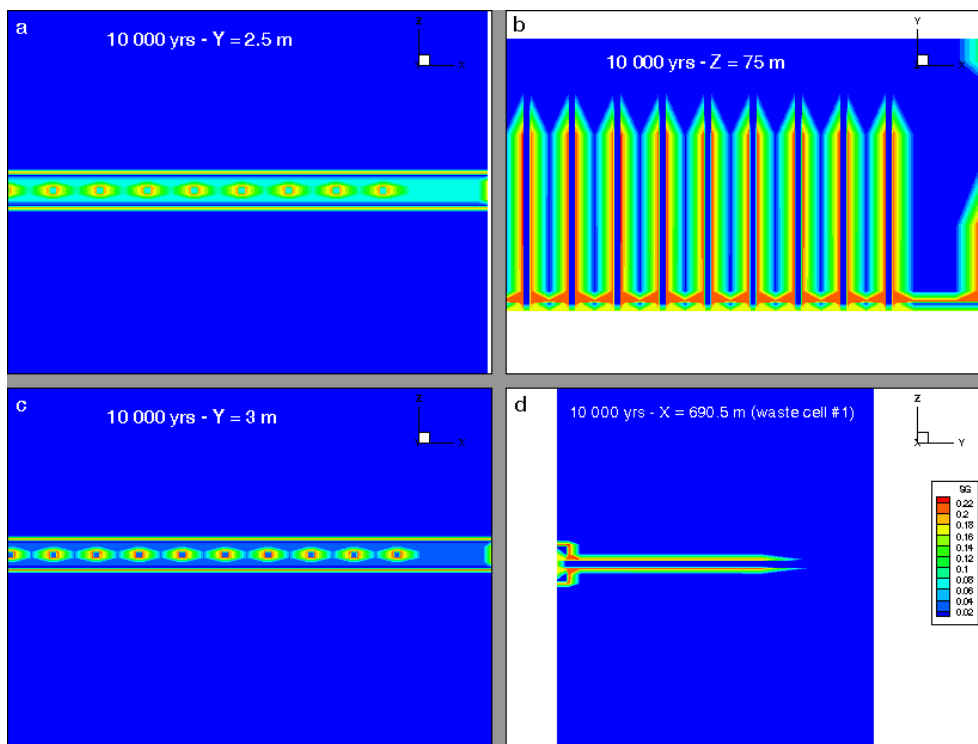


Figure 8-24 – Sections 2D de degré de saturation en gaz à  $t = 10\,000$  ans (paramétrisation  $P_{c,e} = 0$ ) : a/ dans la galerie d'accès, b/ aux alentours des alvéoles situées au voisinage de la galerie principale, c/ à l'interface alvéoles-galerie d'accès, et d/ le long de l'axe de l'alvéole n°1 la plus proche de la galerie principale.

Le pic de pression de gaz calculé par notre modèle au point P-C25-3 à  $t \sim 10\,000$  ans (7.57 MPa, Figure 8-21) ne diffère pas de celui calculé par l'équipe Suisse ENSI-IFNS (Figure 8-25A). Cette dernière utilisa également TOUGH2-MP/EOS5 et une homogénéisation des interfaces avec les matériaux adjacents, mais un calcul avec un maillage généré par le code LaGriT (Sentís et Gable, 2017). De même, notre modèle calcule un pic de pression de gaz de l'ordre de **6.3 MPa** au point P-Pd-2 (Figure 8-21) un peu plus élevé que celui calculé par l'ENSI-IFNS (**5.8 MPa**, Figure 8-25B) avec un maillage basé sur LaGriT. On calcule, en revanche, une différence au niveau de l'évolution temporelle de la pression de gaz à partir de  $\sim 3000$  ans avant l'atteinte du pic. En effet, la croissance de la pression de gaz à partir de ce temps est plus lente avec notre modèle. Cette différence s'explique par les différences entre les deux maillages, entre les modèles de coefficient de diffusion de l'hydrogène, et entre les méthodes d'homogénéisation de l'interface avec le matériau adjacent, utilisés par chacun des deux modèles.

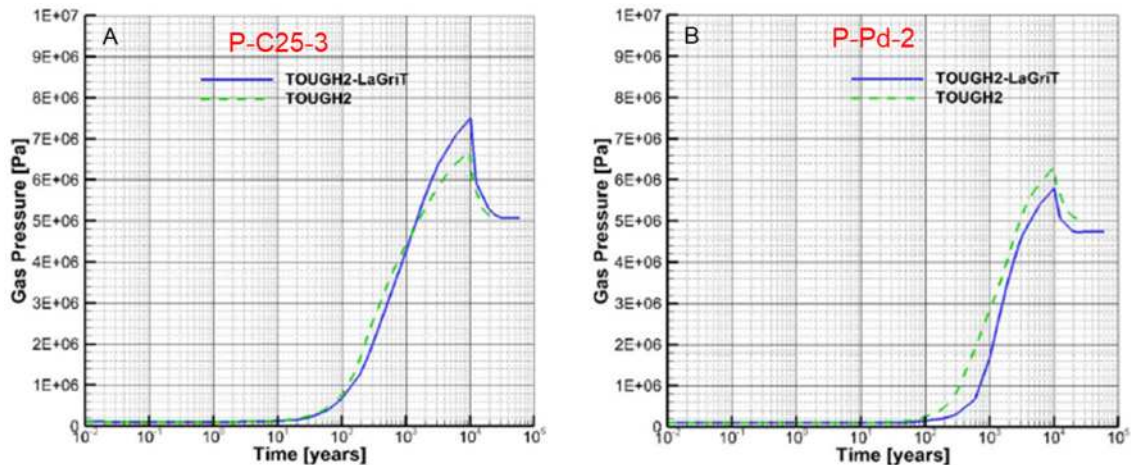


Figure 8-25 – Evolutions de la pression de gaz aux points A/ P-C25-3 et B/ P-Pd-2, calculées par TOUGH2-MP/EOS5 et un maillage LaGriT (d'après Sentís et Gable, 2017).

Notons également que le LEI (Wendling et al., 2013b) calcula des pics de pressions de gaz de l'ordre de **7.8 MPa** au point P-C25-3 et **6.8 MPa** aux points P-PU-1 et P-PU-2 (Figure 8-15b ; points situés du côté aval, équivalents aux points P-Pd-1 et P-Pd-2) qui sont presque similaires à ceux calculés par notre modèle. Nous rappelons ici que les calculs effectués par le LEI considéraient un maillage parallélépipédique construit par MESHMAKER en prenant en compte explicitement les interfaces.

### 8.3.3 Paramétrisation $P_{c,e} \neq 0$ du modèle 3D de FORGE-2013

L'implémentation du modèle VGMPE (cf. § 6.1) dans la plateforme TOUGH2-MP n'est pas encore finalisée. Elle nécessite des vérifications numériques, ce qui n'a pas permis *a priori* de tester une paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$  à l'échelle du module avec cette plateforme. Pour cela, les simulations ont été réalisées avec la plateforme iTOUGH2, en particulier le code EOS5 modifié (méthode SGM, cf. § 6.3.2) qui permet de prendre en compte cette paramétrisation.

La paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$  des différents matériaux constituant le module de stockage (COx, EDZ, remblai, bentonite, interfaces) est similaire à celle proposée pour des calculs à l'échelle de l'alvéole (cf. § 8.2.2), i.e.,  $P_{c,e} = 2.0, 1.33, 0.67$  MPa pour les matériaux du COx, la bentonite et l'EDZ, respectivement; et  $P_{c,e} = 0$  pour le remblai et les interfaces.

La simulation de ce nouveau scénario est réalisée par le même modèle décrit dans la section 8.3.2 (même maillage de la Figure 8-20 et les mêmes conditions initiales et aux limites).

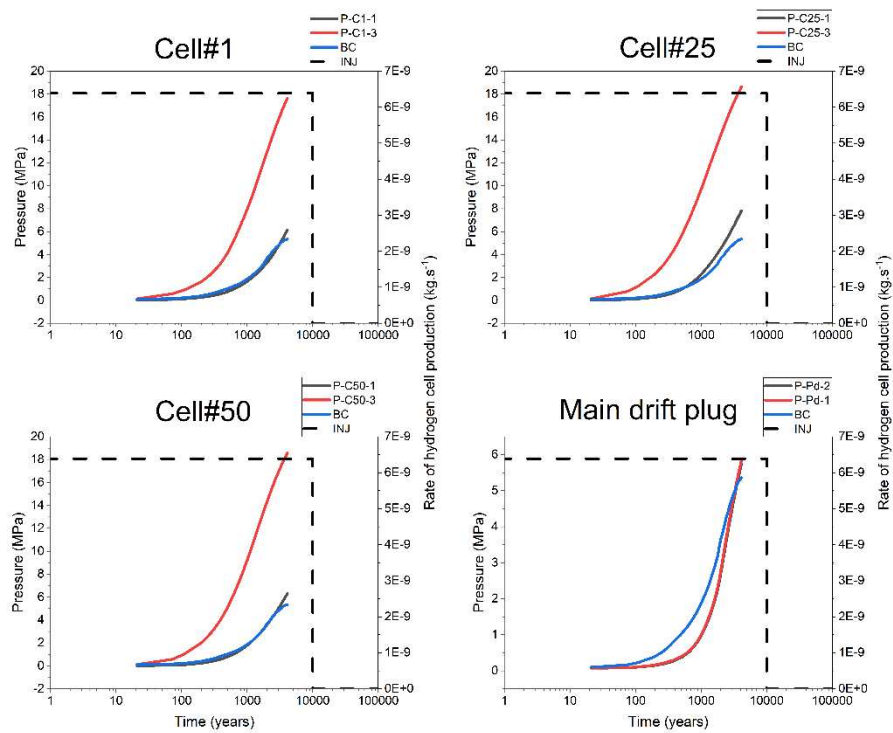


Figure 8-26 – Evolutions temporelles la pression de gaz simulées par iTOUGH2/EOS5 et une paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$ , aux points P-C#-1,3 (# : n° de l'alvéole) et P-Pd-1,2 situés dans la Figure 8-17.

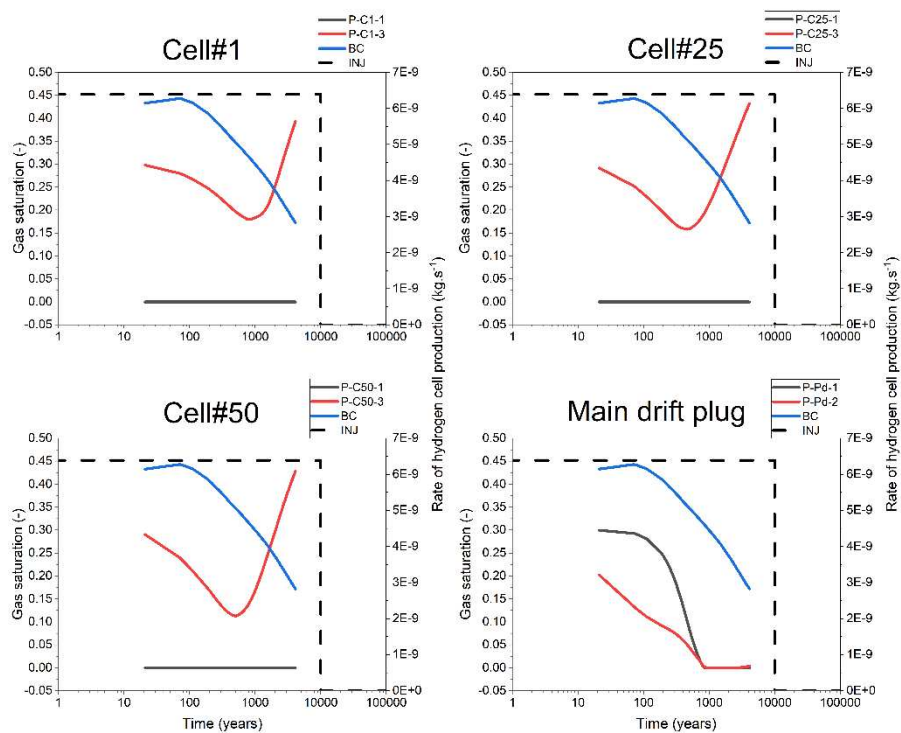


Figure 8-27 – Evolutions temporelles du degré de saturation en gaz simulées par iTOUGH2/EOS5 et une paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$ , aux points P-C#-1,3 (# : n° de l'alvéole) et P-Pd-1,2 situés dans la Figure 8-17.

Les simulations avec une paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$  n'ont pas abouti jusqu'à 100 000 ans à cause d'une divergence numérique prématurée au temps  $t \sim 4122$  ans. La Figure 8-26 et la Figure 8-27 montrent les évolutions temporelles de la pression du gaz et de la saturation en gaz aux mêmes points de la Figure 8-17 jusqu'au temps d'arrêt  $t \sim 4122$  ans. Le résultat le plus surprenant est que cette divergence de la solution numérique provient au moment où la pression du gaz dans la galerie (points **P-C1-3**, **P-C25-3**, **P-C50-3**) devient très élevée ( $\sim 18$  MPa) et le degré de saturation en gaz du remblai atteint une valeur approximative de **0.42**. Ces résultats sont confirmés par les profils de degré de saturation en gaz (Figure 8-28a,d) et de pression du gaz (Figure 8-28b) simulés à  $t = 10\ 000$  ans. Ces profils montrent également qu'une zone non-saturée à degré de saturation en gaz élevé vient d'envelopper toutes les alvéoles (Figure 8-28a) et qui induit une avancée importante d'un front hydrique non-saturé dans la zone de COx située derrière le module ( $x < 200$  m) sur une distance de  $\sim 50$  m (**effet piston**). Cette désaturation du COx est essentiellement due à la forte pression de H<sub>2</sub> qui se propage depuis les galeries remblayées vers le COx (zone jaune, Figure 8-28b), qui s'accompagne également d'une avancée importante de front de H<sub>2</sub> dissous dans l'eau (Figure 8-28c). Un zoom sur les profils de pression au voisinage des alvéoles (Figure 8-29b,d) et dans la galerie d'accès (Figure 8-29a,c) confirme bien ces résultats.

Ce résultat peut s'expliquer par :

- L'utilisation du maillage initialement développé pour une paramétrisation  $P_{c,e} = 0$  (Figure 8-20), qui n'est plus adapté à simuler des vitesses d'écoulement de gaz très élevées dans la galerie d'accès, qui peuvent parfois atteindre des ordres de grandeur  $> 10^{-5}$  m/s dans certaines régions du domaine. Pour cela, de nouveaux maillages doivent être développés et testés pour éviter les forts gradients de pression de gaz dans ces régions lorsque  $P_{c,e} \neq 0$ . Le choix d'un tel maillage doit respecter un nombre de Péclet maximal pour tous les éléments du maillage avec ces nouvelles vitesses d'écoulement de gaz élevées afin de réduire la dispersion numérique ;
- De même, ces vitesses de gaz élevées violent le domaine de validité de la loi de Darcy qui a été initialement développée pour des écoulements laminaires à vitesses de gaz faibles ;
- La pression de H<sub>2</sub> significative simulée dans les galeries ( $\sim 18$  MPa) provoque une désaturation importante du COx et fait augmenter également la pression du gaz au sein de ce dernier (Figure 8-29). Cette pression dépasse largement la contrainte verticale naturelle de 12.3 MPa du COx préconisée par l'Andra (Andra, 2005). Cette forte montée en pression du gaz peut déclencher non seulement la microfissuration suite à la dilatation des pores, mais aussi la fracturation hydraulique du COx (non pris en compte dans notre modèle actuel). Ces microfissures et/ou fractures peuvent représenter une échappatoire au gaz vers le COx en grandes quantités, mais au dépend de changement de la structure du COx.

L'accumulation importante du gaz dans la galerie d'accès, due au passage préférentiel du gaz dans les interfaces homogénéisées, le remblai de la galerie, et l'EDZ, possédant les valeurs de  $P_{c,e}$  les plus faibles, est probablement due à la présence du bouchon en bentonite dans la galerie principale, au choix des modèles actuels du coefficient de diffusion de l'hydrogène (MQ) et de perméabilité intrinsèque (identique en conditions monophasiques liquide et gazeuse), qui ne favorisent pas la diffusion de H<sub>2</sub> en grandes quantités dans le COx et son échappement vers la sortie de la galerie.

De même, le modèle de terme source de H<sub>2</sub> proposé dans le cadre du projet FORGE est très simplifié et ne prends pas en compte certains phénomènes thermo-physico-chimiques, qui peuvent freiner la production importante de l'hydrogène. Ainsi, l'orientation vers le développement d'un nouveau modèle du terme source de H<sub>2</sub> prenant en compte ces phénomènes est nécessaire pour améliorer le calcul de la pression et de flux de gaz dans le site de stockage.



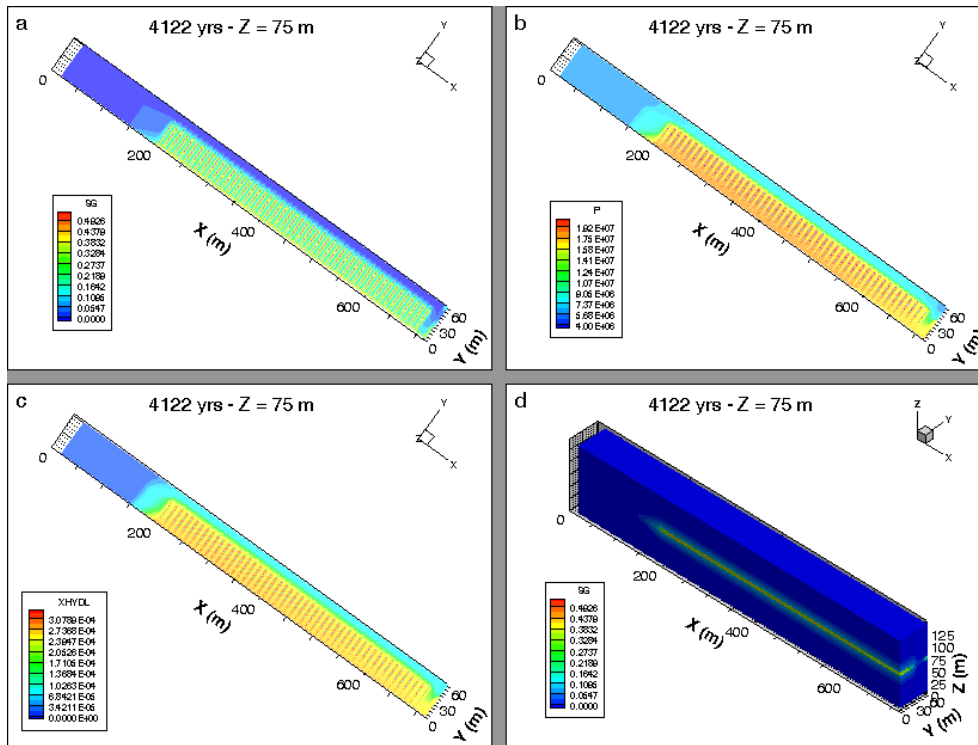


Figure 8-28 – Profils des variables physiques simulés à  $t = 4122$  ans dans le module au sein du COx (paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$ ). Vue 2D dans le plan ( $X, Y$ ) à mi-hauteur ( $Z = 75$  m) de : a/ Degré de saturation en gaz, b/ Pression, c/ Fraction massique de  $H_2$  dissous dans l'eau ; d/ Vue 3D de degré de saturation en gaz dans le domaine global.

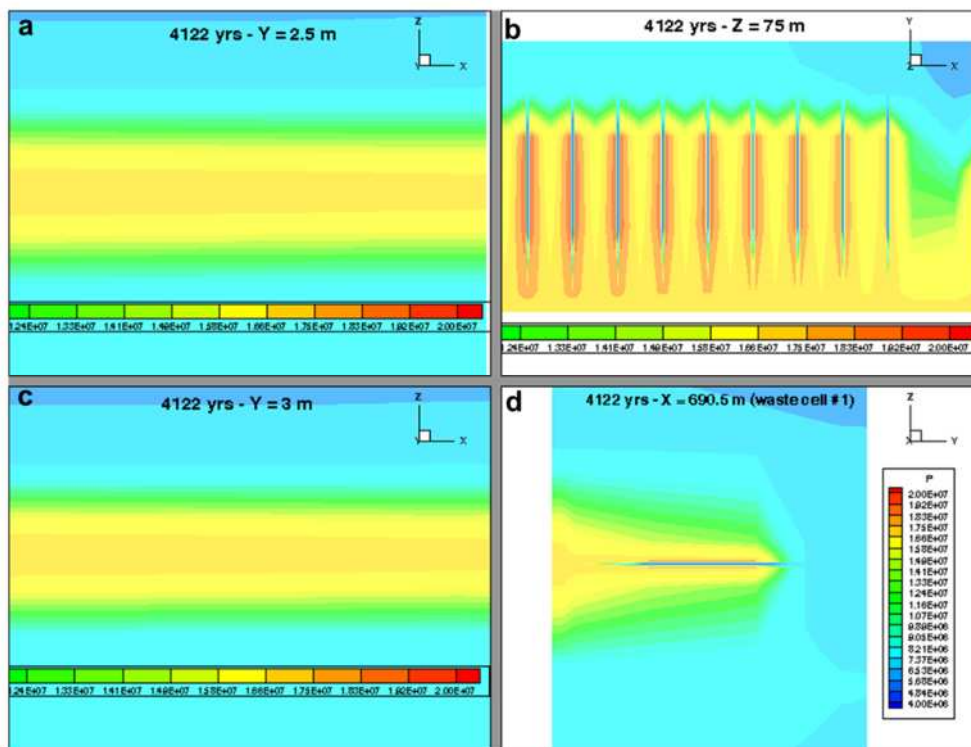


Figure 8-29 – Sections 2D de la pression à  $t = 4122$  ans (paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$ ) : a/dans la galerie d'accès, b/ aux alentours des alvéoles situées au voisinage de la galerie principale, c/ à l'interface alvéoles-galerie d'accès, et d/ le long de l'axe de l'alvéole n°1 la plus proche de la galerie principale.

### 8.3.4 Conclusion

Le développement du modèle de transport de gaz à l'échelle d'un module nous a permis d'acquérir les outils nécessaires permettant le prétraitement (*preprocessing*) du maillage de domaines à géométries complexes à plusieurs matériaux, ainsi que ceux nécessaires pour le posttraitement (visualisations en 3D) des résultats de calcul obtenus par le code TOUGH2-MP, cela afin de quantifier les processus de transport dans ces domaines.

De même, ce développement nous a permis de surmonter les difficultés occasionnées lors de calculs par un code parallélisé tel que TOUGH2-MP dans une telle modélisation, en particulier celles relatives aux problèmes de convergence numérique de la solution sur une durée de 100 000 ans souvent très difficile à atteindre et qui nécessite des temps de calculs CPU très élevés qui peuvent durer plusieurs jours, voire des semaines et des mois. Le modèle développé a permis de réaliser des temps de calculs CPU raisonnables (CPU = 12.15 heures sur une machine à 32 processeurs) et a donné lieu à des résultats identiques à ceux proposés par d'autres équipes dans le cadre du projet FORGE, sachant que ces équipes ont utilisé des maillages conséquents (entre 500 000 à 800 000 éléments), plus élevés que celui proposé par notre modèle, qui ne dépasse pas 100 000 éléments.

Parmi les avantages de développement de ce modèle est de pouvoir l'utiliser, en considérant également des maillages plus fins, pour vérifier les calculs numériques par des maillages 3D non structurés (Boubekeur, Saâdi, Benkhaldoun, 2021), d'une part, et de pouvoir analyser le calcul des flux d'hydrogène à la sortie des alvéoles, à la sortie de la galerie d'accès et au voisinage des puits situés à la sortie de la galerie principale. Cette analyse est très importante pour étudier l'**effet piston** du gaz dans la galerie principale d'une installation de stockage profond de déchets radioactifs (cf. § 8.4 ci-après).

#### Ce qu'il faut retenir :

- ✓ La prise en compte explicite des interfaces centimétriques entre les barrières ouvragées et l'EDZ dans le maillage rend très complexe la résolution numérique du problème mathématique de transport du gaz à l'échelle d'un module pour une durée très longue de **100 000 ans**. Le recours à des méthodes d'homogénéisation est très important pour pouvoir éviter les problèmes de divergence de la solution numérique actuellement proposée dans TOUGH ;
- ✓ La simulation avec une paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$  a permis de dévoiler que le gaz suit des chemins préférentiels dans les matériaux à faible  $P_{c,e}$  (interfaces, remblai, EDZ), ce qui favorise son accumulation en grandes quantités dans le réseau de galeries, et fait augmenter ainsi significativement la pression du gaz (**~ 18 MPa**). Ce résultat est attendu vu les simulations précédentes réalisées à l'échelle du forage (expérience PGZ1-GAZ ; cf. § 6.5.3) et à l'échelle de l'alvéole (cf. § 8.2.2) ;
- ✓ La pression de gaz significative de **~ 18 MPa** atteinte dans la galerie est à l'origine de pressions significatives dans le COx. Ces pressions peuvent largement dépasser **12.3 MPa**, valeur de la contrainte verticale naturelle du COx, en-dessus de laquelle la microfissuration et la fracturation hydraulique dans le COx peuvent prendre naissance.

#### Ce qu'il faut résoudre, améliorer, et/ou compléter :

##### De point de vue numérique

- ✓ Améliorer la méthode d'homogénéisation proposée dans notre modèle (Amaziane et al., 2012 ; Ahusborde et al., 2015). En effet, les paramètres des courbes de propriétés hydrodynamiques homogénéisées ont été optimisés indépendamment les uns des autres, pourtant ils sont communs aux trois courbes  $P_c(S_l)$ ,  $k_{rl}(P_c)$ ,  $k_{rg}(P_c)$ . Cette nouvelle méthode devra être généralisée au modèle VGMPE avec une pression d'entrée capillaire non nulle ;
- ✓ Tester des tailles de maillage parallélépipédique structuré plus fins que celui présenté dans la présente étude afin d'estimer l'ordre de l'erreur numérique sur le calcul des pressions et de flux de gaz ;

- ✓ Tester des maillages non structurés comme ceux développés récemment en collaboration avec l'université Paris 13 (Boubekeur, Saâdi et Benkhaldoune, 2021), afin de réduire les temps de calcul CPU ;
- ✓ Améliorer la méthode numérique actuelle utilisée dans le code TOUGH2-MP pour mieux résoudre le transport du gaz dans un maillage non structuré. Pour cela, je propose d'utiliser un nouveau schéma numérique volumes finis comme celle implémentée par Arnaldsson et al. (2014) en 2D dans TOUGH2 et de la généraliser pour des simulations en 3D ;
- ✓ Implémenter le nouveau modèle de propriétés hydrodynamiques VGMPE dans la plateforme TOUGH2-MP ainsi que les deux schémas PCM et SGM associés à ce modèle (cf. chapitre 6), afin de faciliter leur étude numérique en matière de convergence et de stabilité pour des calculs à long terme (100 000 ans) à l'échelle du module.

#### De point de vue phénoménologique

- ✓ Tester d'autres modèles de diffusion de  $H_2$ , autre que celui de MQ, dans les différents matériaux argileux non saturés composant le stockage pour quantifier les différences de pression et de flux au sein du réseau de galeries. Les expériences de laboratoire réalisées dans le cadre du projet EURAD, WP GAS (2019-2024), sont très importantes et peuvent donner lieu à de nouveaux modèles de diffusion dans les matériaux à base d'argile;
- ✓ Simuler de nouveaux scénarios où la perméabilité intrinsèque en conditions monophasiques en liquide diffère de celle en conditions monophasiques en gaz. Les résultats de mesure sur les matériaux argileux constituant les barrières ouvragées montrent que le rapport de différence entre la perméabilité à l'eau et au gaz peut dépasser 1000 (e.g. Pham et al., 2005 ; Davy et al., 2007 ; Boulin et al., 2008 ; M'Jahad et al., 2017). Les valeurs de ces deux paramètres, obtenus par ajustement des courbes de propriétés hydrodynamiques mesurées du COx par le modèle VGMPE (Tableau 6-2), montrent que ce rapport peut être supérieur à 100 ;
- ✓ Vu les pressions et les flux de gaz très élevés simulés, la prise en compte de l'hydromécanique en milieu poreux diphasique est nécessaire pour étudier la microfissuration et/ou la fracturation hydraulique et pour améliorer la présente modélisation. Pour cela, les prochaines études doivent être ciblées vers la résolution du problème du couplage de la géo-mécanique à l'écoulement diphasique liquide-gaz bi-composants (eau- $H_2$ ) en considérant des lois poro-élasto-plastiques adéquates. Ces études pourront également couvrir des études pour des écoulements diphasiques en milieu fracturé qui seront également rencontrées au niveau de l'EDZ ;
- ✓ Analyser les résultats de calcul de flux d'hydrogène (sous forme liquide et gazeuse) qui atteint la galerie principale afin de pouvoir quantifier son pourcentage par rapport au flux produit par les alvéoles du module de stockage.

## **8.4 Echelle de l'installation à plusieurs modules (modèle simplifié de Cigéo)**

### **8.4.1 Modèle 3D de Cigéo simplifié**

L'architecture du futur stockage Cigéo proposée dans cette étude correspond à celle montrée dans la Figure 8-1. Toutefois, cette étude sera limitée au transport de  $H_2$  dans les zones de stockage des alvéoles HA (quartiers HA1/HA2, HA0).

Comme décrit dans la section 8.1.1 la zone de quartiers HA1/HA2 et HA0 est désignée pour stocker les colis HA dans des micro-tunnels horizontaux (0.7 m de diamètre et entre 30 et 120 m de longueur), le tout étant enterré dans la roche argileuse du Callovo-Oxfordian (Andra, 2005). Chaque alvéole HA est scellée par un bouchon d'argile gonflante. Quand l'installation est fermée, toutes les galeries et tous les puits seront remblayés, et des scellements supplémentaires en bentonite et en ciment seront localisés à différents points dans les galeries et les puits. Le concept de l'architecture du stockage doit préciser l'arrangement des différentes zones de déchets, les quantités de colis HA, les longueurs d'emplacement des alvéoles, et les positions des puits et le volume total excavé.

L'objectif de l'étude n'est pas de développer un modèle 3D sophistiqué considérant la structure complexe du stockage dans sa globalité (e.g., Brommundt et al., 2014 ; Kaempfer et al., 2014), i.e., calculs numériques avec des processus complexes et un grand nombre de barrières ouvragées englobant des échelles spatiales très différentes

(i.e., de l'échelle du *km* pour un site de stockage à l'échelle du *dm* pour une seule alvéole). Un tel modèle est très difficile à implémenter et présente l'inconvénient de ne pas faciliter l'étude d'un mécanisme donné vu qu'il est fortement sensible au choix des paramètres.

L'objectif plutôt, ici, est de se focaliser sur la compréhension de l'**effet piston** de  $H_2$  généré par les zones d'alvéoles HA sur les transferts de l'eau dans le COx et dans la galerie principale au voisinage du puits. L'eau étant le vecteur majeur de transport de radionucléides dans le réseau de galeries par convection.

Pour cela une approche simple a été proposée ici en considérant des simplifications de la structure du stockage.

### ➤ Hypothèses

Le principe de développement de ce modèle de transport de  $H_2$  dans la zone de quartiers HA repose sur les hypothèses suivantes (Figure 8-30) :

- Les structures en forme de peigne des 7 quartiers HA (HA1/HA2 et HA0 ; Figure 8-30a ; chaque module compte entre 78 et 120 alvéoles) sont réduites à la seule configuration de la géométrie de la galerie d'accès (Figure 8-30b) qui possède un diamètre de 10 m et qui s'étend sur une distance de 1.78 km jusqu'au voisinage du premier puits croisé auprès des descenderies. Le tout étant enterré dans un domaine de la roche hôte (COx), d'un volume de  $1880 \times 60 \times 80 \text{ m}^3$  (Figure 8-30b) ;
- On suppose que la zone fracturée EDZ autour de la galerie possède une épaisseur égale à 2.65 m (Andra, 2005) ;
- On injecte la fraction de la masse de  $H_2$  (générée au sein de chaque quartier HA) qui atteint la galerie principale (Figure 8-30a) aux interfaces galeries d'accès-galerie principale. Cette fraction massique est injectée à travers un espacement régulier de 230 m reflétant les positions des galeries d'accès (Figure 8-31).

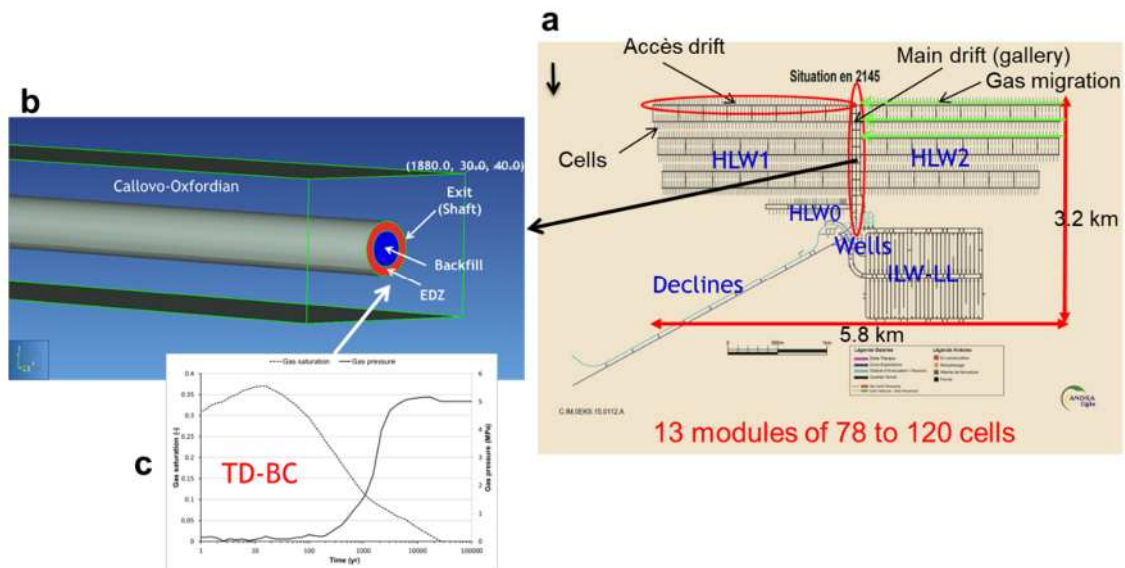


Figure 8-30 – (a) Architecture du stockage planifiée par l'ANDRA pour l'année 2145 (Projet Cigéo, DOS 2016 ; ANDRA, 2016b) – Phase de post-fermeture. (b) Modèle de galerie principale simplifié. (c) Pression du gaz et saturation en gaz imposées à la sortie de la galerie au voisinage du puits.

Cette approche est similaire à celle proposée par Enssle et al. (2012). Nous l'adoptons également dans cette étude, puisqu'elle simplifie considérablement le problème mathématique de transport de  $H_2$  à grande échelle spatiale. En effet, les mécanismes de transferts de  $H_2$  dans le stockage peuvent facilement être testés pour différents paramètres de matériaux poreux, sous-modèles, conditions initiales et aux limites, et flux de  $H_2$  atteignant la galerie

principale, sans faire appel au maillage de tous les composants du stockage. En outre, le temps de calcul CPU est fortement réduit pour la réalisation de différents scénarios d'étude de sensibilité.

Certes, cette approche ne peut pas être généralisée pour tout projet de stockage avec des architectures plus complexes, mais elle permet au moins pour l'exemple de l'architecture montrée dans la Figure 8-30a d'étudier l'impact de l'effet piston du gaz sur l'écoulement de l'eau dans le réseau de galeries d'un site de stockage.

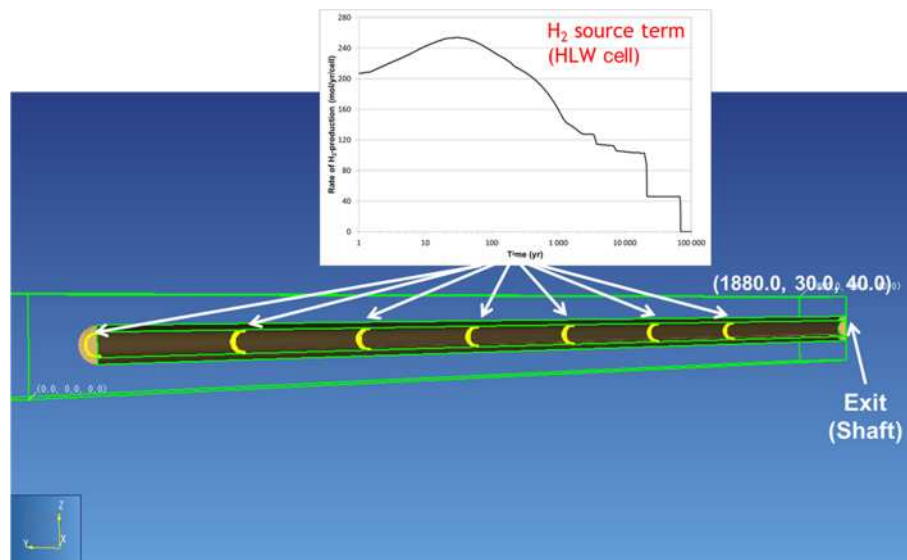


Figure 8-31 – Surfaces d'injection de H<sub>2</sub> (en jaune) dans la galerie principale, espacées par une distance régulière de 230 m reflétant les positions de galeries d'accès (domaine axisymétrique). En haut : terme source de H<sub>2</sub> variable dans le temps, généré par chaque alvéole HA (HLW) dans le stockage.

#### ➤ Conditions initiales et aux limites

La pression de la phase liquide initiale dans le COx et l'EDZ saturés correspond à celle calculée à l'équilibre hydrostatique entre la surface ( $z = 0$ ) et le bas ( $z = 40$  m) du domaine étudié, alors qu'une pression de la phase gazeuse de 1 atmosphère (101325 Pa) et un degré de saturation en gaz de 0.3 sont considérées pour l'initialisation du remblai dans la galerie principale. Comme on verra ci-après dans la section 8.4.2, cette situation n'est pas unique, puisque des scénarios représentant différentes conditions initiales de la galerie remblayée sont possibles. Excepté à la sortie de la galerie au voisinage du puits (Figure 8-30b), où une condition de Dirichlet est imposée par une saturation en gaz et une pression de gaz dépendantes du temps (Figure 8-30c ; Wendling et al., 2013b), les flux d'écoulement et de transport sont supposés nuls sur les frontières latérales.

La pression de la phase liquide hydrostatique a été supposée fixe aux frontières supérieures et inférieures du domaine (i.e.,  $z = 0$  et  $z = 40$  m, respectivement).

Etant donné l'existence d'une symétrie le long de l'axe de la galerie, le domaine d'étude est réduit à sa moitié le long de l'axe OY (Figure 8-31).

#### ➤ La solution numérique

Les simulations sont réalisées avec l'équation d'état EOS5 de la plateforme TOUGH2 (cf. § 8.2 et § 8.3). Le code original a été modifié pour incorporer les conditions aux limites de Dirichlet dépendantes du temps, le terme source H<sub>2</sub> variable dans le temps sur plusieurs éléments du maillage, les conditions initiales hétérogènes, et les nouveaux modèles de propriétés hydrauliques et diffusives représentatifs pour chaque matériau poreux.

Les propriétés physiques des trois matériaux poreux (COx, EDZ et remblai), telles que la porosité, les perméabilités intrinsèques verticales et latérales, la compressibilité et l'expansivité du pore, ainsi que les paramètres de leurs propriétés hydrauliques (i.e., courbes du modèle VGM pour la pression capillaire et les

perméabilités relatives à l'eau et au gaz modifié selon Luckner et al., 1989) ont été pris de l'article de Brommundt et al. (2014).

Les propriétés de transport telles que : les coefficients de diffusion de la vapeur d'eau et de l'hydrogène en milieu poreux non-saturé sont déduites de leurs coefficients de diffusion en milieux libres (eau et gaz) à travers le coefficient de proportionnalité, facteur de tortuosité, calculé par la formule de Millington et Quirk (1961), i.e. Eq. (1-19). Les coefficients de diffusion de l'hydrogène dans l'eau et le gaz libres sont égaux à  $6.0 \times 10^{-9}$  et  $9.5 \times 10^{-5}$  m<sup>2</sup>/s, respectivement, et le coefficient de diffusion de la vapeur d'eau dans un milieu libre gazeux est pris égal à  $2.1 \times 10^{-5}$  m<sup>2</sup>/s. L'inverse de la constante de Henry ( $H_c$ ) de l'hydrogène est égal à  $1.379 \times 10^{-10}$  Pa<sup>-1</sup>.

Le domaine est discrétisé par un maillage rectilinéaire parallélépipédique (Figure 8-32). Ce maillage est très fin à l'intérieur et au voisinage de la circonférence entourant l'EDZ (diamètre de 15.65 m). Le nombre total d'éléments actifs est de  $46 \times 26 \times 46 = 55016$ . Un extra-élément (*Extra-cell*) de volume infini est ajouté pour manipuler la condition à la limite de Dirichlet dépendante du temps au voisinage du puits (Figure 8-30b et Figure 8-32).

#### 8.4.2 Scénarios de calcul de l'effet piston du gaz dans la galerie principale

##### ➤ Scénarios étudiés

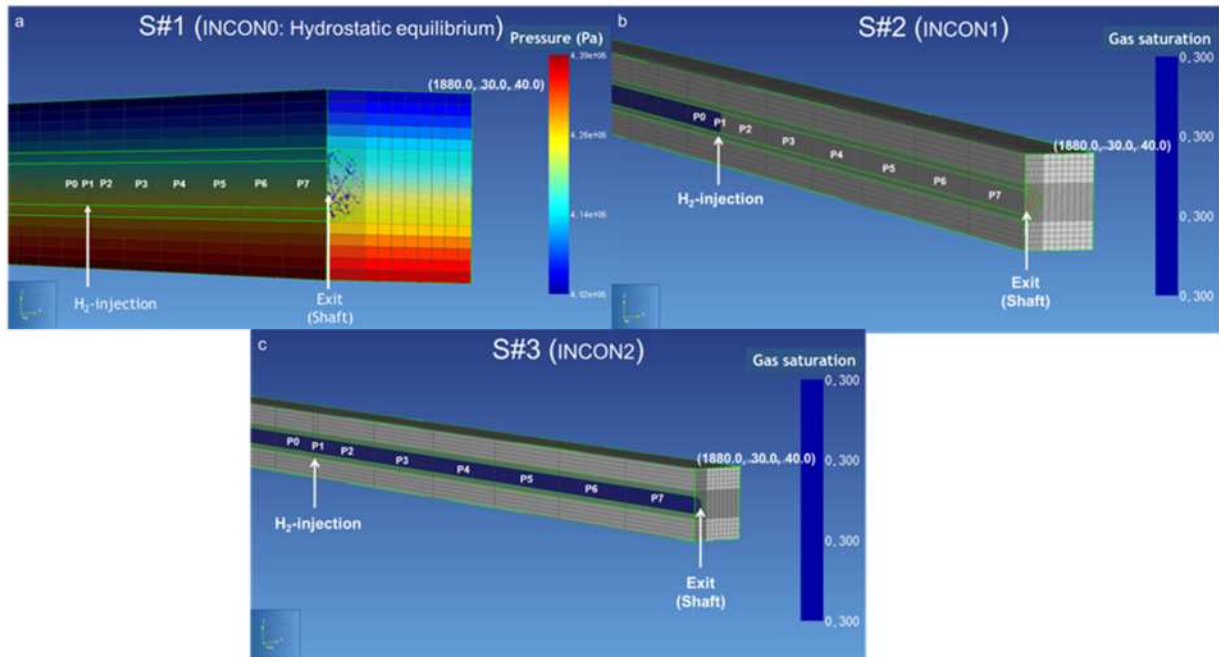
Cinq scénarios ont été choisis en faisant varier les conditions initiales et aux limites, et le pourcentage de la masse de H<sub>2</sub> produit par les alvéoles pouvant atteindre la galerie principale (Tableau 8-1). Pour les trois premiers scénarios#1-3, on suppose que toute la masse d'hydrogène produite par les quartiers HA atteint la galerie principale. En revanche, ces 3 scénarios diffèrent soit par l'initialisation de la galerie ou par le type de la condition à la limite appliquée au voisinage du puits (pression hydrostatique constante en milieu saturé ou pression du gaz et saturation en gaz variables dans le temps en milieu non-saturé, Figure 8-30c).

**Tableau 8-1 – Scénarios#1-5 simulés par le modèle pour les différentes conditions initiales dans la galerie principale, et les différents flux de H<sub>2</sub> qui pourraient l'atteindre.**

Scenario#	Initial condition (INCON)	Exit boundary condition	% of H <sub>2</sub> -flux
1	INCON0 100 < X < 1880 m drift fully saturated	5 MPa	100
2	INCON1 100 < X < 1482.5 m (P1/P2) drift unsaturated; SL = 0.7 1482.5 < X < 1880 m: drift fully saturated	5 MPa	100
3	INCON2 100 < X < 1880 m drift unsaturated; SL = 0.7	TD-BC <sup>a</sup>	100
4	INCON2 100 < X < 1880 m drift unsaturated; SL = 0.7	TD-BC	60
5	INCON2 100 < X < 1880 m drift unsaturated; SL = 0.7	TD-BC	40

<sup>a</sup> TD-BC : Time Dependent Boundary Condition (Figure 8-30c)





**Figure 8-32 – Conditions initiales (INCON) dans la galerie pour les scénarios S#1-3 (Tableau 8-1): a/ S#1 : galerie complètement saturée en eau (équilibre hydrostatique); b/ S#2 : galerie complètement saturée dans le dernier 400 m le long de l’axe OX, et non-saturée ( $S_{g,ini} = 0.3$ ) ailleurs; c/ S#3 : galerie non saturée ( $S_{g,ini} = 0.3$ ). Les positions des points (centres d’éléments) P0-P7 localisés au voisinage du puits, où les résultats seront visualisés, sont également montrées.**

Dans les scénarios#1,2 on suppose qu’à l’état initial, l’eau souterraine provenant du COx a déjà complètement saturé toute ou une partie de la galerie principale à travers les frontières verticales et latérales de la galerie principale (EDZ et puits), avant l’arrivée du front du gaz à la galerie principale (Figure 8-32a,b, respectivement). Pour ces deux scénarios, une pression hydrostatique constante de 5 MPa est imposée au voisinage du puits. Même si ces deux scénarios sont imaginaires, ils peuvent présenter probablement des situations induites par des conditions d’agression externes telles que la fracturation de la roche, l’élargissement de l’EDZ, la présence de failles sismiques ..., qui pourraient venir perturber l’efficacité de la roche hôte et le remblai, résultant ainsi à une saturation complète rapide de toute ou une partie de la galerie avant l’arrivée du front du gaz aux interfaces galeries d’accès – galerie principale. Même si les scénarios#1,2 sont imaginaires, ils sont nécessaires pour examiner la durée durant laquelle une galerie complètement saturée pourrait freiner l’avancée du gaz jusqu’au voisinage du puits. En revanche, le scénario#3 est supposé représenter des conditions initiales réalistes du remblai constituant la galerie principale, puisque le remblayage de cette dernière est généralement réalisé en conditions non-saturées (e.g., saturation en eau de 0.3, Figure 8-32c).

Comme reporté par Saâdi et al. (2018), même si l’hypothèse de 100% de la masse de  $H_2$  produite par les quartiers HA pouvant atteindre la galerie principale ne serait pas réaliste, puisque une partie de cette masse sera dissoute dans l’eau du COx durant son transport à travers les galeries d’accès des quartiers HA, elle peut donner une approximation des valeurs maximales de la distance parcourue par la phase liquide eau (**CLTD : Cumulative Liquid Travel Distance**), qui peuvent être atteintes dans des centaines de milliers d’années sous l’effet piston de l’hydrogène dans la galerie principale. Si ces maximums sont négligeables, une étude supplémentaire de cet effet par la suite ne serait pas nécessaire.

Les situations les plus probables correspondent à un certain pourcentage de la masse d’hydrogène produite (par l’ensemble des alvéoles HA) qui se dissout dans l’eau du COx avant d’arriver à la galerie principale. Selon les résultats simulés par des modèles 3D à l’échelle de l’installation de stockage (Brommundt et al., 2014), 30 à 40% de  $H_2$  produit peut atteindre les puits. Ainsi, le pourcentage de la masse de  $H_2$  atteignant la galerie principale doit être supérieur à ce pourcentage. Si on suppose qu’uniquement 20% de la masse de  $H_2$  se dissout dans l’eau du COx durant le transport de  $H_2$  dans la galerie principale, alors la masse de  $H_2$  qui pourrait atteindre la galerie principale serait estimée à 50 à 60 % de la masse de  $H_2$  produite, comme proposé dans le scénario#4 (Tableau 8-1).

Un autre scénario, scénario#5 (Tableau 8-1), a été considéré dans le cas où une incertitude de 50 % est estimée sur les flux de  $H_2$  calculés par les modèles 3D du site de stockage (i.e., uniquement 20% de la masse de  $H_2$  produite atteint le puits). Pour les deux scénarios#4-5, la galerie principale est supposée partout initialement non-saturée (Figure 8-32c), avec une saturation en eau égale à 0.7 (soit  $S_g = 0.3$ ).

Pour tous ces scénarios, le temps initial est supposé correspondre au temps de début de la phase post-fermeture (après 100 à 150 ans d'exploitation du stockage), et les simulations sont réalisées sur **100 000 ans**. L'objectif est de suivre l'évolution temporelle des pressions des phases gazeuse et liquide et de la saturation en eau (ou en gaz) aux points de centres des éléments P1-P7 localisés le long de l'axe central de la galerie (suivant l'axe OX) dans les derniers 400 m les plus proches du puits (Figure 8-32), ainsi que celle des flux d'eau et de gaz aux connexions entre ces éléments.

➤ Effet des conditions initiales et aux limites (Scénarios#1-3)

La Figure 8-33a,d,g montre pour les trois scénarios S#1,2,3, respectivement, les variations temporelles de la saturation en eau aux points d'éléments P0-P7, parallèlement à celles imposées au voisinage du puits (*BC, extra-element*), et au taux de production de  $H_2$  (*INJ-element*). Partant de n'importe quel état initial dans la galerie (complètement saturée, S#1, Figure 8-33a, ou, en partie saturée, S#2, Figure 8-33d, ou, totalement non-saturée, S#3, Figure 8-33g), on simule approximativement la même configuration hydraulique à 100 000 ans. Malgré les flux d'eau verticaux et latéraux provenant du COx en direction de la galerie principale, cette dernière demeure non saturée à cause de la dominance de l'écoulement de la phase gazeuse au sein de la galerie (voir points P0 et P1, S#2, Figure 8-33d ; points P0-P7, S#3, Figure 8-33g, évolution à partir de 1000 ans). En effet, cet écoulement gazeux pousse fortement l'eau le long de la galerie remblayée vers le puits plutôt que vers le COx.

Dans les points initialement non-saturés, la saturation en eau (ou la pression de l'eau) augmente jusqu'à atteindre sa valeur maximale, et diminue par la suite pour atteindre une valeur stationnaire, qui dépend de la position de chaque point par rapport à la sortie de la galerie au niveau du puits (Figure 8-30). Seuls les points P6 et P7 (plus proches de la sortie) qui sont influencés par les conditions d'écoulement imposées à cette frontière, mais leur influence demeure négligeable. Après approximativement 500 ans, on peut constater que la pression de l'eau (Figure 8-33c,f,i) évolue dans le temps de la même manière que la pression du gaz (Figure 8-33b,e,h), et que toutes les deux atteignent leurs valeurs maximales au point P0, situé au voisinage de la surface d'injection de  $H_2$  (où est localisé le point P1). Ces valeurs maximales sont à peu près égales à 7.02, 6.76 et 6.34 MPa pour la pression du gaz, et 6.7, 6.31 et 5.66 MPa pour la pression de l'eau, pour les scénarios#1-3, respectivement. En outre, excepté aux points les plus proches de la sortie de la galerie (i.e., P6 and P7), les évolutions dans le temps des pressions de l'eau et du gaz aux points P1-P5 suivent la même évolution dans le temps du taux de production de  $H_2$  (INJ), montrant ainsi l'importance de l'effet piston de l'hydrogène au voisinage de la sortie de la galerie.

La comparaison entre les profils 3D de la pression et de la saturation en gaz simulés à 100 000 ans par le scénario#1 (Figure 8-34a,b) avec ceux simulés par le scénario#3 (Figure 8-34c,d) confirme que leurs configurations hydrauliques dans la galerie principale sont approximativement similaires. Ce résultat est également démontré par les valeurs CLTD dans le Tableau 8-2. Ces configurations montrent bien l'avancement important du front de la phase gazeuse dans la galerie principale.

Tableau 8-2 – Les valeurs de CLTD (*Cumulative Liquid Travel Distance*) aux interfaces entre les points P0, ..., P7 simulées à  $t = 100\,000$  ans par les scénarios#1,2,3 du modèle simplifié de la zone HA de Cigéo.

Interface	X (m)	XMAX <sup>a</sup> - X (m)	Scenario#1		Scenario#2		Scenario#3	
			CLTD (m)	Diff. <sup>b</sup> (m)	CLTD (m)	Diff. (m)	CLTD (m)	Diff. (m)
P0/P1	1477.5	402.5	97.0	305.5	55.5	347.0	100.3	302.2
P1/P2	1482.5	397.5	334.9	62.6	288.3	109.2	335.3	62.2
P2/P3	1548.75	331.25	301.8	29.5	263.9	67.3	306.4	24.8
P3/P4	1615	265	279.1	<b>-14.1</b>	243.9	21.1	288.8	<b>-23.8</b>
P4/P5	1681.25	198.75	262.9	<b>-64.1</b>	229.9	<b>-31.1</b>	277.4	<b>-78.6</b>
P5/P6	1747.5	132.5	251.4	<b>-118.9</b>	219.9	<b>-87.4</b>	268.7	<b>-136.2</b>
P6/P7	1813.75	66.25	243.7	<b>-177.5</b>	213.2	<b>-147.0</b>	260.0	<b>-193.7</b>
P7/BC	1880	0	551.0	-551.0	480.2	-480.2	598.9	-598.9

<sup>a</sup> XMAX = 1880 m (main drift length along X-axis)

<sup>b</sup> Difference between (X-XMAX) and CLTD (if negative water flows beyond the exit boundary)

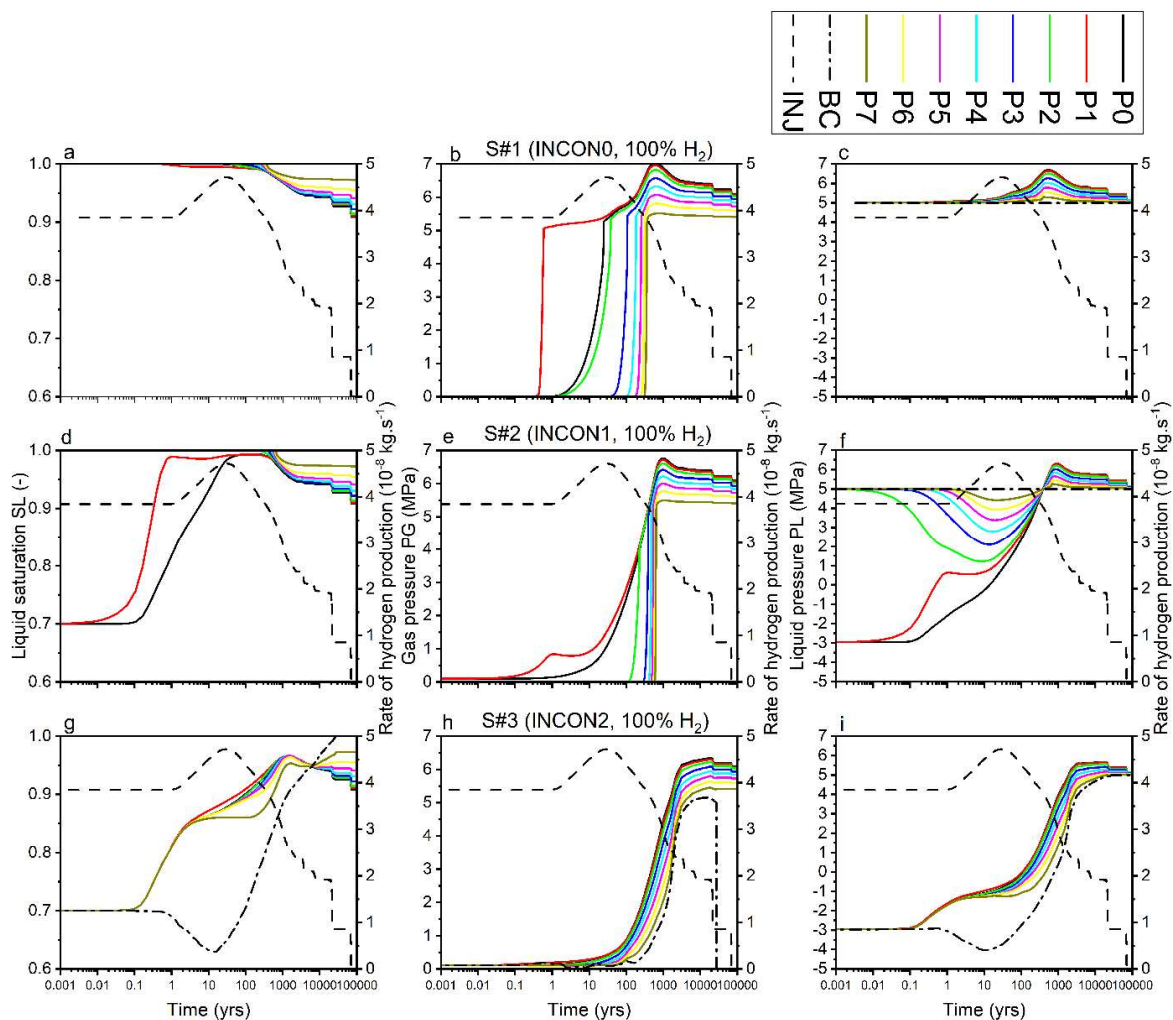


Figure 8-33 – Variations temporelles de la saturation en eau (à gauche), de la pression de gaz (au milieu), et de la pression de l'eau liquide (à droite) aux points P0-P7, de même que celles au voisinage du puits (BC) et du taux de production H<sub>2</sub> d'un alvéole HA (INJ): a, b, c/Scénario#1; d, e, f/Scénario#2; g, h, i/Scénario#3.

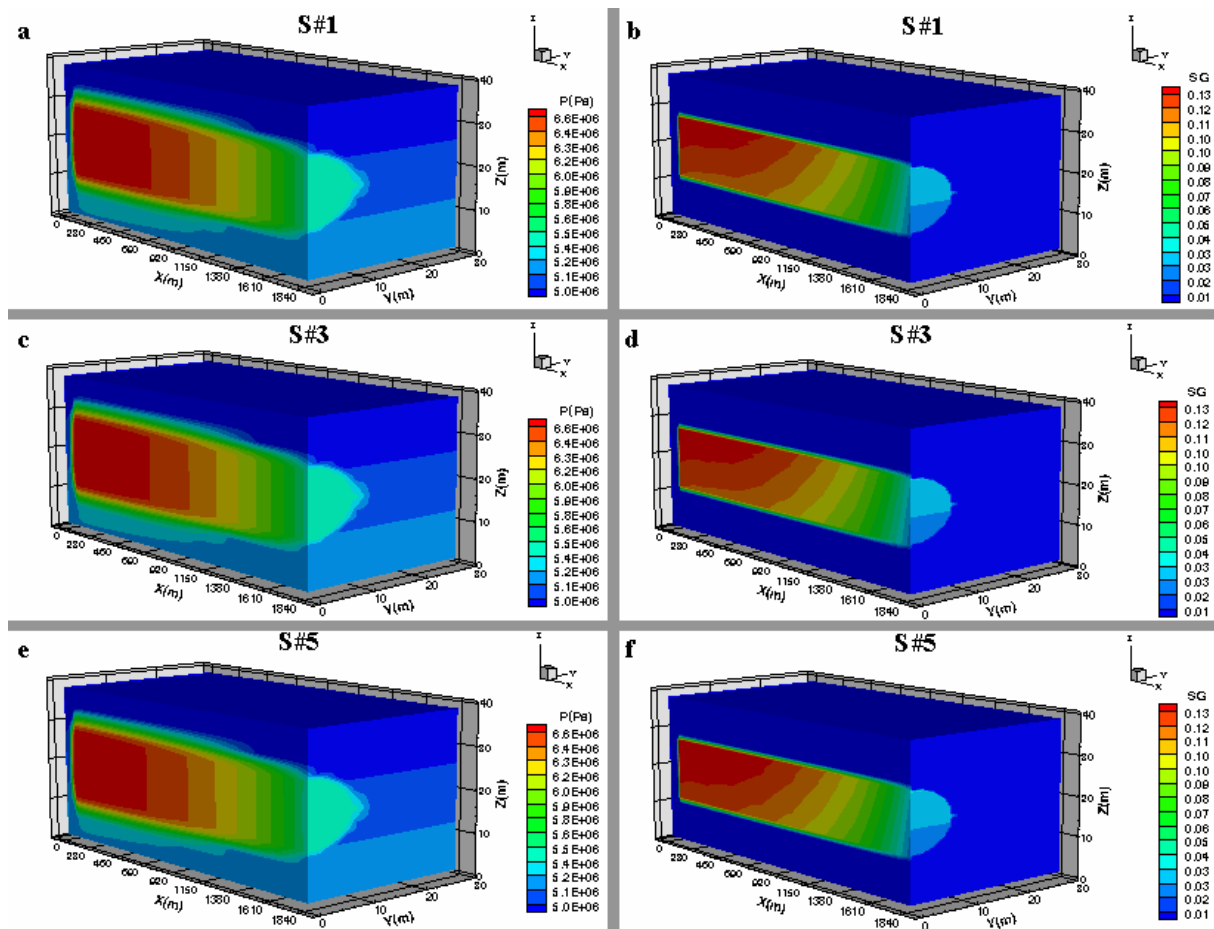
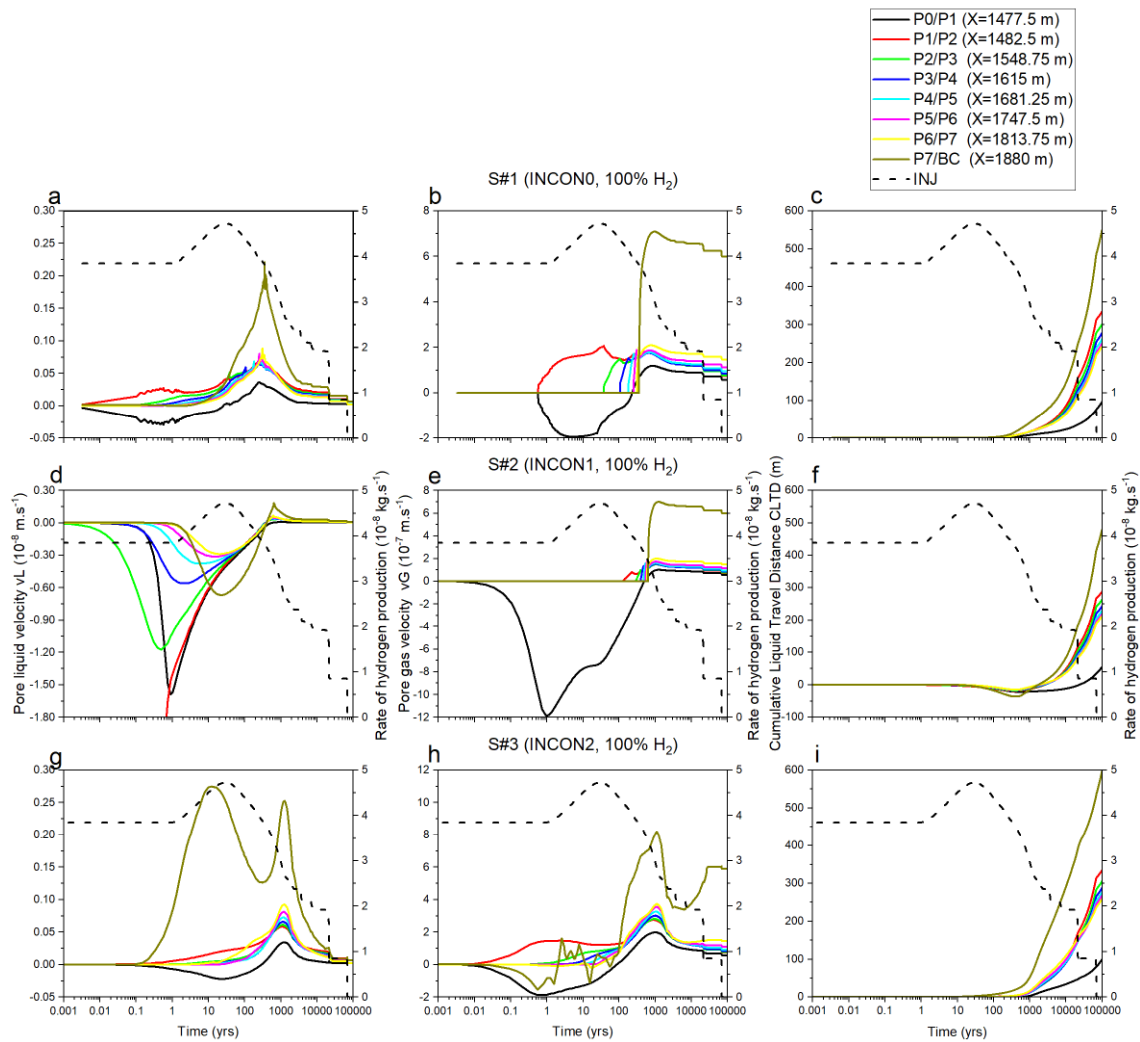


Figure 8-34 – Profils 3D de la pression et de la saturation en gaz à  $t = 100\,000$  ans, simulés par le modèle simplifié de la zone HA de Cigéo : a, b/Scénario#1 ; c, d/Scénario#3; e, f/Scénario#5

La variation temporelle de la vitesse de pore de l'eau dans le cas d'une galerie initialement complètement saturée en eau (connexions  $P_i/P_{i+1}$ ,  $i=0\dots 6$  ; S#1, Figure 8-35a) est presque similaire à celle dans le cas d'une galerie initialement non-saturée (S#3, Figure 8-35g), malgré des conditions aux limites différentes appliquées au voisinage du puits (interface P7/BC). En revanche, dans le cas d'une galerie en partie saturée (S#2, Figure 8-35d), on calcule une avancée importante du front d'eau depuis le puits vers l'intérieur de la galerie, qui dure à peu près 500 ans (i.e., vitesse négative dans le sens opposé de la direction OX), avant de changer sa direction dans le sens opposé définitivement vers le puits (i.e., vitesse positive dans la direction OX). Pour ces trois scénarios, ils apparaissent des pics de vitesse de pore d'eau après ceux de taux de production du gaz  $H_2$  (Figure 8-35a,d,g), illustrant ainsi l'avancée du front d'eau en direction du puits quelles que soient les conditions initiales et aux limites appliquées. Il y a une apparition prématurée des pics de vitesse d'eau simulés par les scénarios#1,2 (~ 200, 400 ans, respectivement), alors que celui simulé par le scénario#3 apparaît tardivement à  $t \sim 1000$  ans. Ces décalages temporels résultent directement des avancées décalées dans le temps des pics de vitesse de gaz simulés par les trois scénarios (Figure 8-35b,e,h).



**Figure 8-35 – Variations temporelles de la vitesse de pore de l'eau liquide (à gauche), de la vitesse de pore de gaz (au milieu), et de CLTD (*Cumulative Liquid Travel Distance* ; à droite) aux interfaces entre les points P1, ..., P7, de même que celles du taux de production  $\text{H}_2$  d'un alvéole HA (INJ): a, b, c/Scénario#1; d, e, f/Scénario#2; g, h, i/Scénario#3.**

Les variations dans le temps de CLTD simulées par les scénarios#1,2,3 sont montrées dans la Figure 8-35c,f,i, respectivement. Elles confirment les résultats d'avancement du front d'eau le long de la galerie principale dans les derniers 400 m les plus proches du puits (Figure 8-35a,d,g). Peu de différences sont calculées entre les valeurs de CLTD simulées par les scénarios#1,3. A cause de forts gradients de pression d'eau et du gaz initiaux simulés par le scénario#2, dus à l'état initial de l'interface saturée/non-saturée P1/P2, les valeurs de CLTD simulées par ce scénario sont plus petites que celles simulées par les scénarios#1,3. Ce gradient ralentit l'avancée des fronts de gaz et d'eau durant  $\sim 500$  ans. Les valeurs de CLTD à 100 000 ans simulées par les trois scénarios, Tableau 8-2, confirment bien ces observations.

Si nous excluons de notre analyse les valeurs de CLTD à l'interface P0/P1 (puisque P1 est situé dans la zone d'injection de  $\text{H}_2$ , et qu'une partie de la masse de  $\text{H}_2$  injectée en ce point est initialement dirigée dans le sens opposé de la direction OX dans la galerie), et à l'interface P7/BC (effet de la condition à la limite), les valeurs moyennes de CLTD dans les derniers 400 m auprès du puits sont égales à 279, 243 et 289 m pour les scénarios#1,2,3, respectivement. Basé sur ces hypothèses simplificatrices des présentes simulations et en négligeant d'autres processus chimiques et physiques qui viennent rentrer en jeu, ces résultats montrent que tout type de contaminant situé au sein des derniers 265 m au voisinage du puits (de l'interface P3/P4 à  $X=1615$  m à l'interface P7/BC à  $X=1880$  m, Tableau 8-2) peut probablement arriver au puits. Ces valeurs de CLTD sont beaucoup plus élevées que prévu. Certes, ces valeurs sont surestimées puisqu'il a été supposé que toute la masse de  $\text{H}_2$  produite dans les quartiers HA atteint la galerie principale pour ces scénarios (i.e., aucun flux  $\text{H}_2$  gazeux ne



s'est dissous dans la roche hôte depuis sa sortie des alvéoles vers les galeries d'accès et la galerie principale). En revanche, ce résultat démontre que l'effet piston de l'hydrogène sur le mouvement convectif de l'eau et le transport de contaminants vers les puits n'est pas négligeable et ne peut pas être exclu de notre analyse de sûreté de l'installation Cigéo. Un meilleur moyen pour évaluer l'effet piston serait de réaliser des simulations avec un pourcentage adéquat de la masse de  $H_2$  atteignant la galerie principale, comme sera discuté dans le paragraphe qui suit pour l'analyse des simulations des scénarios#4,5 (Tableau 8-1).

➤ Effet de flux de l'hydrogène gazeux (Scénarios#3-5)

En réduisant le flux de  $H_2$  atteignant la galerie principale de 100 % (scénario#3) à 40 % (scénario#5) on réduit la saturation en eau (e.g., Figure 8-36a,d,g, points P1, P4 et P7, respectivement) et la pression de l'eau (e.g., Figure 8-36c,f,i) aux points P0-P7 situés au voisinage du puits. Ce résultat est dû à la diminution de la pression de gaz (e.g., Figure 8-36b,e,h), et par conséquent celle de l'effet piston du gaz  $H_2$ . Notons, cependant, que le point P7, le plus proche du puits, est moins influencé par l'effet piston du gaz (Figure 8-36g,h,i), comme pour le cas des scénarios#1,2. Les maximums de pression de gaz calculés par les scénarios#4,5 (~ 6.2 et 6.1 MPa, respectivement) ne sont pas très différents de ceux calculés par le scénario#3 (6.3 MPa) qui suppose que 100% de la masse de  $H_2$  produite au niveau des alvéoles atteint la galerie principale. L'exemple des profils 3D de pression et de saturation en gaz simulés à  $t = 100\ 000$  ans par le scénario#5 (Figure 8-34e,f, respectivement) montre bien une avancée du front de la phase gazeuse au sein de la galerie principale, mais avec un étalement un peu plus important de la phase gazeuse sur le premier km par rapport à ceux simulés par le scénario#1 (Figure 8-34a,b) et le scénario#3 (Figure 8-34c,d).

La vitesse de pore de l'eau diminue quand le flux de  $H_2$  est réduit de 100% (scénario#3, Figure 8-37a) à 40% (scénario#5, Figure 8-37g). Ce résultat est la conséquence directe de la diminution de la vitesse de pore du gaz (Figure 8-37b,e,h), moteur principal de déplacement de l'eau dans la galerie principale. Par conséquent, la variation temporelle de CLTD (Figure 8-37c,f,i) diminue : elle atteint une moyenne de 212 et 174 m à  $t = 100\ 000$  ans, pour les scénarios#4,5, respectivement. Même si une forte diminution de la valeur moyenne de CLTD est calculée par rapport au scénario#3 (réduction de 77 et 115 m pour les scénarios#4,5, respectivement), l'effet piston demeure non négligeable. Comme montré dans le Tableau 8-3, la zone contaminée (distance maximale le long de l'axe OX entre la position de l'interface à laquelle la valeur de CLTD est supérieure à sa position à partir du puits, et la position du puits  $X_{MAX} = 1880$  m) est réduite de la valeur 265 m simulée par le scénario#3, aux valeurs de 198.75 m (interfaces P4/P5, P5/P6, P6/P7) et 132.5 m (interfaces P5/P6, P6/P7) simulées par les scénarios#4,5, respectivement.



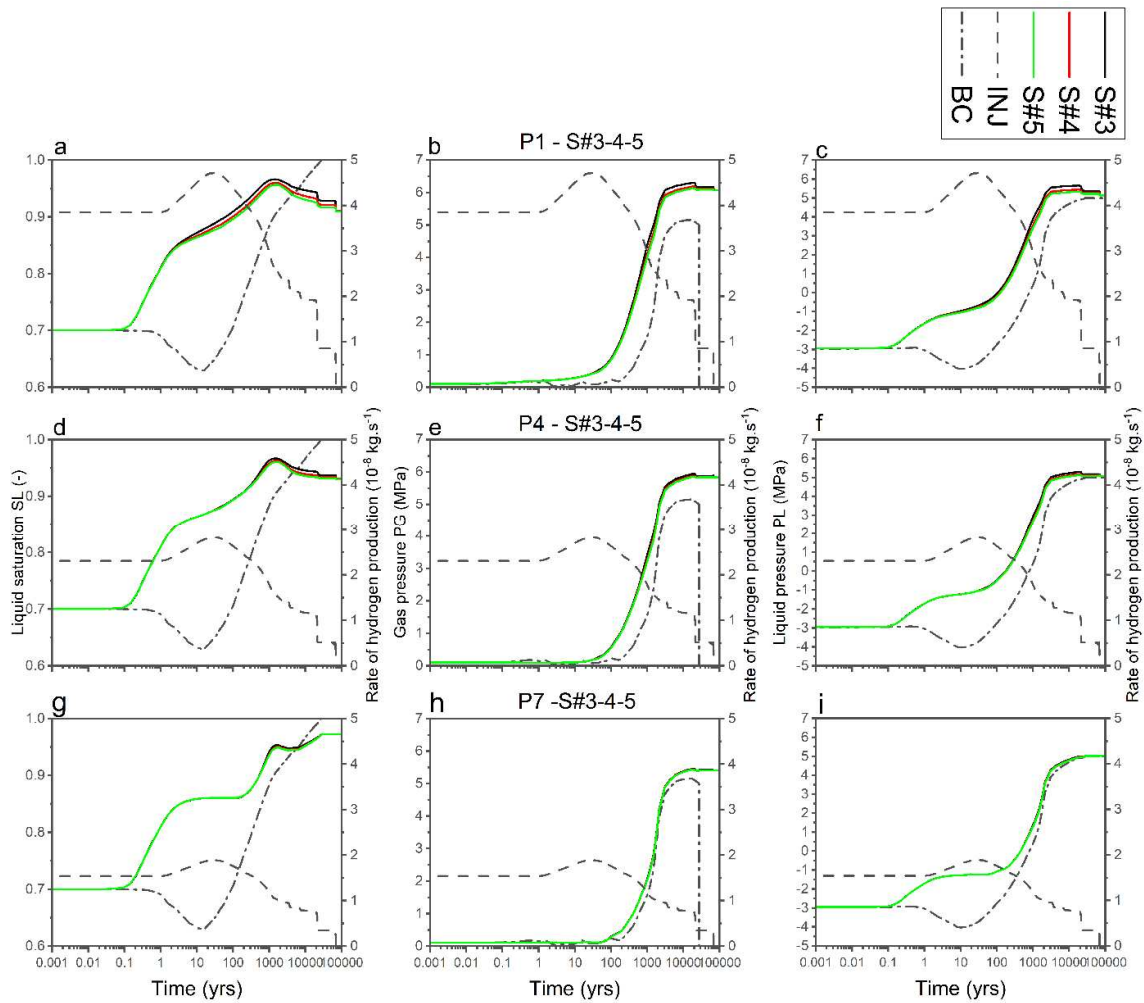


Figure 8-36 – Variations temporelles de la saturation en eau (à gauche), de la pression de gaz (au milieu), et de la pression de l'eau liquide (à droite) aux points P1, P4 et P7, de même que celles au voisinage du puits (BC) et du taux de production  $\text{H}_2$  d'un alvéole HA (INJ) pour les trois scénarios#3,4,5 : a, b, c/Point P1 ; d, e, f/ Point P4; g, h, i/ Point P7.

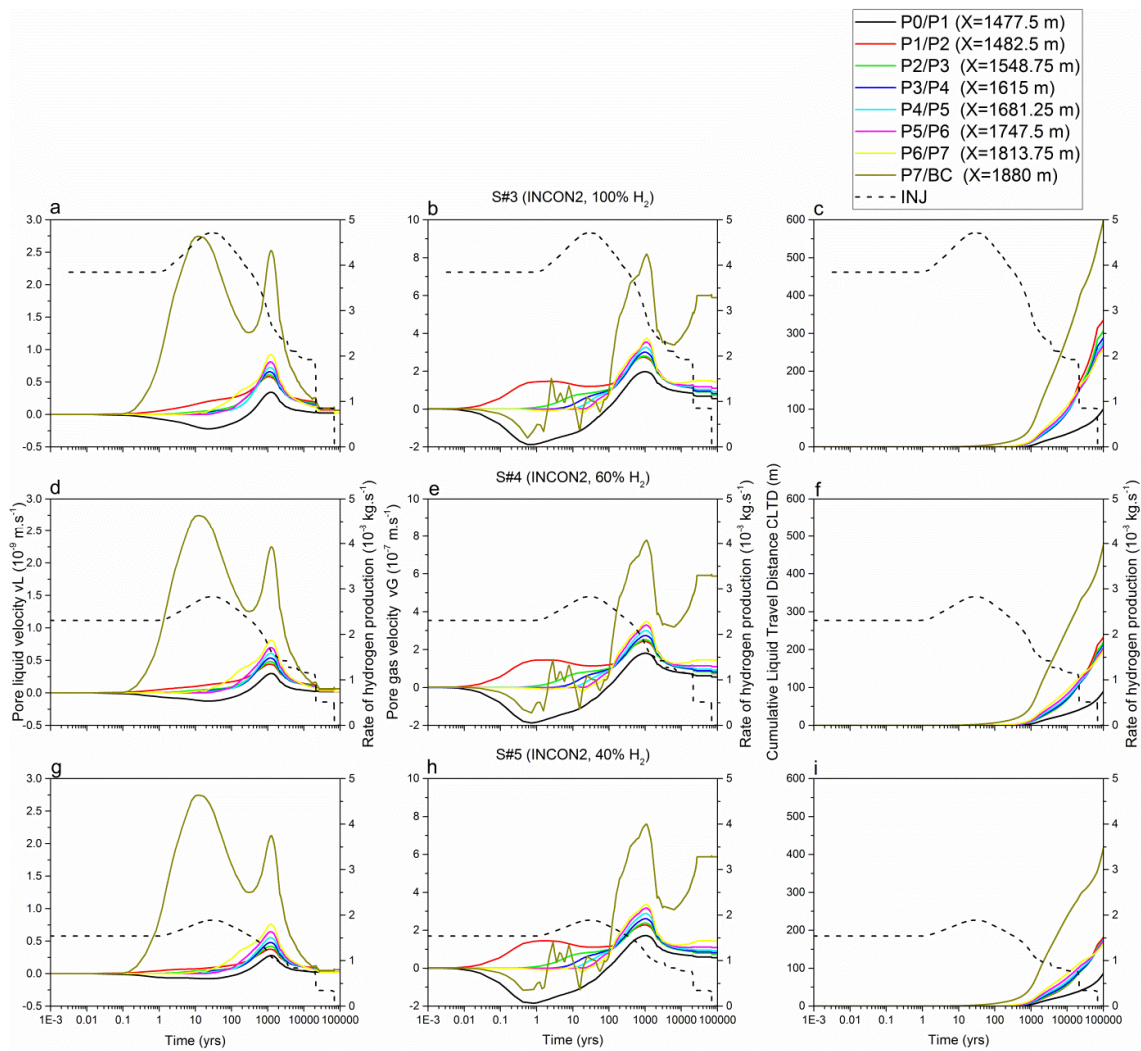


Figure 8-37 – Variations temporelles de la vitesse de pore de l'eau liquide (à gauche), de la vitesse de pore de gaz (au milieu), et de CLTD (*Cumulative Liquid Travel Distance* ; à droite) aux interfaces entre les points P1-P7, de même que celles du taux de production H<sub>2</sub> d'un alvéole HA (INJ): a, b, c/Scénario#3; d, e, f/Scénario#4; g, h, i/Scénario#5.

Tableau 8-3 – Les valeurs de CLTD (*Cumulative Liquid Travel Distance*) aux interfaces entre les points P0-P7 simulées à t = 100 000 ans par les scénarios#3,4,5 du modèle simplifié de la zone HA de Cigéo.

Interface	X (m)	XMAX <sup>a</sup> - X (m)	Scenario#3		Scenario#4		Scenario#5	
			CLTD (m)	Diff. <sup>b</sup> (m)	CLTD (m)	Diff. (m)	CLTD (m)	Diff. (m)
P0/P1	1477.5	402.5	100.3	302.2	89.9	312.6	86.0	316.5
P1/P2	1482.5	397.5	335.3	62.2	232.5	165.0	181.7	215.8
P2/P3	1548.75	331.25	306.4	24.8	219.0	112.2	176.1	155.1
P3/P4	1615	265	288.8	<b>-23.8</b>	212.0	53.0	174.2	90.8
P4/P5	1681.25	198.75	277.4	<b>-78.6</b>	207.9	<b>-9.1</b>	173.2	25.6
P5/P6	1747.5	132.5	268.7	<b>-136.2</b>	203.8	<b>-71.3</b>	170.9	<b>-38.4</b>
P6/P7	1813.75	66.25	260.0	<b>-193.7</b>	197.7	<b>-131.4</b>	165.5	<b>-99.3</b>
P7/BC	1880	0	598.9	-598.9	476.1	-476.1	416.2	-416.2

<sup>a</sup> XMAX = 1880 m (main drift length along X-axis)

<sup>b</sup> Difference between (X-XMAX) and CLTD. If negative: water flows beyond the exit boundary

Les situations les plus probables simulées par les scénarios#4,5 montrent que l'effet piston n'est pas négligeable même pour 40% de la masse de H<sub>2</sub> produite par les alvéoles HA atteignant la galerie principale.

### 8.4.3 Conclusion

#### Ce qu'il faut retenir :

Le modèle de stockage simplifié développé dans cette étude a souligné l'influence potentielle de l'effet piston de l'écoulement de l'hydrogène sur le déplacement de l'eau au sein de la galerie principale d'un site de stockage géologique profond de déchets radioactifs HA. Ce modèle utilise la paramétrisation usuelle des propriétés hydrauliques et de transport de la roche argileuse hôte (COx), de l'EDZ, et du remblai de la galerie principale. Les simulations numériques réalisées pour des scénarios de différentes conditions initiales et différents flux d'hydrogène atteignant la galerie principale, ont permis d'identifier, en termes de CLTD, deux importantes informations, à savoir :

- ✓ L'étendu spatial au voisinage du puits dans lequel aura lieu le déplacement d'une éventuelle eau contaminée, provoqué par la phase gazeuse, avant que l'équilibre hydrostatique soit atteint dans le domaine d'écoulement ;
- ✓ L'impact de l'effet piston non négligeable : plus que 100 m durant 100 000 ans; et cela quelle que soit l'initialisation de la galerie principale et le flux d'hydrogène l'atteignant.

Certes, ces résultats sont utiles mais ne peuvent pas être généralisés pour tout concept de stockage, et dépendent essentiellement du type de la roche hôte, du système de scellement considéré, de l'architecture de l'installation du stockage, des géométries des galeries... En revanche, il a été montré ici que l'effet piston peut être significatif en termes de CLTD et que son mécanisme doit encore être investigué.

#### Ce qu'il faut résoudre, améliorer, et/ou compléter :

Avant d'aborder ici les tâches qui pourraient améliorer et/ou compléter cette étude, il serait souhaitable d'inclure dans le futur les nouveaux éléments récemment apparus dans le cadre du benchmark du projet EURAD WP GAS (Module ANDRA dans un stockage générique, étudié pour apporter des éléments de réponse pour la prochaine DAC – Acronyme de Dossier d'Autorisation de Création - de Cigéo). En effet, dans ce benchmark, de nouvelles géométries d'alvéoles, un terme source de H<sub>2</sub> en plus dû aux barres d'armatures en acier du béton autour des galeries sur des durées plus longues (50 000 ans), de nouveaux modèles de diffusion en milieu poreux non-saturé et de perméabilités... La prise en compte de ces nouveaux éléments modifiera sûrement la vision de conception du stockage Cigéo par l'exploitant (ANDRA) ainsi que notre vision de simuler l'effet piston du gaz sur l'écoulement de l'eau et le transport de radionucléides par ce type de modélisation simplifiée.

Partant de ces nouveaux éléments, je proposerai de réaliser les tâches suivantes :

- ✓ Tester l'effet d'une pression d'entrée capillaire non nulle dans les modèles de propriétés hydrauliques de la roche hôte, de l'EDZ et du remblai (modèle VGMPE, cf. § 6.1). Etant donné que la roche hôte présente la pression d'entrée la plus élevée dans ce système poreux, on s'attend à une augmentation considérable de la pression du gaz dans la galerie principale, et par conséquent la pression de l'eau et sa vitesse de pore (i.e., augmentation de CLTD) ;
- ✓ Tester le phénomène d'hystérésis et de piégeage de la phase gazeuse dans la roche hôte (COx), l'EDZ et le remblai. Comme montré dans le chapitre 7, ces deux phénomènes ne sont pas négligeables et s'observent essentiellement durant les cycles de resaturation et de désaturation de ces matériaux. Dans l'exemple du modèle de stockage simplifié présenté dans cette étude, on assistera durant une longue période à l'imbibition d'une grande partie de la galerie principale par de l'eau provenant du COx. Cette partie de la galerie subira par la

suite un séchage important à cause de l'arrivée du gaz durant toute la période de production du gaz, puis subira de nouveau une resaturation (imbibition) après l'arrêt de cette production de gaz. A ce stade, le piégeage du gaz ( $H_2$ ) aura tendance à retarder la resaturation de la galerie principale et par conséquent, l'atteinte de l'équilibre hydrostatique ;

- ✓ Tester l'effet combiné de la pression d'entrée et des cinétiques d'hystérésis. Ces deux phénomènes auront sûrement tendance à modifier l'hydraulique du gaz dans la galerie principale ainsi que le temps d'arrivée des contaminants à la sortie de la galerie principale au niveau du puits, qu'il faudra l'estimer ;
- ✓ Réévaluer les flux entrant la galerie principale en provenance des quartiers HA. Ainsi, il serait judicieux d'étudier la géométrie du module proposé dans le benchmark EURAD (Levasseur et al., 2021) avec la nouvelle paramétrisation et les nouvelles phénoménologies (pression d'entrée, terme source, perméabilité intrinsèque...). Ces calculs contribueront également à la compréhension des phénomènes de transfert à l'échelle de l'installation ;
- ✓ Tester l'effet de l'interface remblai-EDZ sur les écoulements. Sa prise en compte d'une manière explicite dans le maillage ou d'une manière implicite par homogénéisation avec les matériaux adjacents (EDZ ou remblai) pourrait avoir un impact sur l'effet piston du gaz dans la galerie principale ;
- ✓ Introduire le transport des radionucléides (gazeux et solides) en plus de transport de l'hydrogène dans ce modèle simplifié de Cigéo. Pour cela, une modification du code EOS7R de TOUGH est souhaitable en introduisant les propriétés physiques et thermodynamiques de  $H_2$  ;
- ✓ Etudier les effets des incertitudes sur les paramètres physiques, hydrauliques et de transport du  $CO_x$ , l'EDZ et le remblai, et les mécanismes, ainsi que ceux du terme source de l'hydrogène au sein d'un alvéole HA. A ce stade de l'étude du projet Cigéo, l'Andra n'a pas encore tranché sur le choix du type de remblai qui sera mis en place pour sceller les galeries. Ainsi, il sera judicieux d'étudier l'effet piston du gaz sur l'écoulement de l'eau d'un point de vue probabiliste sur les types de distributions spatiales qui régissent les paramètres inconnus du modèle. Les méthodes de propagation d'incertitudes (Ababou, 2008) offrent des souplesses pour ce genre d'étude et pourront apporter quelques éléments de réponse sur les types de distribution qui peuvent régir les variables de sortie du modèle (pressions et flux) au sein du réseau de galeries et à son exutoire ;
- ✓ Enfin, tester l'effet d'un scellement horizontal au voisinage du puits (Figure 8-6a) et d'un scellement vertical de liaison surface-fond dans le puits (Figure 8-6b) en considérant ce modèle simplifié de flux de  $H_2$  injecté dans la galerie principale. Cette modélisation permet d'éviter l'effet d'une condition dépendante du temps (Figure 8-30c), puisqu'une condition hydrostatique à la limite supérieure du puits serait plus réaliste.

## 9. Production scientifique associée

Ahusborde, E., Amaziane, B., Baksay, A., Bátor, G., Becker, D., Bednár, A., Béreš, M., Blaheta, R., Böhti, Z., Bracke, G., Brazda, L., Brendler, V., Brenner, K., Březina, J., Cancès, C., Chainais-Hillairet, C., Chave, F., Claret, F., Domesová, S., Havlova, V., Hokr, M., Horák, D., Jacques, D., Jankovsky, F., Kazymyrenko, C., Kolditz, O., Koudelka, T., Kovács, T., Krejci, T., Kruis, J., Laloy, E., Landa, J., Lipping, T., Lukin, D., Mašin, D., Masson, R., Meeussen, J.C.L., Mollaali, M., Mon, A., Montenegro, L., Montoya, V., Pepin, G., Poonosamy, J., Prasianakis, N., **Saâdi, Z.**, Samper, J., Scaringi, G., Sochala, P., Tournassat, C., Yoshioka, K., Yuankai, Y. (2021): State Of the Art Report in the fields of numerical analysis and scientific computing. Final version as of 16/02/2020 of deliverable D4.1 of the HORIZON 2020 project EURAD. EC Grant agreement no: 847593. <https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-03165686>

Amri A., **Z. Saâdi**, R. Ababou, 2022. Parametric sensitivity to gas-entry pressure in two-phase flow models for a deep geologic repository of radioactive waste. *Transp. Porous Med.*, 145: 13–43, 2022. <https://doi.org/10.1007/s11242-022-01780-w>

Amri A., **Z. Saâdi**, R. Ababou, 2022. Modeling multiphase flow with hysteresis: Application to deep geological structures, disposal of radioactive waste and  $CO_2$  storage (Article in preparation for submission)

Amri A., **Z. Saâdi**, R. Ababou, M. Dymitrowska (2022): Parametric sensitivity to gas-entry pressure in 2-phase flow models in a deep geologic repository for radioactive waste. *CLAY 2022: 8th Internat. Conf. on Clays in Natural & Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement* (13-16 June 2022, Nancy, France). Extended abstract. #CLAY00099 [TOPIC 03: Fluid (water, gas) transport & solute migration]

Amri A. (2021) : Réévaluation du modèle physique de transfert de l'hydrogène pour l'étude du transitoire hydraulique-gaz dans un stockage profond de déchets radioactifs. Thèse de doctorat, Université de Toulouse, Institut National Polytechnique de Toulouse (INP Toulouse), 213p. (Co-encadrement 50 % par **Z. Saâdi** + 50 % par R. Ababou)

- Amri A. (2018) : Prise en compte de la pression d'entrée et d'hystérésis dans le modèle de la migration d'hydrogène au voisinage d'un stockage géologique de déchets radioactifs. Master's degree of Science M2R, report IRSN/INP-ENSEEIH, pp. 45, 30 September 2018. (Supervised 100 % by **Z. Saâdi**)
- Boubekeur M., **Z. Saâdi**, F. Benkhaldoun (2021) : Développement d'une méthode pour adapter un maillage généré par Gmsh au format TOUGH2 en 3D. Laboratoire Analyse, Géométrie et Applications (LAGA - Université Paris 13, Villetaneuse) et IRSN/PSE-ENV/SEDRE/UEMIS, Rapport Technique, 18 p., 28 mai 2021.
- Saâdi Z.**, A. Amri, R. Ababou (2022): modeling two-phase flow with entry pressure and hysteresis: application to gas transport in deep geological structures. In: CLAY 2022: 8th Internat. Conf. on Clays in Natural & Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement (13-16 June 2022, Nancy, France). Extended abstract. #CLAY00629 [TOPIC 03: Fluid (water, gas) transport & solute migration] <https://hopscotch.key4events.com/AbstractList.aspx?e=190&g=2bf8b675-5cc9-4885-a4a8-738e06ba32f6&preview=1&aig=-1&ai=13952&stamp>
- Saâdi Z.**, M. Dymitrowska, F. Deleruyelle, F. Marsal, 2020. An evaluation model of the impact of hydrogen 'piston effect' on water displacement in a deep geological repository for radioactive waste. *Environmental Earth Sciences*, 79:434.
- Saâdi Z.**, A. Amri, R. Ababou (2020): A revisited compositional two-phase flow model for the simulation of gas transport at different scales in the heterogeneous porous structure of a deep HLW disposal facility. InterPore 2020 (The 12th Annual Meeting): In (MS7) Mathematical and numerical methods for multi-scale multi-physics, nonlinear coupled processes, pp. 36-37, 31 August-4 September 2020, Qingdao, China.
- Saâdi Z.**, A. Amri, R. Ababou (2019): Evaluation of some models of gas transport at different scales in a deep geological repository. In: Proceedings of The workshop Advances in the Simulation of reactive flow and TRANsport in porous Media (SITRAM'19), Keynote speaker, Book of Abstracts, p. 15, Pau, France, December 2-3, 2019. Sitram2019\_Saadi\_2.pdf (sciencesconf.org) - Sitram.pdf (sciencesconf.org)
- Saâdi Z.**, M. Dymitrowska, L. Pan, F. Deleruyelle, N. Mokni, F. Marsal (2018): A simplified mechanistic model for studying the impact of hydrogen 'piston effect' on water displacement in a deep geological repository for radioactive waste. TOUGH Symposium 2018, 8-10 October 2018, Berkeley, USA, Extended abstract, 5 p. 2018.





# Partie III

- Perspectives de recherche



## Introduction

Cette partie III est le résultat d'une réflexion proposant tout d'abord une vision des chemins à suivre sur les projets de recherche qui nous permettront d'apporter des réponses aux interrogations qui restent marquantes. Elle propose, sur la base des études présentées dans les parties I et II, de déployer les efforts sur un certain nombre d'actions, qui de mon point de vue, ne sont pas suffisamment traitées et demande de nouveaux efforts.

En se basant sur les grandes conclusions évoquées tout au long de ce manuscrit, cette partie propose une liste non exhaustive des travaux de recherche à mener au cours des prochaines années sur la modélisation des transferts des gaz en milieux poreux et/ou fracturés diphasiques. Ces travaux concernent principalement les deux thématiques scientifiques (« radon » et « Gaz dans Cigéo ») investiguées dans ce manuscrit, mais également les problématiques scientifiques qui y sont communes ainsi qu'à d'autres thématiques de recherche.

Partant tout d'abord des actions actuelles et les perspectives à donner à chacune d'entre elles, cette partie trace en particulier certaines grandes lignes permettant de traiter des problématiques jamais ou partiellement investiguées jusqu'aujourd'hui, malgré leur intérêt pour la compréhension des phénomènes de transfert des gaz dans les environnements naturels et anthropiques.

## 10. Perspectives sur les projets en cours sur la thématique « Gaz dans

### Cigéo »

Tout d'abord, nombre d'actions de recherche décrites dans la partie II qui précède se poursuivent. Ainsi le projet européen **EURAD** jusqu'en 2024, en particulier WP-GAS (WP6), s'intéresse désormais essentiellement au transport de l'hydrogène généré par corrosion anaérobie de l'acier (chemisage et conteneurs en acier de l'alvéole, barres d'armatures d'acier du béton revêtant les galeries) au sein d'un stockage géologique profond de déchets radioactifs.

Plusieurs études sont nées autour de ce projet, notamment l'étude des propriétés THM des différents matériaux poreux à base d'argile constituant le stockage (roche hôte et barrières ouvragées). Le modèle de propriétés hydrauliques VGMPE (cf. § 6.1) sera testé dans le cadre d'un benchmark sur le cas d'un stockage générique (WP-GAS – Task4) incluant un module à plusieurs alvéoles tel que préconisé par le concept ANDRA de stockage dans les quartiers HA de Cigéo. Les résultats préliminaires des simulations obtenus jusqu'aujourd'hui par quelques équipes impliquées dans ce projet, posent des questions sur les incertitudes importantes liées au choix des modèles de ces propriétés et à leur paramétrisation. Le fait de ne pas prendre en compte ces incertitudes peut fausser le calcul de la pression du gaz au sein du stockage, et donc l'évolution hydromécanique de ce dernier. En outre, les modèles de terme source et de diffusion de H<sub>2</sub>, et les modèles hydromécaniques proposés dans ce benchmark ne prétendent pas *a priori* apporter des réponses sur l'effet d'une pression de gaz très élevée sur l'évolution hydromécanique du stockage. Quelques interrogations sur la manière avec laquelle faudra-il agir pour libérer le gaz confiné dans le stockage, comme le dimensionnement du réseau de galeries, le type de scellements et leur emplacement dans ce réseau, restent encore pendantes.

Il s'agit donc pour la prochaine étape de caractériser le comportement THM de ces matériaux en lien avec des études de processus hydromécaniques en milieu argileux (microfissuration et/ou fracturation hydraulique induites par les écoulements ; interfaces scellements/roche saine ou fracturée, modifiées mécaniquement) et leur impact sur les écoulements diphasiques liquide-gaz au sein du stockage. A ce titre, la poursuite d'une **thèse a été proposée dès 2021**, avec comme objectif de caractériser l'évolution mécanique des interfaces scellements/EDZ et de l'EDZ via une réorientation des collaborations pour atteindre ces objectifs (**IMFT** : Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse - Université de Toulouse ; **Université Polytechnique de Madrid**). De nouvelles modélisations seront également développées et validées sur les expérimentations réalisées au laboratoire et *in situ* (laboratoire souterrain de Tournemire) dans le cadre du projet **VSEAL**<sup>8</sup>).

<sup>8</sup> Projet de recherche dédié à l'étude des mécanismes d'évacuation des gaz produits dans le stockage géologique des déchets radioactifs au travers des ouvrages de scellements verticaux (e.g. Figure 8-6b). Dans le cadre de ce projet, l'IRSN a lancé une série d'essais au laboratoire et *in situ* (laboratoire souterrain de Tournemire) depuis dix ans, afin d'étudier le comportement hydromécanique d'un scellement constitué d'un mélange d'argiles gonflantes (sous forme d'un assemblage polydispersé de granules hautement compactées) et de granules broyées, initialement fortement désaturé, sous charge hydraulique et gazeuse (Molinero, 2018; Caulk, 2022).

Pour des études à l'échelle du module ou du stockage, de nouvelles pistes seront proposées pour évaluer les différentes incertitudes dues (i) à l'hétérogénéité spatiale du CO<sub>x</sub> et des EDZs; (ii) aux différents types de maillages du domaine étudié (structurés et non structurés), ainsi qu'au schéma numérique volumes finis (VF) actuellement mis en œuvre dans les codes TOUGH (étude en cours, en collaboration avec le **LAGA** : Laboratoire d'Analyse et Géométrie Appliquées - Université de la Villetaneuse - Paris 13); (iii) aux paramètres inconnus des modèles, suite à l'insuffisance des données expérimentales ou à la méconnaissance du type de scellement du réseau de galeries qui sera mis en place dans le stockage (collaboration avec l'IMFT); (iv) aux effets thermique et capillaire sur les équilibres de **dissolution/volatilisation** de l'hydrogène; (v) à la **présence initiale de l'air**; et enfin (vi) à la dépendance du **terme source** par rapport au degré de saturation en eau, due notamment à la consommation d'eau par la corrosion anaérobie.

L'objectif est de couvrir l'ensemble de ces incertitudes pour mieux cerner les incertitudes sur les pressions et le flux de gaz maximaux atteints au sein des alvéoles et le réseau de galeries, et pour enfin évaluer leur impact sur la sûreté de l'installation.

Dans ce qui suit, les études présentées sont, soit au début de leur développement, soit en perspectives.

## 10.1 Projet EURAD 2019-2024 – Evaluation de la pression et flux de gaz au sein d'un module générique 3D (benchmark WP GAS – Task 4)

La partie étude des phénomènes de pression d'entrée capillaire et d'hystérésis a été soldée durant les deux premières années de ce projet (2019-2021) dans le cadre du WP-DONUT (WP4 : *Development and Improvement Of Numerical methods and Tools for modelling coupled processes*). Le modèle VGMPE développé (cf. § 6.1, Eqs. (6-1)-(6-3)-(6-4)) sera testé dans le cadre du benchmark proposé dans WP-GAS de ce même projet (Levasseur et al., 2021). Ce benchmark consiste à étudier le transport de gaz au sein d'un "stockage générique" incluant les éléments de concept de stockage (modules) de différents programmes nationaux tels que ceux de la Suisse (ILLW storage zone A), de la Belgique (HLW storage zone B) et de la France (HLW storage zone C), Figure 10-1a.

L'objectif de ce benchmark sera principalement de comparer les différentes méthodes de calcul (modèle 3D complet, approximations 2D, réseau de neurones, *lumping techniques*...) afin d'illustrer comment ces méthodes peuvent être utilisées pour obtenir des indicateurs pertinents comme la pression ou l'écoulement aux positions importantes dans le système, et de vérifier que des méthodes différentes calculent des valeurs consistantes de ces indicateurs (prenant en compte l'évaluation des incertitudes bien sûr).

En réalité, il ne s'agit pas d'un benchmark entre codes, même si différents types de codes seront utilisés, mais plutôt un benchmark entre des méthodes numériques, afin d'évaluer la pertinence de chaque méthode au regard de l'impact du gaz généré sur le transitoire hydromécanique du stockage.

La contribution de l'IRSN à ce benchmark consiste à étudier le transport de gaz uniquement au sein du quartier HA du stockage proposé par l'ANDRA (*HLW storage zone C* : module à une quarantaine d'alvéoles HA ; Figure 10-1a) jusqu'au puits (point jaune dans la Figure 10-1a). Pour pouvoir avancer dans ce benchmark et résoudre les problèmes numériques qui surgissent suite à l'accumulation du gaz dans le système hétérogène composant le stockage, tout d'abord, une première étude sera menée à l'échelle d'un alvéole 3D unique (alvéole numéro 1 entouré en rouge dans la Figure 10-1a) afin d'évaluer sa contribution à l'écoulement de la phase gazeuse dans la galerie.

L'étude consiste à tester les méthodes numériques SGM et PCM développées précédemment (cf. § 6.3) à une telle échelle en introduisant des conditions aux limites appropriées, le nouveau modèle VGMPE de propriétés hydrodynamiques, et les nouveaux paramètres du CO<sub>x</sub> et des matériaux de barrières ouvragées du stockage (Figure 10-1b, Figure 10-2), tels que présentés par Levasseur et al. (2021). Dans cette étude, un terme de production de H<sub>2</sub> constant sur une durée de 40 000 à 50 000 ans sera testé, il correspond à la corrosion anoxique de l'acier non-allié uniquement (comme étant le produit d'un taux de corrosion constant avec la surface du composant métallique disponible). Ce terme est supposé différent selon le type de métal et sa position dans le site de stockage (les barres d'armature en acier du béton (*rebars in concrete liners*) revêtant toutes les galeries corrodent moins vite que le métal du conteneur et du liner situé dans l'alvéole HA).

Pour pouvoir adhérer aux spécificités de ce benchmark, des modifications aux codes iTOUGH2 et TOUGH2-MP seront nécessaires : changer l'expression originale du modèle de tortuosité de Millington et Quirk (1961), i.e. Eq. (1-19) ; considérer la perméabilité intrinsèque de  $k_{r,l}$  (i.e.,  $k_{0,l}$  dans Eq. (6-3)) différente de celle de  $k_{r,g}$  (i.e.,  $k_{0,g}$  dans Eq. (6-4)).

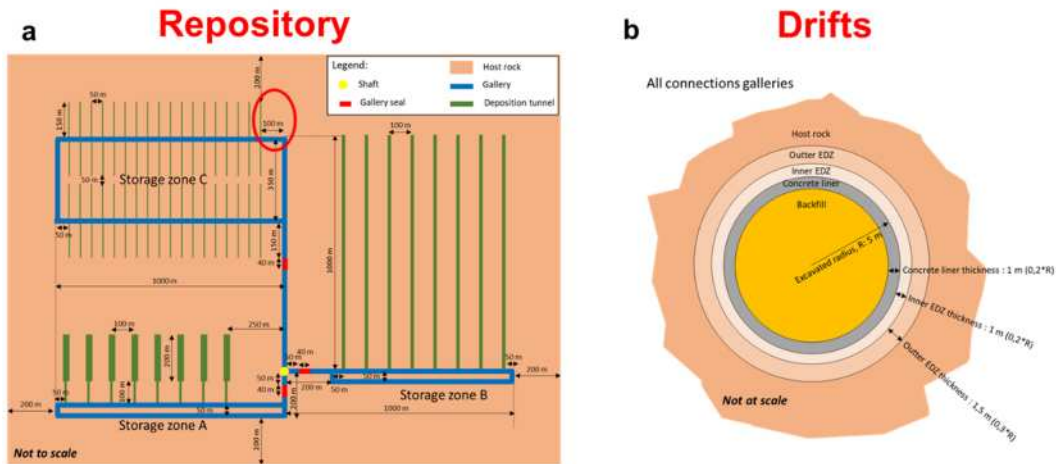


Figure 10-1 – a/ Coupe schématique horizontale à la profondeur du stockage générique ; b/ Coupe schématique verticale de la galerie.

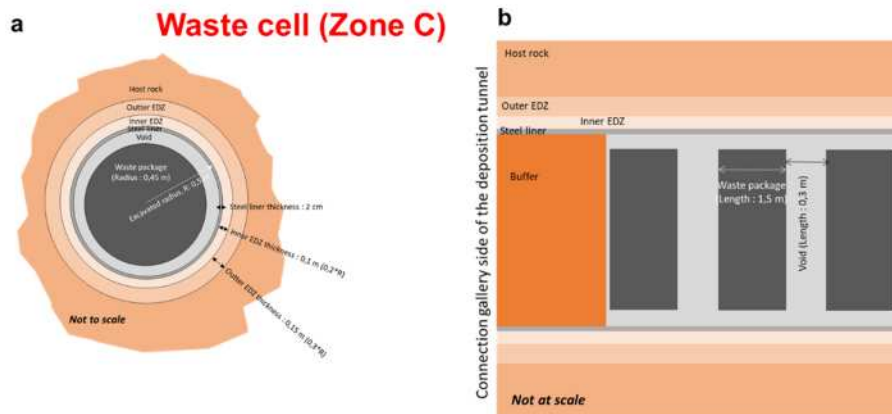


Figure 10-2 – Schématisation du micro-tunnel de dépôt des déchets HA dans la zone C (Concept Andra) : a/ Section radiale ; b/ Section longitudinale.

Notre objectif ne se limitera pas à l'étude de l'effet de la pression d'entrée capillaire sur le transport de gaz dans ce stockage générique mais plutôt à réaliser d'autres études impliquant des développements et applications de nouvelles approches physiques (e.g. phénomènes négligés auparavant ou pris séparément des autres phénomènes) et de nouvelles méthodes numériques qui peuvent fortement réduire les incertitudes sur les calculs à long terme.

### 10.1.1 Combinaison de la pression d'entrée capillaire et de l'hystérésis

Dans les chapitres (6) et (7) ces deux phénomènes ont été étudiés indépendamment l'un de l'autre, et ont montré leur impact sur les résultats de simulation des écoulements diphasiques en milieu poreux et l'importance de leur prise en compte, en particulier pour des simulations à des échelles spatiales et temporelles très importantes. Pour cela, un nouveau modèle unique de propriétés hydrodynamiques, qui permet de les regrouper, sera développé. Ce développement s'appuiera sur le modèle d'hystérésis de Beriozkin et Mualem (2018) (cf. § 7.1.2) et le modèle

VGMPE pour  $P_{c,e} \neq 0$  (cf. § 6.1), puis une étude numérique suivra sur leur adéquation à l'une des deux méthodes PCM ou SGM décrites précédemment (cf. § 6.3). Concernant la méthode PCM, apparaissant la plus convenable, une attention particulière doit être donnée à l'inversion des courbes  $S(P_c)$  pour calculer les courbes intermédiaires et aux tests thermodynamiques à mettre en place pour distinguer les courbes intermédiaires de celles principales lors de la résolution numérique par cette méthode.

Après implémentation de ce développement dans la plate-forme du code massivement parallélisé TOUGH2-MP, l'étude de ces effets combinés sur la migration du gaz à l'échelle de l'alvéole et du module générique du stockage de la zone C (Figure 10-1 et Figure 10-2) sera réalisée, et les résultats obtenus seront comparés avec ceux issus de différents modèles HM-Gas (e.g., Abed et Sokolowski, 2019) développés par les différentes équipes impliquées dans le WP-GAS du projet EURAD.

### 10.1.2 Terme source de l'hydrogène

Jusqu'à présent les termes sources testés dans nos modèles sont soit constants (Projets FORGE, EURAD), soit variables dans le temps, calculés par ailleurs (e.g., Figure 8-31 pour des calculs à l'échelle de stockage, cf. § 8.4). Comme montré dans la section 8.3.3 pour des calculs à l'échelle d'un module (modèle FORGE) avec une paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$ , ce terme joue un rôle crucial sur le calcul des pressions et de flux de gaz au sein du stockage. En effet, la prise en compte d'une pression d'entrée capillaire non nulle a permis d'identifier que le choix de ce type de modèle mène à des concentrations et pressions de gaz très élevées et pose question sur la manière de le modéliser.

Une alternative à ce modèle très simplifié, est de considérer un modèle complet prenant en compte l'ensemble des conditions thermo-bio-physico-chimiques qui règnent dans le milieu et qui impactent la production des masses d'hydrogène importantes dans le stockage, comme ceux proposés par Xu et al. (2008) et Avis et al. (2014). Toutefois, ce type de modèle nécessite d'informer un grand nombre de paramètres : (i) caractéristiques des alliages métalliques de fer (aciers) constituant les conteneurs et les chemisages des alvéoles, ainsi que celles constituant les barres d'armatures utilisées pour le renforcement du béton des liners qui revêtent les galeries; (ii) les propriétés bio-physico-chimiques de l'eau provenant de la roche hôte; et (iii) les différentes constantes de cinétiques de réactions d'oxydo-réduction caractérisant les processus de corrosion. En outre, l'implémentation de ce modèle dans TOUGH nécessite des étapes de vérification numérique et de validation sur des données expérimentales, qui sont onéreuses, mais incontournables pour la crédibilité des modèles de migration des gaz développés par la suite à la base de ce modèle de corrosion.

Une autre alternative consiste à développer des modèles empiriques simplifiés du taux de production ou de consommation de  $H_2$  en fonction du degré de saturation en eau et de certains paramètres bio-physico-chimiques (e.g., Croisé et al., 2011). Ce type de modèle est séduisant puisqu'il ne nécessite pas énormément de paramètres. Toutefois, son développement nécessite de réaliser des mesures du taux de corrosion des alliages du fer au laboratoire en conditions thermo-bio-physico-chimiques contrôlées afin d'estimer ses paramètres.

*In fine*, l'orientation vers le développement de l'un des deux types de modèles (au moins le modèle empirique) du terme source prenant en compte ces conditions thermo-bio-physico-chimiques sera nécessaire afin d'évaluer les incertitudes issues d'un modèle à taux production constant ou variable dans le temps, et pour ne pas fausser les résultats des études de sûreté de l'installation du stockage à long terme.

### 10.1.3 Diffusion de l'hydrogène dans le COx

Comme expliqué dans la section 8.3.3 (calcul à l'échelle d'un module, modèle de FORGE), la cinétique de diffusion de  $H_2$  dans le COx par rapport aux matériaux des barrières ouvragées peut être à l'origine de l'accumulation de ce gaz dans les galeries puisque la pression d'entrée du COx est la plus élevée. *A priori* seule la formulation de MQ pour le calcul du coefficient de diffusion (Eq. (1-19)) a été testée dans le cadre de nos études à l'échelle de l'alvéole (cf. § 8.2.2) et à l'échelle d'un module (cf. § 8.3.3) avec une paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$ . En revanche, cette formulation mathématique n'est pas unique pour tout type de matériau. La proposition effectuée dans le benchmark EURAD WP GAS – Task 2.1 consiste à une modification de cette formulation pour l'adapter à la diffusion de  $H_2$  dans chaque matériau poreux constituant l'ouvrage du stockage ; toutefois, reste à vérifier si cette modification est pertinente. Pour cela, le modèle de diffusion de  $H_2$  en milieu non saturé choisi doit être développé en adéquation avec les données expérimentales existantes.



Les études théoriques (e.g. *pore network modelling*) et expérimentales (au laboratoire et in situ) menées actuellement dans le cadre de EURAD WP GAS – Task 2.1 sont d'une énorme utilité puisqu'ils s'intéressent essentiellement aux mécanismes de transport des gaz dans les différents matériaux argileux, en particulier la détermination de leurs paramètres de diffusion et les phénomènes de leur sorption dans des systèmes microporeux.

Cette voie de recherche nous permettra sûrement de développer les modèles adéquats qui permettront d'estimer avec une bonne précision les propriétés de diffusion de l'hydrogène dans le COx et les barrières ouvragées.

#### 10.1.4 Etude de maillage et des schémas numériques

Comme décrit dans Wendling et al. (2013), les types de maillage et de schéma numérique de résolution des EDPs paraboliques-elliptiques non-linéaires et couplées, dans le cas de transport de l'hydrogène au voisinage d'un alvéole ou d'un module de site de stockage jouent un rôle crucial sur les résultats de calcul des pressions et des flux au sein du stockage, et par conséquent sur la sûreté de l'installation.

De même, comme montré précédemment dans les calculs à l'échelle d'un module (modèle de FORGE, cf. § 8.3.3) avec une paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$ , le maillage doit être réadapté pour assurer la convergence de la solution numérique pour des valeurs de pression et de flux de gaz très élevées.

Pour cela, nous avons développé dans le cadre d'une collaboration (2019-2021) avec le LAGA des outils de prétraitement de maillages non structurés tétraédriques d'un alvéole et d'un module basés sur le code GMSH (Boubekeur, Saâdi et Benkhaldoune, 2021). L'objectif de ce développement est nécessaire, d'une part pour réduire le nombre d'éléments du maillage par rapport à un maillage parallélépipédique (écossais), tout en préservant l'orthogonalité des distances entre le centre de chaque élément aux interfaces de ses éléments adjacents (approximation de Voronoï), et d'autre part pour identifier les différences entre ces deux types de maillage en termes de calcul de pression et de flux de gaz. Des outils de posttraitement des résultats de calcul obtenus par la plateforme TOUGH ont également été développés dans ce cadre.

Ce projet se poursuit sur une durée de deux ans (2022-2024) afin d'améliorer la méthode numérique VF actuellement implémentée dans TOUGH, qui ne permet pas de traiter le problème tensoriel d'anisotropie de l'écoulement diphasique liquide-gaz. Pour cela, un nouveau schéma numérique sera désigné et implémenté dans TOUGH comme proposé par exemple par Arnaldsson et al. (2014) pour le cas 2D. En effet, ces derniers ont utilisé un schéma numérique presque identique à la méthode de volume de contrôle de type MPFA (*multi-point flux-approximation*) développée par différents groupes de chercheurs, tels que Aavatsmark et al. (1994), Edwards et Rogers (1994), Verma et Aziz (1997). Ces méthodes sont basées sur l'idée d'obtenir des approximations du gradient de pression 2D, qui est multiplié par la suite par un tenseur de perméabilité afin d'approximer les flux, en considérant un espace 2D adéquat des éléments triangulaires.

L'objectif de l'étude est de pouvoir généraliser cette méthode pour simuler des écoulements multiphasiques 3D et permettre de définir l'anisotropie dans toute direction du domaine étudié.

Le benchmark proposé dans EURAD WP-GAS sera ainsi l'occasion de tester des maillages structurés et non structurés ainsi que le nouveau schéma numérique VF qui sera développé en considérant les méthodes PCM et SGM, développées pour une paramétrisation  $P_{c,e} \neq 0$  (modèle VGMPE, cf. chapitre (6)). En outre, il sera important de développer une méthodologie pratique permettant de choisir des tailles de volumes de contrôle compatibles avec un nombre de Péclet maximal pour les gaz.

La Figure 10-3 et la Figure 10-4 montrent, les exemples de maillages, non structuré prismatique et structuré parallélépipédique, de la géométrie d'un alvéole 3D isolé, respectivement, qui seront testés dans le cadre de ce projet avant d'étendre leur application à l'échelle d'un module à plusieurs d'alvéoles.

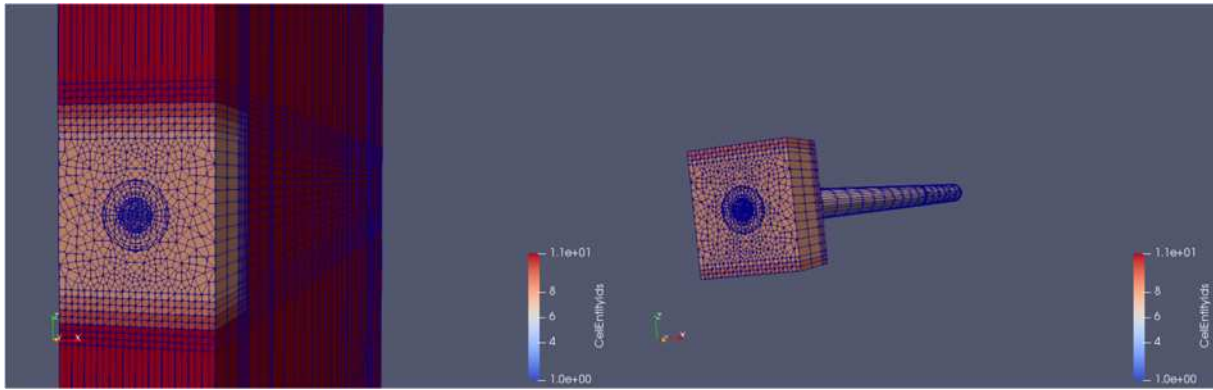


Figure 10-3 – Visualisation du maillage de Delaunay non structuré (prismatique) d'un alvéole isolé au sein du COx.

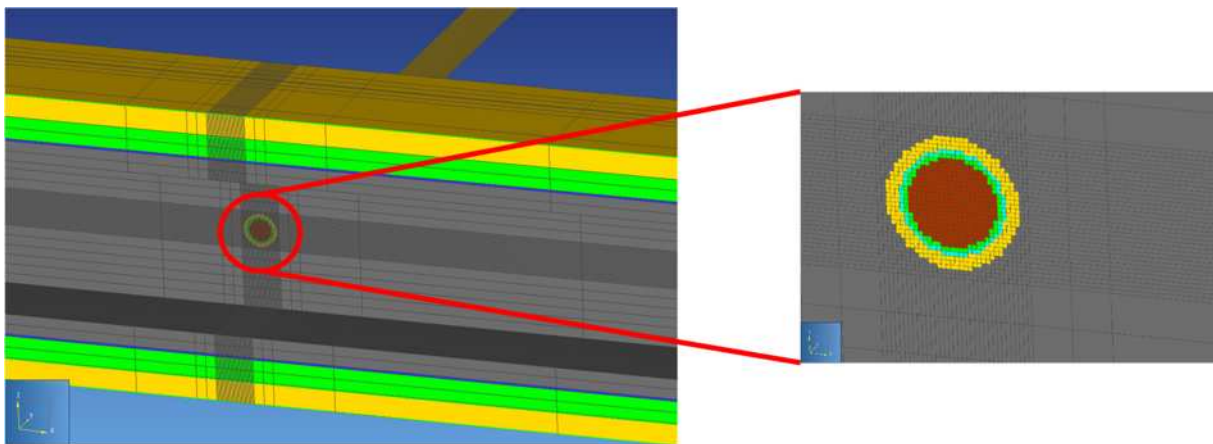


Figure 10-4 – Visualisation du maillage structuré (parallélépipédique) d'un alvéole isolé au sein du COx.

## 10.2 Projet de la thèse 2021-2024 – Evaluation des incertitudes dues aux hétérogénéités spatiales et aux paramètres inconnus dans les modèles couplés hydromécaniques de migration de H<sub>2</sub> au sein d'une installation de stockage géologique profond de déchets radioactifs

On ne peut pas se surpasser de l'étude du problème de l'impact du gaz sur la microfissuration et/ou de la fracturation hydraulique du COx et des barrières ouvragées, du problème du gonflement de la bentonite considérée pour les scellements horizontaux des galeries (Figure 8-6a) et les scellements verticaux et inclinés des liaisons surface-fond (puits et descenderies, Figure 8-6b), du problème d'auto-cicatrisation de l'EDZ... En effet, les problèmes hydromécaniques sont omniprésents que ce soit durant la phase d'exploitation ou durant la phase de post-fermeture de l'installation. Ces phénomènes sont également étudiés dans le cadre du projet EURAD (WP6 GAS, Task2-4) et du projet VSEAL.

Par ailleurs, on ne peut pas négliger les incertitudes dues à l'insuffisance des données expérimentales, aux sous-modèles équationnels incomplètement formulés ou difficiles à paramétrer, aux hétérogénéités de la roche hôte saine (COx) et les EDZs observées aux différentes échelles (forages, alvéole, galerie) ...etc. Leur prise en compte est incontournable pour évaluer les incertitudes des réponses de modèles de migration de gaz dans le stockage. Les études actuellement menées dans le cadre du projet EURAD, WP10 UMAN (*Understanding of uncertainty, risk and safety*; Göbel et al., 2022), ont pour but de raffiner les méthodes d'analyse de sensibilité et d'incertitudes et de développer un réseau de plusieurs acteurs pour la gestion des incertitudes dans les modèles d'écoulement et de transport dans un site de stockage géologique profond de déchets radioactifs.

Le projet de thèse proposé, qui a débuté en 2021, a pour objectif d'étudier ces deux volets (aspects hydromécanique et incertitudes), dans la continuité des travaux réalisés dans le cadre de la thèse d'Amri (2021) et

présentés également dans les chapitres (6) et (7). L'étude ne vise pas *a priori* de modéliser tous les phénomènes hydromécaniques qu'induisent les gaz au sein du stockage, mais présente l'intérêt d'introduire des phénomènes physiques pertinents (pression d'entrée et hystérésis) dans les couplages hydromécaniques élastiques pour étudier l'impact des interfaces modifiées mécaniquement (bentonite-EDZ, bentonite-CO<sub>x</sub>, béton-CO<sub>x</sub>...) sur le transport du gaz à des échelles spatiales très importantes (e.g. module ou site). Ceci-dit l'étude à cette échelle ne peut pas être déterministe puisque les effets des hétérogénéités du CO<sub>x</sub> et/ou des fractures des EDZs, et les effets des incertitudes sur les paramètres inconnus des modèles ne peuvent pas être négligés.

Ces deux volets de recherche seront développés en collaboration avec l'IMFT, ils sont étayés dans les sous-sections qui suivent.

### 10.2.1 Couplage hydromécanique (HM) élastique avec rétroactions

L'étude du comportement hydromécanique (HM) des interfaces sera réalisée en couplant un modèle élastique linéaire simplifié (i.e. faibles perturbations dans un système thermo-poro-élastique) avec le modèle diphasique liquide-gaz en milieu poreux. Ce couplage nécessite l'ajout d'une équation supplémentaire, résultant de la combinaison de l'équation de l'équilibre statique avec les lois de contrainte-déformation de Hooke (e.g., Rutqvist, 2011 ; Xiong et al., 2013), au système d'EDPs habituellement considéré dans le code TOUGH2-MP pour les transferts des gaz ; Ce qui mène à un développement conséquent au niveau du codage informatique et oblige sa vérification numérique et sa validation expérimentale.

Dans un premier temps, un couplage HM de type Biot sera repris dans le cas d'un milieu poreux totalement saturé en eau. Ensuite, un nouveau modèle basé sur les travaux de Coussy (1991) sera proposé pour le couplage HM en écoulements diphasiques liquide-gaz. Pour réaliser ce couplage l'étude se basera sur les recherches développées par l'IMFT sur la modélisation 3D des écoulements en milieu poreux non-saturés déformables (Ababou et al., 2011 ; Cañamón et al., 2019). En effet, ces derniers ont développé un modèle d'écoulement monophasique 3D dans des milieux poreux fracturés et déformables, saturés en eau, à travers l'utilisation de techniques d'homogénéisation, qu'ils ont implémenté et résolu numériquement dans le logiciel COMSOL-Multiphysics. L'objectif étant de généraliser ce développement pour des écoulements en milieux poreux diphasiques, éventuellement fracturés (e.g., EDZ), de l'implémenter sous une plateforme adéquate, et de l'appliquer sur des cas tests pour une vérification numérique. Il est également envisageable que cette étude soit appuyée sur d'autres plateformes logicielles similaires disponibles à l'heure actuelle pour formuler et résoudre des systèmes d'EDP multi-physiques : la plate-forme logicielle OpenFoam (programmée en C++) et la plate-forme logicielle FEniCS (programmée en Python).

Dans un second temps, les tests auxiliaires seront implémentés dans le code TOUGH2-MP une fois le modèle hydromécanique est disponible.

Enfin, le modèle hydrodynamique développé sera validé par des données issues d'expérimentations d'étude de scellements, qui sont soit publiées dans la littérature ou en cours d'exploitation dans le cadre de projets VSEAL et EURAD ; puis appliqué pour des simulations à l'échelle de l'alvéole et d'un module de stockage de déchets HA.

### 10.2.2 Etude des incertitudes dans les modèles

S'agissant par ailleurs du problème de traitement des hétérogénéités et d'application des outils de propagation d'incertitudes sur les paramètres des modèles de transferts en milieu poreux diphasique, l'étude sera basée sur les travaux de recherche de l'IMFT sur le développement des approches stochastiques pour la modélisation des hétérogénéités (champs aléatoires) et des méthodes de propagation des incertitudes probabilistes ou en logique floue (Ababou, 2021). Les méthodes probabilistes de propagation d'incertitudes mises en œuvre doivent prendre en compte le cas d'études de sensibilité mettant en jeu plusieurs paramètres dépendants (Ababou, 2008).

A titre d'exemple, afin de contourner le problème d'insuffisance de données expérimentales pour l'optimisation des paramètres des modèles décrivant certains phénomènes physiques (e.g., paramètres de propriétés hydrodynamiques, coefficients hydromécaniques de la roche, de l'EDZ, et des matériaux de scellement...), les incertitudes sur ces paramètres seront représentées soit de façon probabiliste comme proposé dans Kfoury et al.

(2004), soit par d'autres méthodes empruntant à la théorie des variables floues comme proposé dans Bagtzoglou et al. (2009).

Afin de prendre en compte la variabilité spatiale de la roche hôte saine (COx) et des EDZs dans les calculs à des échelles spatiales importantes (module ou site), deux méthodes pourront être testées : la première, de type continuum, qui consiste à supposer une structure de champ aléatoire auto-corrélé caractérisée par un variogramme qui définit la structure spatiale ainsi que le degré d'hétérogénéité; et la seconde qui consiste à générer explicitement les fissures et les fractures dans les milieux de type EDZ (Ababou et al., 2011; Cañamón et al., 2019).

Des études préliminaires ont été réalisées avec le code iTOUGH2 dans le cadre d'un stage M2 (Kakachi, 2020). Ce code ne considère que trois types de distributions statistiques des paramètres (normale, log-normale, uniforme) et deux méthodes d'échantillonnage pour des simulations directes de type FOSM (*First-Order-Second-Moment*), et Monte-Carlo et ses variantes pour une corrélation entre les paramètres (*Hypercube Latin Sampling HLS*, ou *Empirical Orthogonal Functions EOF*). Un exemple d'application de ces distributions et méthodes d'échantillonnage est illustré dans la Figure 10-5 pour le cas d'un modèle de transport de H<sub>2</sub> dans une galerie remblayée, entourée par une EDZ, le tout étant imbibé dans un domaine du COx de volume 10 × 10 × 10 m<sup>3</sup>, où l'hydrogène est injecté à l'une de ses deux extrémités, sachant que l'autre extrémité est à pression hydrostatique (Figure 10-5a). La Figure 10-5c montre toutes les 100 évolutions temporelles MC possibles de flux de H<sub>2</sub> simulées par iTOUGH2/EOS5 en considérant un scénario avec distribution uniforme de la porosité du remblai et des distributions Log-normales de la perméabilité pour le remblai, le COx et l'EDZ. L'évolution du flux moyen calculé par la méthode FOSM se situe entre les courbes correspondant aux quantiles à 5 et 95 % obtenus par la méthode MC-HLS.

L'objectif de l'étude sera de développer des scripts (e.g., python) pour la plateforme TOUGH2-MP afin de tester ces types de distributions et méthodes d'échantillonnage et étudier la réponse des modèles de migration du gaz à l'échelle d'un module ou d'un site de stockage simplifié à travers des études de sensibilité par rapport à un ou plusieurs paramètres mal connus : pression d'entrée de gaz, perméabilité intrinsèque, terme source d'hydrogène, coefficients hydromécaniques...

D'autres types de distributions et méthodes de propagation d'incertitudes seront également testées comme les méthodes par **échantillonnage préférentiel** (*Importance Sampling*) pour des simulations directes, par **construction de méta-modèles** ou par des méthodes **quasi-analytiques** (Ababou, 2008 ; Kfoury et al., 2004), cela afin de pouvoir traiter des problèmes de modélisation complexes sur des échelles de temps très longues (100 mille à 1 million d'années) avec des temps CPU raisonnables.

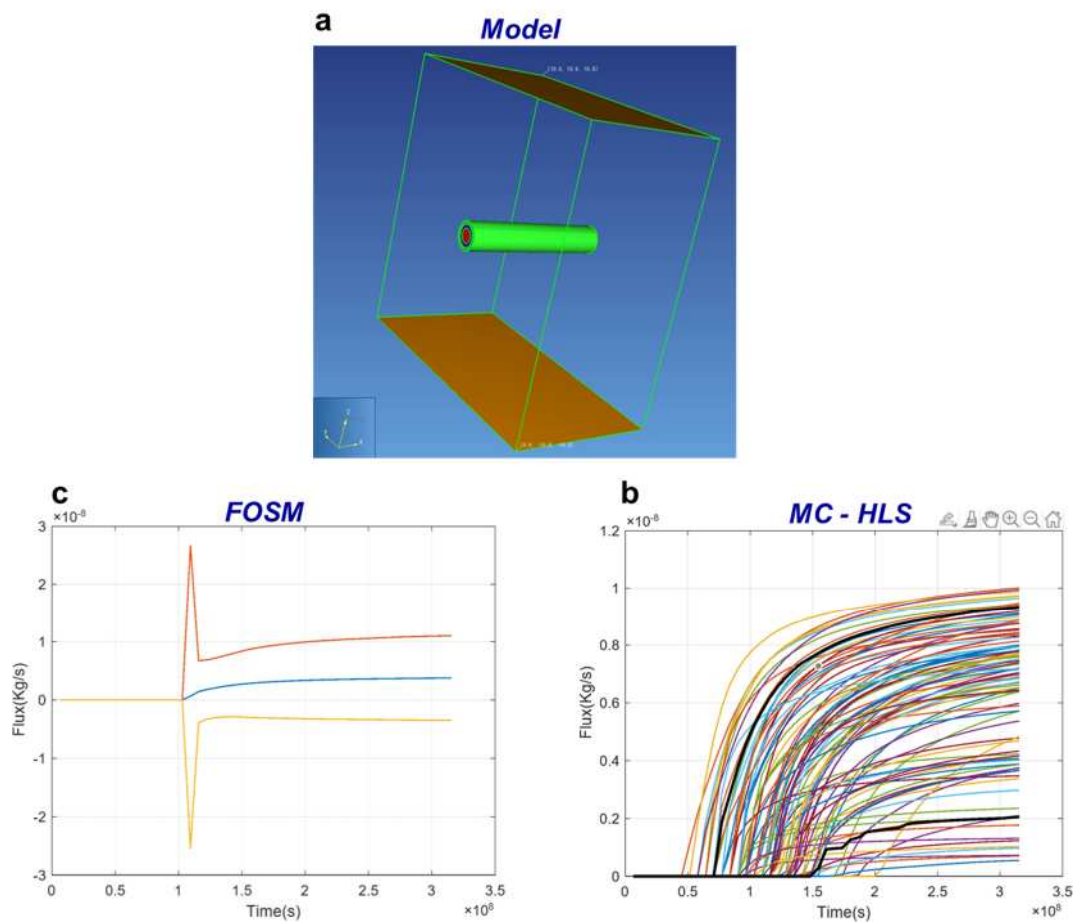


Figure 10-5 – Simulation de l'évolution dans le temps de flux du H<sub>2</sub> au voisinage de l'extrémité libre de la galerie (à pression hydrostatique) sur une durée de 10 ans : a/ Modèle de galerie remblayée de 1 m de diamètre et de 10 m de longueur entourée par une EDZ d'épaisseur de 0.5 m au sein du COx (10 × 10 × 10 m<sup>3</sup>) ; b/ Méthode FOSM (perturbation de 5 %) ; c/ Méthode MC-HLS (100 simulations). Les quantiles à 5 et 95 % sont présentés en trait noir épais. Scénario avec distribution uniforme de la porosité du remblai et distributions Log-normales de la perméabilité pour le remblai, le COx et l'EDZ.

## 10.3 Divers

### 10.3.1 Dissolution/volatilisation de l'hydrogène

Jusqu'à présent tous les modèles de migration de H<sub>2</sub> en milieu poreux argileux utilisent la loi de Henry pour décrire l'équilibre dissolution/volatilisation de l'hydrogène dans le système diphasique eau-air. Toutefois, Lassin et al. (2011) et Dymitrowska et al. (2015) ont montré que les effets de la pression capillaire et de la température sur cet équilibre ne sont pas négligeables et peuvent atteindre ~ 10%. Pour cela, ils ont proposé une modification de la loi de Henry pour prendre en compte ces effets. Il serait judicieux de tester ces effets sur les modèles de migration du gaz aux différentes échelles spatiales.

### 10.3.2 Présence initiale de l'air et étude de transport des radionucléides

Comme décrit dans la section 8, le code TOUGH2/EOS5 a été utilisé pour traiter le transport de deux phases (liquide-gaz) et deux composants (eau-H<sub>2</sub>) en milieu poreux. Toutefois, les modèles à base de ce code ne permettent pas de mieux traiter les conditions initiales et aux limites. En effet, la présence initiale de l'air pourrait modifier le taux de diffusion de l'hydrogène dans la phase gazeuse préexistante (du fait du changement des équilibres thermodynamiques aux temps initiaux). Ainsi, l'ajout d'une équation à dérivées partielles (EDP) de transport du composant air (principalement l'azote et l'oxygène), en plus de celles de l'hydrogène et l'eau dans le



mélange gazeux, est nécessaire en prenant en compte la diffusion binaire de l'hydrogène dans l'air (e.g., Pruess et al., 1999).

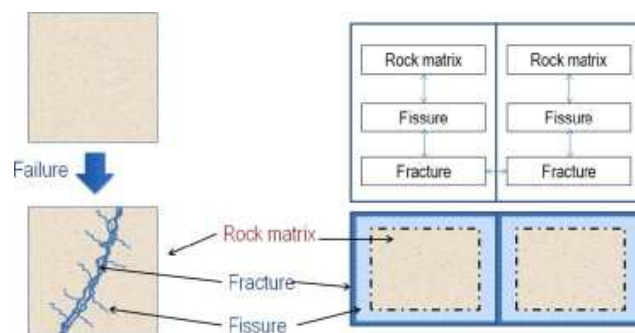
Pour étudier ce problème ainsi que celui de transport des radionucléides, le code TOUGH2/EOS7R apparaît le plus adapté (Kaempfer et al., 2014).

### 10.3.3 Poro-élasto-plasticité, microfissuration et fracturation hydraulique

Comme décrit dans la section 8.3.3 (modèle de FORGE pour un module de stockage à 100 alvéoles HA), la microfissuration et la fracturation hydraulique du COx sont susceptibles de se manifester pour des pressions hydrauliques du gaz supérieures à la contrainte verticale naturelle de 12.3 MPa du COx préconisée par l'Andra (Andra, 2005). Leur prise en compte permettra d'évaluer la propagation des fissures et des fractures dans la roche saine COx durant les phases de génération de gaz dans le stockage. En revanche, leur modélisation est très complexe puisqu'elle nécessite d'introduire les déformations élasto-plastiques des différents matériaux constituant le stockage pour des écoulements multiphasiques.

Pour réaliser une telle modélisation, il serait intéressant de suivre par exemple l'approche adoptée par Kim et Moridis (2013). En effet, ces auteurs ont développé un code de la fracturation hydraulique (*T+M simulator*), résultant d'un couplage du code d'écoulement multiphasique multi-composants TOUGH+RealGasH2O avec un code en éléments finis de géomécanique (ROCMECH). Leur principe de développement des microfissures et des fractures à l'échelle du volume élémentaire représentatif est décrit dans la Figure 10-6.

La modélisation du développement de la fracture verticale mettant à jour continuellement les conditions au bord et la connectivité des données est basée sur une méthode en éléments finis pour la géomécanique. Le simulateur T+M peut modéliser le développement de la fracturation initiale durant les opérations de la fracturation hydraulique, après laquelle la description du domaine change d'un seul continuum à un double ou à de multiples continua afin de modéliser rigoureusement à la fois l'écoulement et la géomécanique pour des systèmes fracture-matrice de la roche. Ce simulateur fournit deux façons de coupler l'écoulement de fluide et le transfert de chaleur à la géomécanique en tenant compte des déformations thermo-poro-élasto-plastiques. Il permet également de traiter explicitement la non-linéarité de la perméabilité et des paramètres géomécaniques, et de suivre dynamiquement les changements dans les fractures et le volume de pore. De même, le code prend en compte complètement la fuite de fluide de fracturation dans toutes les directions durant la fracturation hydraulique.



**Figure 10-6** – A gauche : digramme schématique représentant le système fracture–matrice après rupture. A droite : digramme conceptuel du modèle MINC (*multiple interacting continuum*), comme un exemple du modèle à multiple porosités. Dans le modèle MINC, le fluide s'écoule à travers le matériau le plus perméable (i.e., fracture) dans le domaine, alors que les autres matériaux emmagasinent et échangent le fluide avec le matériau le plus perméable (d'après Kim et Moridis, 2013).

Enfin, le développement d'une telle approche hydromécanique se complexifie par la nécessité de prendre en compte les variations des propriétés hydrodynamiques du modèle VGMPE avec hystérésis dans tous les matériaux poreux constituant le stockage. Pour cela, le développement de modèles de paramètres de forme et d'échelle des courbes représentant ces propriétés en fonction de la porosité et des contraintes de déformations effectives sera nécessaire.



## 11. Perspectives sur les projets en cours sur la thématique « Radon »

Actuellement, plusieurs études se poursuivent en collaboration avec les chercheurs du service SEREN de l'IRSN, le BERAD (Bureau d'étude et d'expertise du Radon) en particulier, pour réaliser des études complémentaires de transport du radon depuis les sources anthropiques du radium au voisinage d'un bâtiment vers ce dernier ainsi que depuis les vides souterrains des sites karstiques vers le sol.

Certaines études présentées dans les chapitres (3) et (4) de la partie I, réalisées dans le cadre du plan national d'action 2016-2019 pour la gestion du risque lié au radon, se poursuivent jusqu'en 2022 dans le cadre d'une collaboration avec le **CSTB** et le **DGPR**, et jusqu'en 2025 dans le cadre du projet **RadoNorm**<sup>9</sup> (*Towards effective radiation protection based on improved scientific evidence and social considerations - focus on radon and NORM*).

### 11.1 Evaluation de l'influence potentielle de sources anthropiques (IRSN-CSTB-DGPR)

La collaboration avec **CSTB** et **DGPR** touche à sa fin en 2022, elle a permis de réaliser des scénarios théoriques par le code T2Rn pour estimer la part de l'influence potentielle de sources anthropiques sur les niveaux de radon dans les bâtiments pour des situations types pouvant être rencontrées dans le contexte de la réutilisation de stériles/résidus issus de l'exploitation de minerai d'uranium, et celui de la construction d'un bâtiment sur un stockage de déchets radifères ou de résidus miniers suite à une perte de la mémoire de ces stockages (e.g., Saâdi et al., 2017; 2021).

Dans le cadre de cette étude, le choix a porté sur une typologie du bâtiment avec dallage indépendant : présence d'une couche de gravier sous la dalle et d'une fissure périphérique de retrait (Figure 11-1). Afin d'évaluer et quantifier l'influence du milieu sous-jacent du bâtiment sur les concentrations en radon dans le bâtiment, trois scénarios ont été proposés: (i) un **scénario de référence** (Figure 11-2, à gauche), avec le bâtiment construit sur un sol naturel (configuration sol-arène-granite; **contexte breton**), en considérant une étude de sensibilité sur les trois paramètres : épaisseur du sol, perméabilité du sol à l'air, et dépression du bâtiment; (ii) un scénario identique au premier (**scénario#1**, Figure 11-2, au centre) mais avec présence d'une source anthropique située à six différentes positions par rapport au centre du bâtiment (i.e., profondeur verticale et éloignement latéral). Pour ce scénario, l'étude de sensibilité sur le volume et la position de la source anthropique (profondeur et éloignement par rapport au bâtiment) a été réalisée; et enfin (iii) un troisième scénario (**scénario#2**, Figure 11-2, à droite) simulant des situations hypothétiques de présence d'un bâtiment sur un stockage de résidus ou une verse à stériles (source anthropique uniforme; configuration sol-stériles-RMU), en considérant des études de sensibilité par rapport à la perméabilité à l'air du système sol-stériles-résidus sous-jacent du bâtiment, aux épaisseurs de la couche de stériles et de sol recouvrant les résidus, et à la teneur en radium des résidus, et d'autre part par rapport à la perméabilité à l'air de l'enveloppe du bâtiment et sa répartition, le type de système de ventilation, les géométries caractéristiques du bâtiment, pour des conditions météorologiques particulières.

Le **scénario de référence** a permis d'identifier l'importance des flux convectifs par rapport aux flux diffusifs du radon transportés à l'interface sol-bâtiment pour une combinaison des valeurs élevées de dépression et de la perméabilité du sol à l'air, d'une part, et que la convection peut être négligée quel que soit la dépression pour une perméabilité faible inférieure à  $1 \times 10^{-12} \text{ m}^2$ , d'autre part.

Le **scénario#1** a permis d'étudier l'impact de la position verticale et latérale de la source anthropique par rapport au centre du bâtiment ainsi que son volume sur les flux à l'interface sol/bâtiment et la concentration en radon au sein du bâtiment. Il a pu répondre partiellement aux questions soulevées dans le cadre de la réutilisation

<sup>9</sup> Le projet **RadoNorm** (2020-2025) vise à améliorer la protection de la population face à l'exposition au radon et aux matériaux contenant naturellement des éléments radioactifs, appelés NORM. Les NORM (pour « *natural occurring radioactive materials* ») sont des matériaux présentant un niveau accru de radioactivité naturelle et utilisés ou rejetés par diverses activités industrielles, comme le BTP, les extractions minières, la production de pétrole, de gaz et d'énergie géothermique, les productions métallurgiques, et bien d'autre. Ces matériaux présentent parfois de hauts niveaux de radium qui, lors de sa désintégration, produit du radon. Ce projet, piloté par l'Office fédéral de Radioprotection allemand (BfS), est financé par la commission européenne dans le cadre de l'appel à projet Horizon 2020 et regroupe 56 partenaires issus de 22 pays.

des stériles miniers dans le domaine public, en particulier l'identification des positions des sources anthropiques amenant à des calculs de flux d'exhalation du radon les plus faibles (source en surface à une position latérale de 12,5m) et les plus élevés (profondeur verticale et éloignement latéral nuls), et leur comparaison avec ceux calculés pour un sol naturel. De même, le flux d'exhalation à l'interface sol-bâtiment calculé en présence d'une source anthropique ponctuelle augmente significativement avec la taille de son volume par rapport à celui calculé pour un sol naturel.

Pour le **scénario#2**, les résultats obtenus ont permis d'illustrer l'influence de la variation de l'épaisseur des couches de sol et de stériles de la couverture, ainsi que de la teneur en radium des résidus sur la concentration en radon dans le bâtiment. En outre, l'étude de l'influence des caractéristiques propres du bâtiment sur les concentrations en radon a soulevé les points suivants :

- Le dallage indépendant est la typologie de soubassement qui favorise plus l'entrée de radon dans le bâtiment;
- Plus le bâtiment est étanche, plus il est favorable à l'accumulation du radon dans le bâtiment ;
- La VMC par extraction est plus efficace à réduire la concentration intérieure en radon comparativement à la ventilation naturelle ;
- Une dégradation de la performance du système de ventilation (dégradation de 100 %) peut augmenter significativement les concentrations intérieures en radon.

Les études se poursuivent actuellement pour construire des abaques à partir des scénarios#1,2 proposés dans le cas d'un bâtiment avec dallage indépendant dans un contexte de sol et de climat breton. Toutefois, pour que ces abaques puissent être appliquées à différentes régions de France, cette étude doit être généralisée pour différents types du système poreux sol-régolithe-roche sous-jacent du bâtiment, différentes typologies de sous-bassement du bâtiment, différentes conditions climatiques, différents types de stockage de RMU... Cette étude se complexifie si d'autres paramètres comme les coefficients de diffusion et d'émanation du radon, les porosités des systèmes poreux... doivent être incorporés dans ces abaques.

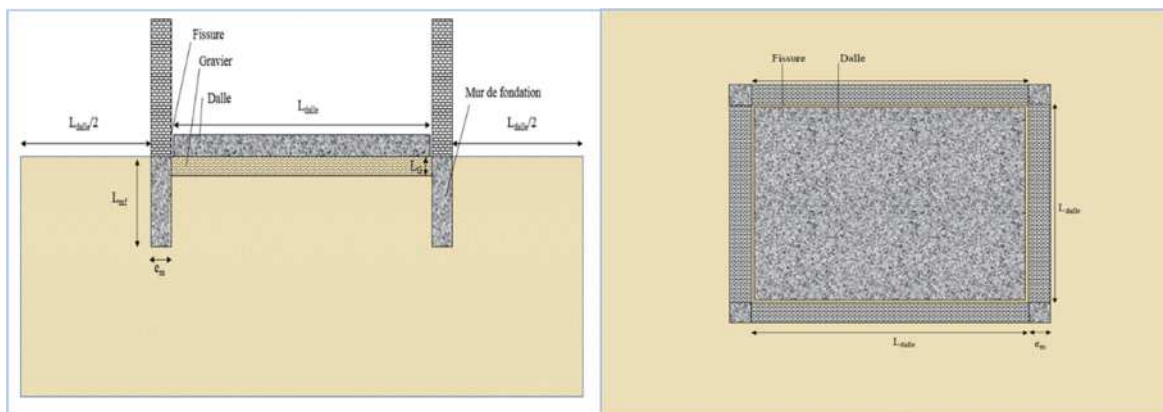


Figure 11-1 – Typologie du soubassement du bâtiment choisie pour l'étude des scénarios.

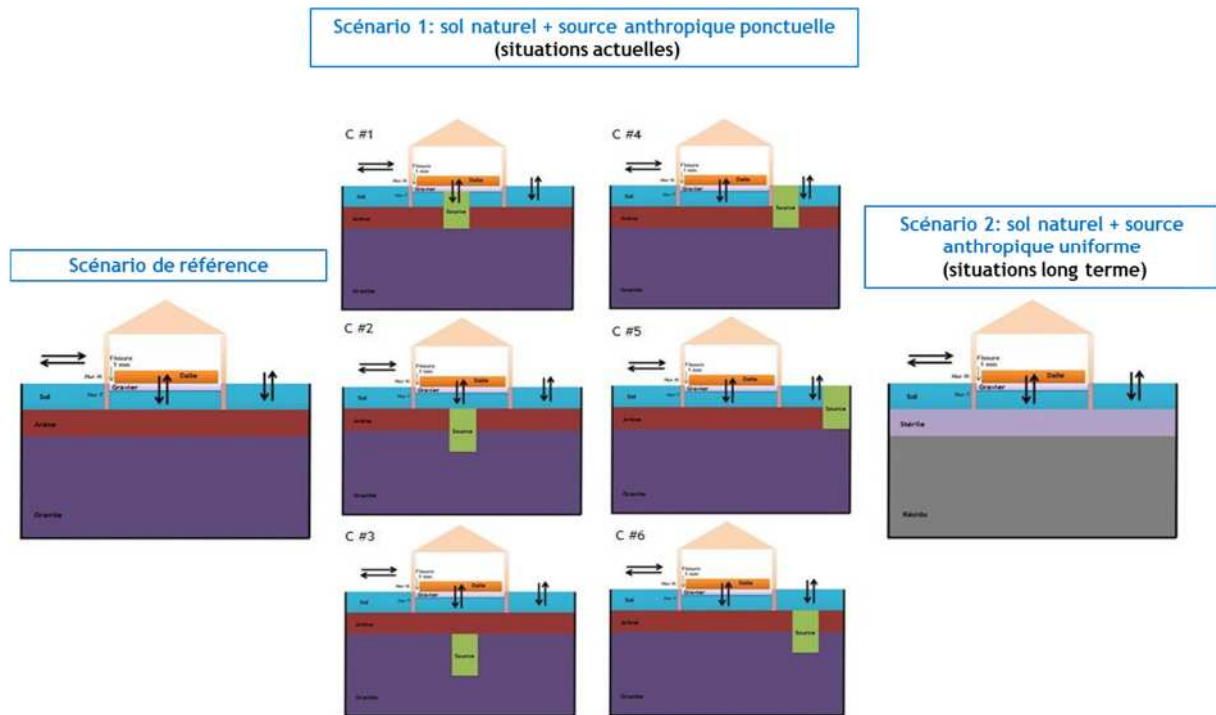


Figure 11-2 – Scénario de référence (à gauche), Scénario#1 d'étude de l'impact de la position de la source anthropique par rapport au bâtiment (centre), et Scénario#2 d'étude de l'impact d'une source anthropique uniforme au-dessous d'un bâtiment (configuration d'un site de stockage de RMU couvert par de stériles).

Ce développement d'abaques peut apporter quelques éléments de réponse aux interrogations précitées, mais il demeure trop théorique et très incertain vis-à-vis de la (des) position(s) réelle(s) des sources anthropiques présentes au voisinage d'un bâtiment. A mon avis, il serait judicieux de réaliser plutôt les études d'un point de vue stochastique. En effet, *in situ* l'hétérogénéité du sol et du terme source anthropique à teneur en radium très élevée au voisinage d'un bâtiment ne peut pas être traitée uniquement d'un point de vue déterministe. En outre, pour mieux étudier le problème de sensibilité par rapport au grand nombre de paramètres incertains, il serait souhaitable d'introduire les méthodes de propagation d'incertitudes. L'utilisation du code T2Rn, incluant ces méthodes, permettra de réaliser une telle étude afin d'apporter des solutions quant à la quantification des incertitudes sur les flux de radon entrant un bâtiment, et par conséquent celles sur les concentrations en radon au sein d'un bâtiment.

## 11.2 Etude de l'influence des karsts sur le potentiel radon des terrains (projet

### RadoNorm)

Dans le cadre du projet **RadoNorm**, en particulier le **WP 2** (caractérisation détaillée de l'exposition au radon et aux NORM), nos études seront consacrées, d'une part, au développement de modèles prédictifs de transport du radon à différentes échelles spatiales depuis le sol vers l'atmosphère et les bâtiments, et d'autre part, à l'amélioration des techniques de mesure de la concentration du radon et de ses descendants au sein des bâtiments afin d'appréhender tous les scénarios d'exposition possible.

Afin de confirmer et compléter les résultats obtenus précédemment sur une zone pilote située dans le département du Doubs (réseau karstique de Fourbanne, cf. chapitre (4)), des investigations complémentaires seront réalisées dans le cadre du projet **RadoNorm**. Ces investigations vont comporter de nouvelles études de terrain afin de compléter la connaissance sur les relations entre les activités volumiques du radon dans l'air du sol et les teneurs en radium-226 des sols en milieu calcaire. De plus, une modélisation par le code T2Rn plus poussée du secteur d'étude sera réalisée pour raffiner les résultats antérieurs obtenus dans la section 4.5, tout en réduisant le nombre d'approximations faites précédemment, en particulier la prise en compte de propriétés physiques et d'émanation des sols et des roches mesurées, l'introduction de nouveaux processus de transfert (e.g., fractures de la roche, faille) et la géométrie exacte du système karstique surfacique (doline), ainsi que des périodes climatiques variées,

afin d'évaluer l'impact de la variabilité atmosphérique (pluviométrie, pression...). Cette modélisation s'appuiera également sur les méthodes performantes de l'inversion numérique ou de propagation des incertitudes que propose T2Rn, pour optimiser certains paramètres physiques et hydrodynamiques inconnus des sols et des roches, si le problème mathématique est bien posé et identifiable, ou, pour réaliser tout simplement des études de sensibilité sur ces paramètres.

Enfin, il serait intéressant d'étendre l'étude réalisée à l'échelle de la zone pilote à celle d'un grand bassin karstique en introduisant plutôt les caractéristiques du réseau karstique du bassin et les mécanismes hydrologiques de surface et souterrains.

### 11.3 Divers (hystérésis et déformations du RMU ; potentiel radon du sol-bâtiment)

A part les études décrites ci-dessus, la recherche doit également être poussée vers d'autres études, qui à mon avis, sont essentielles pour améliorer la gestion du risque lié au radon, et doivent s'inscrire sur d'autres projets ambitieux et novatrices :

- L'**hystérésis** et les **déformations mécaniques** (gonflement et fissuration) que subit le RMU dans un site de stockage de surface, à la suite du changement climatique, jouent un rôle primordial dans l'explication des flux d'exhalation du radon transitoires observés *in situ* (cf. chapitre (2)). Leur prise en compte dans les modèles de migration du radon dans le stockage des RMU est nécessaire pour améliorer la simulation de ces flux. Les études effectuées sur l'hystérésis dans le chapitre (7) et les études de recherche proposées dans le cadre du projet de thèse 2021-2024 (cf. § 10.2) seront d'une énorme utilité pour aborder ce sujet complexe ;
- L'amélioration de la cartographie du **potentiel radon des sols et des bâtiments** en France nécessite le développement de modèles analytiques pertinents prenant en compte les différents cofacteurs à l'origine des concentrations en radon mesurés dans les sols et dans les bâtiments. L'étude réalisée par Menard et Saâdi (2017) a permis de recenser un ensemble de modèles analytiques de calcul du potentiel radon du sol développés par différents chercheurs à l'échelle internationale et de comparer ces modèles sur une grande base de données de mesures du radon dans les sols de différentes régions du territoire Français. En revanche, reste encore à valider et/ou améliorer ces modèles analytiques, ou, à développer de nouveaux modèles analytiques avec de nouveaux cofacteurs, pour qu'ils soient pertinemment appliqués aux sites Français. Les études précédentes réalisées avec le code T2Rn pour simuler les phénomènes transitoires dans le continuum cavité-roche-sol-bâtiment suffisent largement pour appréhender cette tâche.

## 12. Autres problèmes scientifiques non encore résolus

### — Interfaces milieu libre/milieu poreux

Comme on a pu le constater dans les chapitres (3), (4), (6) et (8), le problème de la modélisation des transferts diphasiques multi-composants à l'interface milieu poreux / milieu libre s'est présenté plusieurs fois. Des approximations ou astuces numériques (e.g. homogénéisation) ont été proposées pour remédier à ce problème, et ont permis de simuler remarquablement les phénomènes physiques observés avec peu d'incertitudes, tout en évitant le problème de convergence de la solution numérique d'EDPs fortement non linéaires et couplées. Si l'accord entre le modèle et l'expérience était possible dans le cadre des problèmes traités dans les sections 3.2 et 4.5, c'est parce que les vitesses d'écoulements étudiés étaient simulées pour des nombres de Reynolds faibles (écoulement laminaire créé par des gradients de pression faibles) et que les milieux libres modélisés étaient volumineux (e.g. cave d'une habitation, cavité karstique). En effet, nous avons vu dans l'exemple de transport du radon à l'interface roche non-saturée – cavité karstique qu'une approche simple Darcienne (cf. § 4.5.1) suffirait pour bien simuler le transport ascendant du radon vers la surface de la doline, pourvu que la perméabilité équivalente de la cavité soit bien calibrée et qu'une zone de transition graduelle et fine entre l'interface et la roche (à porosité et perméabilité variables) soit prise en compte dans le modèle. Dans la mesure où les conditions d'écoulements favorisent des nombres de Reynolds très élevés, ce qui est assez souvent le cas pour d'autres types

de configurations (e.g. Chandesris, 2006), il serait judicieux d'étudier minutieusement les problèmes d'écoulement au voisinage de ce type d'interfaces.

Si les approches **mono-domaine** (e.g., Chandesris, 2006; Jamet et al., 2009; Valdés-Parada et Lasseux, 2021) et les approches à **deux domaines** (e.g., Mosthaf et al., 2011; Baber et al., 2012) ont pu traiter, respectivement, les problèmes d'écoulement monophasique en liquide ou en gaz dans le système global poreux-libre, et les problèmes d'écoulement diphasique en milieu poreux - monophasique en gaz en milieu libre, leur généralisation pour des écoulements diphasiques et de transport multi-composants dans les deux milieux (libre et poreux) pour différentes conditions initiales et aux limites reste encore un vrai challenge à relever.

#### — *Changement d'échelle micro-macro (Upscaling)*

En parallèle aux études de recherche menées à l'échelle **macroscopique** des transferts (VER : Volume élémentaire représentatif) au sein du SEDRE, d'autres études de recherche se développent actuellement (au sein du LETIS) pour étudier les transferts de gaz aux échelles **micro-** et **mésoscopique**. Ces travaux ont pour objectif de reconstruire en 3D l'espace poral d'un solide opaque avec des résolutions submicroniques, via des méthodes d'imagerie 3D (tomographie de rayons X, FIB-SEM), afin de simuler les écoulements multiphasiques et d'étudier l'effet du confinement du système « eau-gaz » dans l'espace poral.

Pour étudier les écoulements dilatants dans les espaces poreux reconstruits (présentant des topologies complexes), des méthodes mésoscopiques, telles que la méthode SPH (*Smoothed Particles Hydrodynamics*) et la méthode LBM (*Lattice Boltzmann Method*) ont été développées.

En effet, les études des imageries 3D d'argile à opalines associées à la méthode LBM (Dymitrowska et al., 2014 ; Hassine et al., 2017) ont pu démontrer que seul le caractère déformable du milieu poreux pourra expliquer la perméabilité au gaz simulée non nulle de la roche à opalines pour des faibles saturations en gaz (conditions dans un stockage).

Par ailleurs, la modélisation du comportement micromécanique des milieux solides par la méthode SPH (Pazdniakou et Dymitrowska, 2018 ; Deptulski, 2021) a montré que dans les milieux poreux, une stabilisation des effets de bords est nécessaire pour la réussite de cette modélisation, et que cette méthode peut introduire des effets d'élasticité non-locale à faible résolution. De même, des critères d'endommagement énergétiques ont pu être implémentés dans l'objectif de contrôler la propagation de microfissures dans le domaine élastique.

Pour étudier les effets du confinement sur le système eau-gaz de l'espace poral, des progrès importants ont été atteints sur l'interprétation des résultats d'imagerie par reconstitution de manière semi-automatique des structures 3D à partir des coupes 2D importantes disponibles. En parallèle à ces progrès, des études de caractérisation de coefficient de diffusion de solutés en milieu partiellement saturé par les méthodes LBM ont été menées (Genty et al., 2017 ; **projet Needs Mipor**). Elles ont permis d'identifier pour une géométrie de pores similaires, deux régimes de diffusion en fonction du degré de saturation en eau (régimes quadratique et linéaire, à faible et forte saturation, respectivement), et que la loi d'Archie peut induire à des erreurs de l'ordre de 10% sur le coefficient de diffusion effective, si celle-ci est utilisée sur toute la gamme de saturation en eau.

Certes, l'ensemble des études précitées ont permis d'expliquer les phénomènes se passant à l'échelle de pore et qui pourront affecter les phénomènes de transfert à l'échelle macroscopique. Toutefois, la transposition des résultats obtenus à l'échelle microscopique à l'échelle macroscopique des transferts reste encore un challenge à relever. Pour cela, un effort considérable doit être fourni pour étudier ce changement d'échelle micro-macro. En effet, pour appréhender ce problème, deux approches différentes sont possibles :

- ✓ La première correspond aux études décrites précédemment. Elle est qualifiée de méthode par **"homogénéisation numérique"**, et elle consiste à élaborer de nouvelles relations macroscopiques de propriétés hydromécaniques en se basant sur des modèles numériques physiques microscopiques (LBM, SPH). Dans cette approche, on est confronté à deux difficultés principales : i) effectuer des simulations sur un/des

volumes représentatifs pour l'échelle macroscopique ; ii) l'application directe de relations obtenues dans les codes classiques d'écoulement et de transport macroscopiques (basés sur les lois de Darcy et Fick) ;

- ✓ La seconde approche, purement théorique, permet de reconstruire physiquement les équations d'écoulement et de transport macroscopiques à partir d'équations microscopiques (**Navier-Stockes, diffusion moléculaire**) moyennant des techniques d'**homogénéisation** en milieu poreux par exemple. Ces nouvelles équations sont souvent complexes, puisqu'elles introduisent de nouveaux paramètres et variables qu'il faudra les résoudre par des relations de fermeture.

La seconde approche est très intéressante pour mener des études réalistes de changement d'échelle. A mon avis, l'effort doit être misé sur le développement de cette approche malgré les difficultés théoriques et numériques qu'elle introduise. Pour cela, l'élaboration d'un projet de recherche visant des collaborations avec les institutions de recherche compétentes sur le sujet serait nécessaire pour avancer dans nos futures études de transferts des gaz aux différentes échelles spatiales de l'installation.





## Conclusion générale



Les travaux de recherche présentés et synthétisés dans ce manuscrit sont le fruit de l'ensemble des études que j'ai menées sur les transferts des gaz dans des environnements naturels et anthropiques pendant une durée de douze ans à l'IRSN. Ces études s'inscrivent dans deux contextes différents : le transport du radon depuis la géosphère vers l'atmosphère et les bâtiments, et l'hydrogène dans le stockage géologique profond de déchets radioactifs au sein d'une roche argileuse. Deux grandes parties de ce document ont été dédiées à chacune de ces deux thématiques afin de présenter le progrès réalisé dans le domaine de la recherche sur cette dernière décennie, que ce soit de point de vue expérimental ou modélisation, ainsi que la contribution à l'amélioration de la modélisation des phénomènes physiques de transferts des gaz en milieu poreux diphasique. Enfin, une troisième partie a été ajoutée afin de proposer des pistes ayant pour vocation de compléter les lacunes de connaissances qui sont restées pendantes jusqu'aujourd'hui.

La première partie propose une synthèse de travaux complémentaires entre la métrologie radon et la modélisation des transferts du radon depuis le sol ou une cavité souterraine vers l'atmosphère ou vers l'interface sol-bâtiment.

L'étude des phénomènes transitoires complexes de transport du radon observés dans le sol et à sa surface, à l'interface sol-bâtiment et au sein du bâtiment... est restée en standby durant les deux dernières décennies à cause des difficultés de développement de modèles numériques de transport du radon robustes permettant de les expliquer (prendre en compte l'ensemble des propriétés physiques des sols). Certes, la métrologie radon permet d'apporter des explications partielles de ces phénomènes vis-à-vis de quelques cas d'études de sols (i.e. sol naturel-régolithe-roche) et de bâtiments expertisés, mais celle-ci reste incapable devant la multitude des cas à étudier (différents types de sol avec présence de sources anthropiques et de discontinuités hydrologiques comme les macropores dans le sol naturel, les fractures dans la roche, les failles, les cavités...; différentes typologies de bâtiment avec positions inconnues des fissures au sein de sa fondation ; différentes conditions climatiques...) et le nombre de mesures physiques important et coûteux qu'il faudra réaliser pour chaque cas d'étude, si cela est possible. La position inconnue d'une source anthropique en radium-226 au voisinage d'un bâtiment en est un très bon exemple (cf. § 11.1). Sans oublier également l'importance de l'hétérogénéité des propriétés physiques et hydrodynamiques du sol et des roches fracturées, que ce soit, au voisinage d'un bâtiment ou dans un système karstique, qu'il faudra la prendre en compte pour ne pas biaiser les résultats de calcul des flux et de concentration en radon qui pourront être sujets à des incertitudes substantielles.

Le développement de nouveaux codes de calcul de transport du radon en milieu poreux et/ou fracturés diphasique (EOS7Rn et T2Rn, cf. chapitre (1)) a permis de s'affranchir de certaines difficultés pour étudier la nature transitoire des flux et de concentration en radon mesurés dans différentes conditions. L'accord modèle-expérience a été toujours possible en introduisant les mécanismes physiques nécessaires avec une calibration des paramètres inconnus ou difficilement mesurables du modèle (e.g., position et taille de la fissure, taux d'aération d'une cave d'un bâtiment...). Les valeurs de ces paramètres optimisés avaient toujours un sens physique puisqu'elles étaient comparables aux gammes de valeurs mesurées ou déterminées par calibration des modèles dans la littérature. En revanche, l'alimentation des paramètres des modèles à base de ces codes nécessite également de réaliser des mesures physiques complémentaires dans le système sol-roche-cavité et des paramètres du climat (pluviométrie, évapotranspiration...) afin de les valider sur les mesures de flux et de concentration en radon observés (dans ce système et à l'interface sol-bâtiment).

Les résultats importants à retenir sur la problématique de transport du radon depuis la géosphère vers l'atmosphère et l'habitat sont les suivants :

- Pour la problématique de transport transitoire du radon depuis un site de stockage de résidus miniers couverts par des stériles miniers vers l'atmosphère, l'exemple de l'étude de l'expérimentation de la stalle en conditions météorologiques variables en surface a permis de révéler les difficultés pour modéliser les concentrations en radon mesurées au sein de ces deux matériaux ainsi que le flux d'exhalation de radon mesuré à la surface de la couverture. Malgré les améliorations apportées à cette modélisation par une étude de sensibilité du coefficient de diffusion du radon en milieu non saturé, il s'est avéré l'importance de prendre en compte d'autres processus de transfert pour expliquer leurs variations anormales dans le temps. Les phénomènes prépondérants qui permettent d'améliorer grandement ces mesures sont essentiellement le phénomène d'évaporation en surface, la caractérisation des propriétés hydrodynamiques de ces deux matériaux et leur comportement hystérique, et les déformations mécaniques (gonflement et fissuration) que subit le RMU suite à l'alternance de la pluie et de l'évaporation prolongée en surface. L'étude de ces

deux derniers phénomènes dans la grande deuxième partie de ce manuscrit suscite également leur intérêt pour d'autres applications environnementales. Ces trois phénomènes seront d'une énorme utilité pour un meilleur calcul de flux d'exhalation de radon, qui est le paramètre clé dans les modèles de dispersion atmosphérique dans la région située au voisinage d'un site de stockage ;

- Pour la problématique de transport du radon depuis les sols vers le bâtiment, il a été montré qu'on peut franchir le gap de modélisation des phénomènes transitoires au sein de la cave d'une habitation, tout en conservant le sens physique des paramètres optimisés difficilement mesurables, pourvu que les problèmes de caractérisation du sol, des matériaux fissurés de la fondation et du mode d'occupation du bâtiment assortis de conditions initiales et aux limites transitoires appropriées (imposées au bâtiment et au sol), soient bien posés (de point de vue physique et mathématique). De même, il a été possible de réaliser des études de scénarios de mitigation du radon dans la cave par les méthodes de dépressurisation du sol en apportant les modifications nécessaires au code EOS7Rn, cela afin d'améliorer la qualité de l'air au sein d'une habitation avec cave. D'autres études ont été proposées pour différentes typologies de bâtiment et de conditions aux limites dans le cadre de benchmarks avec des codes semi-analytiques et empiriques développés par le CSTB. Elles ont permis de montrer l'avantage d'utiliser le code EOS7Rn ou T2Rn à base physique par rapport aux codes de CSTB dans les cas où il faut traiter des problèmes 3D de transport du radon en milieux poreux hétérogènes.

Par ailleurs, la particularité du développement du code T2Rn, est qu'il sera possible dans le futur de réaliser des études stochastiques, des études d'inversion numérique des données expérimentales et des études de sensibilité des modèles par rapport à plusieurs paramètres inconnus par les méthodes automatiques de propagation d'incertitudes. Cela afin de contourner le problème des hétérogénéités des propriétés physiques et hydrodynamiques et l'insuffisance des données mesurées pour réaliser des études complexes. Enfin, malgré les progrès réalisés pour résoudre cette problématique, reste encore à étudier le couplage d'un modèle aérodynamique du bâtiment avec RDC et plusieurs étages avec le modèle de transport du radon dans le système poreux sol-matériaux de la fondation géré par le code T2Rn, afin d'améliorer la condition à la limite imposée par le bâtiment à l'interface sol-fondation du RDC ;

- Pour étudier la problématique de transport transitoire du radon depuis les cavités souterraines vers la surface du sol, une étude expérimentale et de modélisation de transport du radon dans un système karstique (Fourbanne (25), région de Franche-Comté) englobant sol – sous-sol – roche – vide karstique a été proposée. L'analyse des données mesurées dans le sol (teneur en radium-226 et concentration en radon) par rapport à leurs positions topographiques ont confirmé que la présence des failles est un facteur favorisant la présence de radon dans l'air du sol à des concentrations plus importantes. Une analyse ACP sur une année entière et différentes périodes de l'année a permis d'identifier certaines corrélations ou anti-corrélations entre les séries temporelles de différents paramètres mesurés dans l'atmosphère (température et pression de l'air), dans le sol (concentration en radon) et dans la cave (niveau de la nappe souterraine, température et pression de l'atmosphère dans la cave), mais sans pouvoir parfois aboutir à des explications convaincantes de certaines corrélations sur certaines périodes saisonnières de l'année. En revanche, une modélisation par une approche simplifiée de traitement de la condition d'interface cavité/roche par le code T2Rn et sa comparaison avec les données mesurées de concentration en radon dans le sol a permis de tirer un certain nombre de conclusions importantes: (i) les niveaux moyens de concentration en radon dans le sol résultent essentiellement de l'émanation du  $^{226}\text{Ra}$  contenu dans le sol; (ii) le sol du secteur d'étude, bien qu'associé à des roches calcaires pauvres en uranium et en radium, présente des teneurs en  $^{226}\text{Ra}$  similaires à celles des sols de roches granitiques riches en uranium et en radium. Cet enrichissement relatif en  $^{226}\text{Ra}$  du sol serait lié à la dissolution des carbonates, phénomène typique des régions karstiques ; les amplitudes des fluctuations de l'activité volumique de radon mesurées dans l'air du sol sont essentiellement liées aux gradients de pression de la phase gazeuse entre la surface du sol et la cavité souterraine. Toutefois, reste encore à confirmer et conforter ces résultats en faisant des investigations complémentaires comme proposé dans le cadre du projet **RadoNorm**.

La particularité des trois études précitées est que la modélisation numérique a été souvent confrontée à des mesures expérimentales. Malgré la complexité des phénomènes mettant en jeu la nature transitoire de l'écoulement diphasique liquide-gaz, les calculs par le code radon (T2Rn ou EOS7Rn) ont pu reproduire partiellement et parfois parfaitement les résultats expérimentaux, sans aucun ajustement ad-hoc de certains paramètres supposés être mesurés ou obtenus à partir de la littérature. A mon avis, les connaissances acquises durant ces études permettront sûrement d'encourager les modélisateurs à poursuivre l'effort pour étudier des phénomènes plus complexes que

ceux présentés ici. C'est la raison pour laquelle j'ai volontairement orienté une grande partie de l'effort sur l'amélioration des modèles traitant de la migration du radon dans différents contextes.

Dans la seconde grande partie de ce manuscrit, il a été démontré l'importance de deux phénomènes souvent observés expérimentalement, mais négligés dans la modélisation des écoulements et de transport des gaz en milieu poreux diphasique : la pression d'entrée de gaz et l'hystérésis. La démonstration de leur effet sur les écoulements diphasiques a été possible grâce à une expérience *in situ* d'injection du gaz dans le CO<sub>x</sub> saturé en eau (PGZ1-GAZ) et une expérience de laboratoire d'injection d'un fluide non mouillant dans un réservoir de sable initialement saturé en un fluide mouillant (Trevisan et al., 2014).

Dans une structure hétérogène, comme celle du stockage, l'effet de la pression d'entrée est marqué par un écoulement préférentiel du gaz dans les milieux à faible pression d'entrée. L'accumulation du gaz dans ces milieux génère des pressions de gaz très élevées, qui peuvent par la suite créer un écoulement d'eau important par effet piston de ce gaz dans les milieux avoisinants. En effet, la prise en compte d'une pression d'entrée non nulle dans les modèles de transport de l'hydrogène à l'échelle de l'alvéole et d'un module du site de stockage (géologique profond de déchets radioactifs à haute activité) a montré une différence importante par rapport aux pressions de gaz maximales d'hydrogène atteintes dans la galerie et la roche hôte simulées par une paramétrisation avec une pression d'entrée nulle. Cette différence de pression de gaz importante peut avoir un impact sur la perturbation mécanique du CO<sub>x</sub> et des barrières ouvragées et révèle l'importance d'étudier les phénomènes hydromécaniques (poro-élasto-plastiques) qui peuvent être à l'origine de transport préférentiel du gaz et des radionucléides vers le CO<sub>x</sub> (suite à une éventuelle microfissuration et/ou fracturation) et vers l'exutoire de l'installation au niveau du puits (suite au développement d'interfaces mécaniques entre les scellements et la roche).

L'effet de l'hystérésis est marqué par la nécessité d'introduire le phénomène de piégeage de la phase non mouillante pour expliquer la rétention de cette phase dans un milieu poreux initialement saturé par un fluide mouillant après son injection durant une période donnée. Cette situation est souvent rencontrée dans les tests d'injection de gaz dans les roches hôtes à base d'argile afin de caractériser leurs propriétés hydrodynamiques, ainsi qu'au sein du stockage durant les périodes de re-saturation (imbibition par l'eau du CO<sub>x</sub>) et de désaturation (séchage par le gaz généré) de la roche hôte et des matériaux de remblayage des galeries.

Reste encore à étudier l'effet combiné de ces deux phénomènes sur les écoulements diphasiques en considérant des expériences numériques ou des expériences réelles qui permettent de les manifester simultanément.

Une étude de transport de l'hydrogène à l'échelle de l'installation Cigéo, moyennant une simplification de sa géométrie (ramenée à la galerie principale qui reçoit une partie de la masse d'hydrogène produite dans les quartiers HA), a permis de montrer l'importance de l'effet piston du gaz sur l'écoulement de l'eau dans la galerie principale (phénomène convectif prépondérant dans le transport de radionucléides relâchés par les alvéoles), en particulier au voisinage du puits. Cet effet demeure non négligeable quelles que soient les conditions initiales et aux limites imposées au niveau du puits. Un intérêt important doit être donné à ce phénomène en prenant en compte ultérieurement les deux phénomènes précités (pression d'entrée et hystérésis). Toutefois, il faut rester vigilant quant à l'analyse de ces résultats de calcul obtenus par ce modèle simplifié puisque la conception de l'architecture du stockage Cigéo évoluera sûrement dans le temps suivant les types de scellements et leurs positions dans le réseau de galeries du stockage.

Enfin la troisième et dernière partie propose des perspectives de recherche pour répondre aux objectifs majeurs qui nous attendent dans un futur proche sur le transport des gaz en milieux poreux diphasiques dans le cadre des deux thématiques (« Radon » et « Gas dans Cigéo »).

Les perspectives sur la thématique « Radon » se focalisent notamment sur les problématiques de l'influence des karsts sur le potentiel radon des terrains et de l'influence potentielle de sources anthropiques sur les concentrations en radon dans les bâtiments et proposent également des actions, qui à mon avis, sont nécessaires pour appréhender sereinement le problème de transport du radon dans le continuum bâtiment-sol-roche-cavité en considérant les hétérogénéités et les discontinuités qui peuvent être présentes dans ce continuum.



Concernant les perspectives sur la thématique « Gaz dans Cigéo », celles-ci se focalisent essentiellement sur les phénomènes négligés ou peu développés jusqu'à présent et les problématiques scientifiques qui leur sont associées. Une série d'actions de recherche a été proposée pour les appréhender dans le futur proche et pour pouvoir étudier leur impact sur les pressions et les flux de gaz (et éventuellement le transport des radionucléides) dans le stockage, afin d'assurer sa sûreté. Parmi ces problématiques on peut citer : (i) l'étude de la dépendance du terme source de l'hydrogène généré par corrosion anaérobie avec le degré de saturation en eau et les caractéristiques thermo-bio-physico-chimiques de l'eau; (ii) le développement de nouveaux modèles adéquats de diffusion de l'hydrogène dans le COx et les barrières ouvragées non-saturés à partir des mesures expérimentales; (iii) le développement d'un modèle de coefficient de solubilité de l'hydrogène dans la phase aqueuse en fonction de la température et de la pression capillaire; (iv) la prise en compte de la présence initiale de l'air dans le stockage; (v) l'hydromécanique, par couplage d'écoulement diphasique avec les lois de comportement (contrainte-déformation) des propriétés poro-élasto-plastiques du COx et des barrières ouvragées, afin de pouvoir étudier le transport préférentiel du gaz dans les éventuelles microfissures et/ou fractures dans le COx et/ou dans les interfaces mécaniques entre les scellements et le COx sain et fracturé (projet de thèse 2021-2024).

Une autre série de perspectives et d'actions communes aux deux thématiques précitées a également été évoquée dans la troisième grande partie. Ces perspectives proposent de traiter d'une manière générale des questions scientifiques qui sont encore pendantes dans différents domaines de la recherche, à savoir : l'étude des incertitudes liés au choix de maillage et des schémas numériques pour résoudre les EDPs paraboliques-elliptiques; le développement de méthodes de changement d'échelle micro-macro (*upscaling*); le couplage des modèles d'écoulement diphasique en milieu poreux (e.g. TOUGH2) avec des modèles d'écoulement monophasique et/ou diphasique en milieu libre (e.g., CFD dans le bâtiment ou dans les cavités), ainsi que l'étude du problème des conditions d'interfaces milieu poreux – milieu libre associé à ce couplage; l'étude de propagation d'incertitudes sur les paramètres des modèles d'écoulement et de transport.

La production scientifique présentée dans ce manuscrit résulte de collaborations nombreuses et variées. Tout d'abord, il s'agit du travail de 2 doctorants, 2 post-doctorants et 5 stagiaires de Master. Plusieurs partenaires nationaux et internationaux ont participé financièrement et/ou techniquement à ces actions, légitimant plus encore l'intérêt de poursuivre dans ces deux thématiques. En revanche, les interrogations restent encore nombreuses et le besoin d'une transversalité plus forte, notamment avec les domaines de l'hydromécanique, de l'étude des méthodes de propagation d'incertitudes dans les modèles et leur mise en œuvre pour différents contextes, l'*upscaling* pour réaliser des études à grandes échelles spatiales.

La construction de projets regroupant des chercheurs de différentes disciplines dans ces deux thématiques peut-être une solution. Le projet européen EURAD par exemple est une très belle réussite. Il a su construire des liens entre des équipes de recherche travaillant sur la thématique GAZ, que ce soit d'un point de vue expérimental ou théorique (sorption, diffusion, fracturation hydraulique...), sur le développement de nouveaux modèles physiques des transferts des gaz en milieu poreux multiphasique et leur résolution par de nouvelles méthodes numériques (LBM, SPH...), sur le développement des méthodes de gestion des incertitudes... Cela a permis des avancées concrètes de plusieurs domaines. Le projet Franco-suisse JURAD-BAT a été également une vraie réussite, il a été l'occasion de regrouper des chercheurs de différentes équipes travaillant dans des disciplines variées (géologues, hydrologues, mécaniciens des fluides dans les bâtiments...) autour de la problématique de transport du radon depuis les vides karstiques jusqu'en bâtiment. Le projet européen RadoNORM sera également l'occasion d'allier des chercheurs émanant de plusieurs disciplines scientifiques et qui travaillent sur la thématique « radon », que ce soit dans les bâtiments ou dans les systèmes karstiques.

Actuellement, nos actions de recherche sur les deux thématiques précitées se poursuivent dans le cadre de projets européens et de collaborations bipartites avec des laboratoires compétentes. Jusqu'à présent cette voie est suffisante pour assurer une viabilité de nos activités de recherche sur ces deux thématiques. Toutefois, pour élargir nos champs d'action, il serait plus tôt judicieux de s'insérer dans des projets de grande envergure comme les projets ANR qui permettent, d'une part d'allier des équipes connues pour leur étude sur des problématiques spécifiques, et qui peuvent apporter énormément de connaissances à nos études, et d'autre part de construire de futures collaborations avec des équipes internationales. Certes, l'accès à ces projets n'est pas toujours une évidence, mais il ne faut pas hésiter de s'y insérer lorsque l'occasion se présente.





# Références

- Aavatsmark I., T. Barkve, Ø. Bøe, T. Mannseth (1994): Discretization on non-orthogonal, curvilinear grids for multi-phase flow. In: Proceedings of the Fourth European Conference on the Mathematics of Oil Recovery, Røros, Norway.
- Ababou R. (2021) : Revue méthodologique sur la propagation des incertitudes et l'analyse de sensibilité pour la modélisation des écoulements diphasiques en milieux poreux (stockage géologique profond de déchets radioactifs). Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse, Rapport de recherche pour l'IRSN v1.0, 26 novembre 2021, 98 p.
- Ababou R. (2018): Capillary Flows in Heterogeneous and Random Porous Media 1. ISTE Ltd et John Wiley & Sons Inc., 2018, t. 1, p. 1-371.
- Ababou R., I. Cañamón Valera, A. Poutrel, 2011. Macro-permeability distribution and anisotropy in a 3D fissured and fractured clay rock: 'Excavation Damaged Zone' around a cylindrical drift in Callovo-Oxfordian Argilite (Bure), Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C, Volume 36, Issues 17–18, 2011, Pages 1932-1948, ISSN 1474-7065, <https://doi.org/10.1016/j.pce.2011.07.032>. (<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1474706511001483>)
- Ababou R. (2008). Risk Analyzis of Systems: Probabilistic Reliability Analyzis. Course Notes, Master of Risk Engineering, INPT INSAT ICSI, Toulouse, France, Version 1: 2008, 140 pp. (in English).
- Ababou R., A.C. Bagtzoglou (1993): BIGFLOW: A Numerical Code for Simulating Flow in Variably Saturated, Heterogeneous Geologic Media (Theory and User's Manual, Version 1.1). U.S. Nuclear Regulatory Commission, rapport technique, 1993, p. 1-139.
- Abdelouhab M. (2011) : Contribution à l'étude du transfert des polluants gazeux entre le sol les environnements intérieurs des bâtiments. Thèse de doctorat Université de la Rochelle-CSTB, 209p.
- Abed A.A., W.T. Sokolowski, 2019. Applications of the new thermo-hydro-mechanical-chemical coupled code Thebes. Environ. Geotech. <https://doi.org/10.1680/jenge.18.00083>
- Abreu L.D.V., P.C. Johnson, 2006. Simulating the effect of aerobic biodegradation on soil vapor intrusion into buildings: Influence of degradation rate, source concentration, and depth. Environ. Sci. Technol. 40(7): 2304–2315. doi: 10.1021/es051335p - <https://doi.org/10.1021/es051335p>
- Abreu L.D.V. (2005): A Transient Three-Dimensional Numerical Model to Simulate Vapor Intrusion into Buildings, UMI 3166060, Ph.D. Dissertation, Arizona State University, Tempe, AZ, 2005.
- Abreu L.V.D., P.C. Johnson, 2005. Effect of vapor source-building separation and building construction on soil vapor intrusion as studied with a three-dimensional numerical model. Environ. Sci. Technol., 39: 4550-4561.
- Ahusborde, E., Amaziane, B., Baksay, A., Bátor, G., Becker, D., Bednár, A., Béreš, M., Blaheta, R., Böhti, Z., Bracke, G., Brazda, L., Brendler, V., Brenner, K. Březina, J., Cancès, C., Chainais-Hillairet, C., Chave, F., Claret, F., Domesová, S., Havlova, V., Hokr, M., Horák, D., Jacques, D., Jankovsky, F. Kazymyrenko, C., Kolditz, O., Koudelka, T., Kovács, T., Krejci, T., Kruis, J., Laloy, E., Landa, J., Lipping, T., Lukin, D., Mašin, D., Masson, R., Meeussen, J.C.L, Mollaali, M., Mon, A., Montenegro, L., Montoya, V., Pepin, G., Poonoosamy, J., Prasianakis, N., Saâdi, Z., Samper, J., Scaringi, G., Sochala, P., Tournassat, C., Yoshioka, K., Yuankai, Y. (2021): State Of the Art Report in the fields of numerical analysis and scientific computing. Final version as of 16/02/2020 of deliverable D4.1 of the HORIZON 2020 project EURAD. EC Grant agreement no: 847593. <https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-03165686>
- Ahusborde E., B. Amaziane, M. Jurak, 2015. Three-dimensional numerical simulation by upscaling of gas migration through engineered and geological barriers for a deep repository for radioactive waste. In: Shaw, R. P. (ed.), Gas Generation and Migration in Deep Geological Radioactive Waste Repositories. Geological Society, London, Special Publications, 415, 123–141, 2015. First published online November 14, 2014, <http://dx.doi.org/10.1144/SP415.2>.
- Aissaoui A. (1983) : Etude théorique et expérimentale de l'hystérésis des pressions capillaires et des perméabilités relatives en vue du stockage souterrain de gaz. Thèse de doctorat, École des Mines de Paris, Paris, France, 1983.
- Akbari K., J. Mahmoudi, 2012. Numerical simulation of radon transport and indoor air conditions effects. International Journal of Scientific & Engineering Research, 3(6): 1-9.
- Albers B., 2014. Modeling the hysteretic behavior of the capillary pressure in partially saturated porous media: a review. Acta Mechanica, 225(8): 2163-2189.
- Amaziane B., M. El Ossmani, M. Jurak, 2012. Numerical simulation of gas migration through engineered and geological barriers for a deep repository for radioactive waste. Comput. Visual. Sci. (2012) 15(1) : 3–20, ISSN 1432-9360, DOI 10.1007/s00791-013-0196-1
- Améon R., L. Marie (2010) : Etude de l'influence des cavités souterraines sur le transport du radon du sol jusqu'au bâtiment. Instrumentation de May-sur-Orne. Rapport DEI/SARG/2010-001.

- Amri A., Z. Saâdi, R. Ababou, 2022. Parametric sensitivity to gas-entry pressure in two-phase flow models for a deep geologic repository of radioactive waste. *Transp. Porous Med.*, 145: 13–43, <https://doi.org/10.1007/s11242-022-01780-w>
- Amri A., Z. Saâdi, R. Ababou, 2022. Modeling multiphase flow with hysteresis: Application to deep geological structures, disposal of radioactive waste and CO<sub>2</sub> storage (Article in preparation for submission)
- Amri A., Z. Saâdi, R. Ababou, M. Dymitrowska (2022): Parametric sensitivity to gas-entry pressure in 2-phase flow models in a deep geologic repository for radioactive waste. *CLAY 2022: 8th Internat. Conf. on Clays in Natural & Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement* (13-16 June 2022, Nancy, France). Extended abstract. #CLAY00099 [TOPIC 03: Fluid (water, gas) transport & solute migration]
- Amri A. (2021) : Réévaluation du modèle physique de transfert de l'hydrogène pour l'étude du transitoire hydraulique-gaz dans un stockage profond de déchets radioactifs. Thèse de doctorat, Université de Toulouse, Institut National Polytechnique de Toulouse (INP Toulouse), 213p.
- Amri A. (2018) : Prise en compte de la pression d'entrée et d'hystérésis dans le modèle de la migration d'hydrogène au voisinage d'un stockage géologique de déchets radioactifs. Master's degree of Science M2R, report IRSN/INP-ENSEEIH, pp. 45, 30 September 2018.
- Andersen C.E., 2001. Numerical modelling of radon-222 entry into houses: an outline of techniques and results. *Sci Total Environ*, 272(1-3): 33-42.
- Andersen C.E. (2000): Radon transport modelling: User's Guide to RnMod3d. Risø National Laboratory, DK-4000 Roskilde, Denmark; Report Risø-R-1201(EN), 2000.
- Andra (2016a) : Rapport CG-TE-D-NTE-AMOA-SR1-0000-15-0060 – « Dossier d'options de sûreté - Partie exploitation » (DOS-Expl), Avril 2016, 519p.
- Andra (2016b) : Rapport CG-TE-D-NTE-AMOA-SR2-0000-15-0062 – « Dossier d'options de sûreté — Partie après fermeture » (DOS-AF), Avril 2016, 467p.
- Andra (2016c) : Rapport CG-TE-D-NTE-AMOA-SRR-0000-15-0063 - Cigéo – « Proposition de plan directeur pour l'exploitation » (PDE), Avril 2016, 101p.
- Andra (2012a) : Référentiel du comportement THM des formations sur le site de Meuse / Haute Marne, Document technique D.RP.AMFS.12.0024, 2012, Andra.
- Andra (2012b) : Mesure de la pression de percée de gaz et importance de la cinétique de montée en pression. (Document technique externe ANDRA, CG.RP.AMFS.12.0030). Agence Nationale pour la Gestion des Déchets Radioactifs (ANDRA), France, rapp. tech., 2012 (Juillet), p. 1-28.
- Andra (2005) : Evaluation de la faisabilité du stockage géologique en formation argileuse. Dossier 2005 Argile, <https://www.andra.fr/sites/default/files/2017-12/266.pdf>
- Arnaldsson A., J.-C. Berthet, S. Kjaran, S. Þ. Sigurðsson, 2014. Numerical scheme to simulate flow through anisotropic rocks in TOUGH2. *Computers & Geosciences*, 65: 37-45. ISSN 0098-3004, <https://doi.org/10.1016/j.cageo.2013.08.002>. (<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0098300413002239>)
- Avis J., P. Suckling, N. Calder, R. Walsh, P. Humphreys, F. King, 2014. T2GGM: A Coupled Gas Generation Model for Deep Geologic Disposal of Radioactive Waste. *Nuclear Technology*, 187(2): 175-187, DOI: 10.13182/NT13-83.
- Baber K., K. Mosthaf, B. Flemisch, R. Helmig, S. Müthing, B. Wohlmuth, 2012. Numerical scheme for coupling two-phase compositional porous-media flow and one-phase compositional free flow. *IMA J. Appl. Math.*, 77(6): 887–909.
- Bagtzoglou A. C., R. Ababou, A. Nedungadi, B. Sagar, 2009. Fuzzy Rule-Based Hydrologic Models for Performance Assessment of Nuclear Waste Disposal Sites. *ASCE J. Hydrologic Engineering*, 14(11): 1240-1248.
- Baroghel-Bouny V., 2007. Water vapour sorption experiments on hardened cementitious materials. Part I: Essential tool for analysis of hygral behaviour and its relation to pore structure. *Cement and Concrete Research*, 37(3): 414-437, Cementitious Materials as model porous media: Nanostructure and Transport processes. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2006.11.019>.
- Battistelli A., D. Swenson, A. Alcott (2017): Improved PetraSim-TOUGH2 capabilities for the simulation of geothermal reservoirs. In: Proc of 42nd workshop on geothermal reservoir engineering, Stanford, California (USA), 2017.
- Beavers G.S., D.D. Joseph, 1967. Boundary conditions at a naturally permeable wall. *J. Fluid Mech.*, 30: 197-207.
- Berizokin A., Y. Mualem, 2018. Comparative analysis of the apparent saturation hysteresis approach and the domain theory of hysteresis in respect of prediction of scanning curves and air entrapment. *Advances in Water Resources*, 115, 253-263.
- Boubekeur M., Z. Saâdi, F. Benkhaldoun (2021) : Développement d'une méthode pour adapter un maillage généré par Gmsh au format TOUGH2 en 3D. Laboratoire Analyse, Géométrie et Applications (LAGA - Université Paris 13, Villetaneuse) et IRSN/PSE-ENV/SEDRE/UEMIS, Rapport Technique, 18 p., 28 mai 2021.

- Boulin P.F. (2008) : Expérimentation et modélisation du transfert d'hydrogène à travers des argiles de centre de stockage de déchets radioactifs. Thèse de doctorat de l'Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG, 2008. tel-00331826.
- Boulin P.F., R. Angulo-Jaramillo, J.-F. Daian, J. Talandier, P. Berne, 2008. Experiments to estimate gas intrusion in Callovo-oxfordian argillites. *Physics and Chemistry of the Earth*, 33: S225–S230.
- Bozkurt O., K.G. Pennell, E.M. Suuberg, 2009. Simulation of the vapor intrusion process for nonhomogeneous soils using a three-dimensional numerical model. *Ground Water Monitoring & Remediation*, 29(1): 92–104.
- Braud I. (2000): SiSPAT, a numerical model of water and energy fluxes in the soil-plant-atmosphere continuum - SiSPAT user's manual, Version 3.0, LTHE, September 2000, 106 pp.
- Braud I. (1996): SiSPAT, a numerical model of water and energy fluxes in the soil-plant-atmosphere continuum - SiSPAT user's manual, Version 2.0, LTHE, October 1996, 83p.
- Braud I., A.C. Dantas-Antonino, M. Vauclin, J.L. Thony, P. Ruelle, 1995. A simple soil-plant-atmosphere transfer (SiSPAT) model development and field verification. *Journal of Hydrology*, 166: 213-250.
- Brinkman H.C., 1947. A calculation of the viscous force exerted by a flowing fluid on a dense swarm of particles. *Journal of Applied Sciences Research*, A1, 27-34.
- Broecker W.S., T.-H. Peng, 1974. Gas exchange rates between air and sea. *Tellus* 26(1-2): 21-35.
- Brommundt J., T.U. Kaempfer, C.P. Enssle, G. Mayer, J. Wendling, 2014. Full-scale 3D modelling of a nuclear waste repository in the Callovo-Oxfordian clay. Part 1: thermo-hydraulic two-phase transport of water and hydrogen. In: *Clays in Natural and Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement*, Geological Society of London, 2014. DOI: 10.1144/SP400.34.
- Brooks R.H., A.T. Corey, 1966. Properties of porous media affecting fluid flow. *ASCE Journal of the Irrigation and Drainage division*, 92(2): 61-90.
- Brooks R.H., A.T. Corey (1964): hydraulic properties of porous media, Hydrology Paper, Fort Collins, Colorado State University.
- Buckingham E. (1904): Contributions to our knowledge of the aeration of soils. Report USDA, Bureau of Soil Bull. No. 25, U.S. Government Printing Office, Washington, DC.
- Bzowski J., E.A. Mason, J. Kestin, 1988. On combination rules for molecular van der Waals potential-well parameters. *International Journal of Thermophysics*, 9(1): 131-143.
- Cañamón I., R. Ababou, A. Poutrel, Á. Udías, 2019. Upscaling 3D coupled hydro mechanical properties of fractured porous rocks, *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, Volume 123, 2019, 104117, ISSN 1365-1609, <https://doi.org/10.1016/j.ijrmms.2019.104117>. (<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1365160919309785>)
- Carman P. (1973): Fluid flow through granular beds. *Transactions, Institutions of Chemical Engineers*, London 15, 150-166.
- Cateliniois O., A. Rogel, D. Laurier, S. Billon, D. Hémon, P. Verger, M. Tirmarche, 2007. Évaluation de l'impact sanitaire de l'exposition domestique au radon en France. Institut de veille sanitaire (InVS). *Bulletin Epidémiologique Hebdomadaire* no (18–19), 155–158.
- Caulk R. (2022): Modeling the transience of partial saturation and cracks in heterogeneous swelling clays using the Discrete Element and Finite Volume methods. Université de Grenoble, Institut Polytechnique de Grenoble, 2022.
- Chandesris M. (2006) : Modélisation des écoulements turbulents dans les milieux poreux et à l'interface avec un milieu libre. Thèse de doctorat, spécialité Mécanique, Université de Paris VI, Décembre 2006, 245 p.
- Charlier R., F. Collin, B. Pardoën, J. Talandier, J.-P. Radu, P. Gerard, 2013. An unsaturated hydro-mechanical modelling of two in-situ experiments in Callovo-Oxfordian argillite. *Engineering Geology*; 165: 46–63, 2013. ISSN 0013-7952, <https://doi.org/10.1016/j.enggeo.2013.05.021>.
- Charmoille A. (2005) : Traçage hydrochimique des interactions hydrauliques et mécaniques entre les volumes perméables et peu perméables au sein des aquifères fracturés carbonatés. Aquifère karstique de Fourbanne (Avant-pays jurassien, 25). Laboratoire naturel de Coaraze (Alpes Méridionales, 06). Thèse de Doctorat. Hydrology. Université de Franche-Comté, 2005.
- Chauve P. (1975) : Guides géologiques régionaux : Le Jura. Elsevier/Masson, 216 p.
- Chengxin J., S. Huapeng, L. Ya, Y. Hongming, 2016. Numerical simulation of groundwater under complex karst conditions and the prediction of roadway gushing in a coal mine: a case study in the Guang'an Longtan Reservoir in Sichuan Province, China. *Acta Geochim* 35, 72–84. <https://doi.org/10.1007/s11631-015-0077-z>



- Cholet C. (2017) : Fonctionnement hydrogéologique et processus de transport dans les aquifères karstiques du Massif du Jura, Thèse de Doctorat, Université de Franche-Comté, 2017.
- Cihan A., J. Birkholzer, L. Trevisan, A. Gonzalez-Nicolas, T. Illangasekare, 2017. Investigation of representing hysteresis in macroscopic models of two-phase flow in porous media using intermediate scale experimental data. *Water Resources Research*, 53(1): 199-221.
- Clever H.L. (1979): Krypton, Xenon and Radon—Gas Solubilities, International Union of Pure and Applied Chemistry Solubility Data Series, Pergamon Press, New York, 357pp.
- Collignan B., E. Powaga, 2019. Impact of ventilation systems and energy savings in a building on the mechanisms governing the indoor radon activity concentration. *Journal of Environmental Radioactivity*, 196 : 268-273 <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.11.023>
- Coussy O. (1991) : Mécanique des milieux poreux. Edition Technip, Paris.
- Croisé J., G. Mayer, J. Talandier, J. Wendling, 2011. Impact of water consumption and saturation-dependent corrosion rate on hydrogen generation and migration from an Intermediate-Level Radioactive Waste Repository. *Transp. Porous Med.*, 90: 59–75. <https://doi.org/10.1007/s11242-011-9803-0>
- Crovetto R., R. Fernandez-Prini, M.L. Japas, 1982. Solubilities of inert gases and methane in H<sub>2</sub>O and in D<sub>2</sub>O in the temperature range of 300 to 600 K. *Journal of Chemical Physics*, 76(2): 1077-1086.
- Cuss R.J., J. Harrington, R. Giot, C. Auvray, 2014. Experimental observations of mechanical dilation at the onset of gas flow in Callovo-Oxfordian claystone. In: Norris, A., Bruni, J., Cathelineau, M., Delage, P., Fairhurst, C., Gaucher, E.C., Hohn, E.H., Kalinichev, A., Lalieux, P., Sellin, P. (Eds.), *Clays in Natural and Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement*. vol. 400. Geological Society Special Publications, London, United Kingdom, pp. 507–519. <http://dx.doi.org/10.1144/SP400.26>. Geological Society of London.
- Dann R., M. Close, M. Flintoft, R. Hector, H. Barlow, S. Thomas, G. Francis, 2009. Characterization and estimation of hydraulic properties in an alluvial gravel vadose zone. *Vadose Zone J*, 8 : 651–663.
- Dauzère A. (2018) : Contribution à la compréhension des interactions physico-chimiques des matériaux anthropiques et naturels dans les environnements de stockage de déchets radioactifs. Habilitation à Diriger des Recherches (HDR), Spécialité Sciences de la Terre et Physico-Chimie des Matériaux, Université Paris-Sud, 134 p.
- Davy C. A., F. Skoczylas, P. Lebon, T. Dubois, 2009. Gas migration properties through a bentonite/argillite interface. *Applied Clay Science*, 42(3): 639-648.
- Davy C. A., F. Skoczylas, J.-D. Barnichon, P. Lebon, 2007. Permeability of macro-cracked argillite under confinement: gas and water testing. *Physics & Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, 32(8-14): 667-680.
- de La Vaissière R., J. Talandier, G. Armand, M.-N. Vu, F. H. Cornet (2019): From Two-Phase Flow to Gas Fracturing into Callovo-Oxfordian Claystone. In: 53<sup>rd</sup> US Rock Mechanics/Geomechanics Symposium, American Rock Mechanics Association, New York City, New York, June 2019.
- de La Vaissière R., P. Gérard, J.-P. Radu, R. Charlier, F. Collin, S. Granet, J. Talandier, M. Piedevache, B. Helmlinger, 2014. Gas injection test in the Callovo-Oxfordian claystone: data analysis and numerical modelling. *Geological Society, London, Special Publications*, 400(1): 427-441.
- de La Vaissière R., J. Talandier (2012): Gas Entry Pressure in Callovo-Oxfordian Claystone: in situ Experiment PGZ1. In: Actes du Colloque National Transfert 2012/workshop organized in the framework of the EU FP7 project FORGE, Ecole Centrale de Lille/LML, 20-22 March, 2012.
- de La Vaissière R. (2011): Interpretation of in-situ gas experiment PGZ1. t. FORGE Report D5.9 & D5.12 (06 December 2011), p. 1-64, 2011.
- Demoury C., G. Ielsch, D. Hemon, O. Laurent, D. Laurier, J. Clavel, J. Guillevic, 2013. A statistical evaluation of the influence of housing characteristics and geogenic radon potential on indoor radon concentrations in France. *Journal of Environmental Radioactivity*, 126: 216-225.
- Deptulski R.C. (2021): Modelling damage and dilatant two-phase flow at pore scale using Smoothed Particle Hydrodynamics (SPH) method. Fluid mechanics [physics.class-ph]. Sorbonne Université, 2021. English. NNT: 2021SORUS214. tel-03481975.
- Diallo T.M.O., B. Collignan, F. Allard, 2012. Analytical quantification of airflows from soil through building substructures. *Building Simulation*, Volume 6, Issue 1, DOI 10.1007/s12273-012-0095-2, pp.81-94.
- Diallo T. (2013) : Impact des polluants gazeux du sol sur la qualité de l'air intérieur des bâtiments. Thèse de doctorat, Université de La Rochelle-CSTB, 223p.

- Diallo T.M.O., B. Collignan, F. Allard, 2015. 2D Semi-empirical models for predicting the entry of soil gas pollutants into buildings. *Building and Environment*, Volume 85, Issue 1, DOI: 10.1016/j.buildenv.2014.11.013, pp.1-16.
- Didier M. (2012) : Etude du transfert réactif de l'hydrogène au sein de l'argilite intacte. Thèse de doctorat en Sciences de la Terre. Université de Grenoble, 2012.
- Doughty C. (2013): User's guide for hysteretic capillary pressure and relative permeability functions in TOUGH2. Lawrence Berkeley National Laboratory (LBNL), Berkeley, CA (United States), tech. rep., 2013.
- Doughty C., 2007. Modeling geologic storage of carbon dioxide: comparison of non-hysteretic and hysteretic characteristic curves. *Energy Conversion and Management*, 48(6): 1768- 1781; *Geologic Carbon Sequestration and Methane Hydrates Research from the TOUGH Symposium 2006*. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.enconman.2007.01.022>
- Doursout T. (2009) : Estimation de l'activité volumique du radon dans un bâtiment construit sur des travaux miniers du bassin ferrifère lorrain. Modélisation réalisée avec le code CARAIBE. Rapport DEI/SARG/2009-009.
- Doursout T. (2008) : CARAIBE v1.0. Guide d'utilisation. Rapport DEI/SARG/2008-034.
- Duran L., L. Gill, 2021. Modeling spring flow of an Irish karst catchment using Modflow-USG with CLN. *Journal of Hydrology*, Volume 597, 2021, 125971, ISSN 0022-1694. <https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2021.125971>
- Dymitrowska M., F. Smaï, A. Bourgeat, 2015. Thermodynamic Modelling of Hydrogen Migration in Argillite for a Deep Geological Radioactive Waste Repository – IRSN contribution to FORGE, Geological Society, London, Special Publications, 415: 167-188, first published on February 27, 2015, doi:10.1144/SP415.13.
- Dymitrowska M., A. Pazdaniakou, P.M. Adler, 2014. Two-phase-flow pore-size simulations in Opalinus clay by the Lattice Boltzmann Method. *Geological Society Special Publication*, 400(1): 195-206.
- Edlefsen N.E., A.B.C. Anderson, 1943. *Thermodynamics of Soil Moisture*. Hilgardia, 15: 31-298.
- Edwards M., C. Rogers (1994): A flux-continuous scheme for the full tensor pressure equation. In: *Proceedings of the Fourth European Conference on the Mathematics of Oil Recovery*, Røros, Norway.
- Enssle C.P., J. Brommundt, Th.U. Kaempfer, G. Mayer, J. Wendling (2012): 3D Modeling of the long-term behavior of a large geological repository for HLW and ILW-LL nuclear waste, considering heat, gas, and radionuclide release and transport – optimizations that allow for detailed large-scale modeling. In: *Proceedings of the TOUGH Symposium 2012*, Berkeley, CA
- Falta R.W., K. Pruess, S. Finsterle, A. Battistelli (1995): T2VOC User's Guide, Lawrence Berkeley Laboratory Report LBL-36400, Berkeley, CA, March 1995.
- Ferry C., P. Richon, A. Beneito, M.-C. Robé, 2002. Evaluation of the effect of a cover layer on radon exhalation from uranium mill tailings: transient radon flux analysis. *Journal of Environmental Radioactivity*, 63: 49–64.
- Ferry C., P. Richon, A. Beneito, M.-C. Robé, 2001. Radon exhalation from uranium mill tailings: experimental validation of a 1-D model. *Journal of Environmental Radioactivity*, 54: 99-108.
- Ferry C. (2001) : RADON2 : un outil de calcul des niveaux de radon dans les bâtiments. Version 1.0. Rapport IPSN/DPRE/SERGD/01-16.
- Ferry C. (2000) : La migration du radon 222 dans un sol. Application aux stockages des résidus issus de traitement des minerais d'uranium. Thèse de doctorat, Université Paris XI (Orsay).
- Finsterle S. (2016): iTOUGH2 User's Guide. LBNL-40040, Earth Sciences Division, LBNL, University of California, Berkeley, CA 94720.
- Finsterle S., C. Doughty, M.B. Kowalsky, G.J. Moridis, L. Pan, T. Xu, Y. Zhang, K. Pruess, 2008. Advanced vadose zone simulations using TOUGH. *Vadose Zone Journal*, 7(2): 601-609.
- Finsterle S. (2007): iTOUGH2 User's Guide. LBNL-40040, Earth Sciences Division, Lawrence Berkeley National Laboratory, University of California, Berkeley, CA 94720, February 2007.
- Finsterle S., 2004. Multiphase inverse modeling: Review and iTOUGH2 applications. *Vadose Zone Journal*, 3(3): 747-762.
- Finsterle S. (1999): iTOUGH2 user's guide. LBNL-40040, p. 130, 1999.
- Freeze R.A., J.A. Cherry (1979): *Groundwater*. Prentice-Hall Inc., Englewood Cliffs, New Jersey.
- Friend C.R.L., T.D. Gooding, 2002. Variations in the concentration of radon in parts of the Ogof Ffynnon Ddu system, Penwyllt, South Wales and estimates of doses to recreational cavers. *Environmental Radioactivity*, 58: 45-57.
- Gadgil A.J., Y.C. Bonnefous, W.J. Fisk, 1994. Relative effectiveness of sub-slab pressurization and depressurization systems for indoor radon mitigation: Studies with an experimentally verified numerical model. *Indoor Air*, 4: 265-275.

- Garbesi K., R.G. Sextro, W.J. Fisk, M.P. Modera, K.L. Revzan. 1993. Soil-gas entry into an experimental basement: model-measurement comparisons and seasonal effects. *Environ. Sci. Technol.*, 27(3): 466- 473.
- Gallé C., 2000. Gas breakthrough pressure in compacted Fo-Ca clay and interfacial gas overpressure in waste disposal context. *Applied Clay Science* 17: 85–97.
- Gatabin C., F. Plas, N. Michau (2016) : Les matériaux argileux gonflants des ouvrages de fermeture de Cigéo. Journée Technique SFEN 2016 - Les matériaux pour le stockage géologique des déchets, Feb 2016, Paris, France. 10.1051/jtsfen/2016les06. cea-02442368.
- Genty A., S. Gueddani, M. Dymitrowska, 2017. Computation of Saturation Dependence of Effective Diffusion Coefficient in Unsaturated Argillite Micro-fracture by Lattice Boltzmann Method. *Transp. Porous Med.*, 117(1): 149-168.
- Gérard P. (2011) : Impact des transferts de gaz sur le comportement poro-mécanique des matériaux argileux. Thèse de doctorat, Université de Liège, Belgique, 2011.
- Ghezzehei T.A., R.C. Trautz, S. Finsterle, P.J. Cook, C.F. Ahlers, 2004. Modeling coupled evaporation and seepage in ventilated cavities. *Vadoze Zone J.*, 3: 806-818.
- Gillmore G.K., P. Phillips, A. Denman, M. Sperrin and G. Pearce, 2001. Radon levels in abandoned metalliferous mines, Devon, Southwest England. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 49: 281-292.
- Gineau A., Z. Saâdi, B. Collignan, E. Powaga (2018) : Modélisation du transport du radon dans les sols, jusqu'à l'interface sol-bâtiment - Benchmark entre le modèle numérique T2Rn et les modèles analytiques et semi-empiriques (MA). Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN), Rapport Technique n° RT/PSE-ENV/2018-00021, 63 p., 2018.
- Göbel A., M. Wengler, A. Strusińska-Correia, N. Müller-Hoeppe, J. Mikšová, H. Vojtechová (2022): Analysis and description of groups of different actors. Final version as of 24.01.2022 of deliverable D10.10 of the HORIZON 2020 project EURAD. EC Grant agreement no: 847593.
- Gopal R., 1962. On intermolecular Lennard-Jones potential energy parameters for radon. *Journal of the Indian Chemical Society*, 39(11): 791-792.
- Goyeau B., D. Lhuillier, D. Gobin, M. Velarde, 2003. Momentum transport at a fluid-porous interface, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 46: 4071-4081.
- Gréau C., Mansouri N., Ielsch G., Saâdi Z., Bertrand C. (2018): Radon production and migration in karstic environment: Experimental data and numerical modelling (Fourbanne site, French Jura Mountains). In: Eurokarst 2018 conference, Book of abstracts, 80-81 p., 02-04 July 2018, Besançon, France. [http://www.eurokarst.org/wp-content/uploads/2016/07/Proceedings\\_Eurokarst2018\\_Besan%C3%A7on.pdf](http://www.eurokarst.org/wp-content/uploads/2016/07/Proceedings_Eurokarst2018_Besan%C3%A7on.pdf)
- Gréau C., G. Ielsch, Z. Saâdi, N. Mansouri, C. Bertrand (2017): Influence of karst on the radon production and migration (Fourbanne site, French Jura Mountains): analysis of experimental data. Third East-European Radon Symposium, May 15-19, 2017, Sofia, Bulgaria.
- Guérin F. (1991) : Production et mécanismes de migration du radon-222 dans les milieux fissurés : application à la recherche des discontinuités perméables du socle cristallin. Ph.D. Dissertation, Pierre et Marie Curie University, Paris 6, Paris, 282pp.
- Guillon S. (2013) : Détection et migration des gaz dans les milieux géologiques : Expériences et simulations au Laboratoire Naturel de Roselend. Thèse de doctorat en Géochimie, Institut de physique du globe, Paris, 270p.
- Gupta S., A. Singh, A. Ranaivoson (2004a): Moisture retention characteristics of base and sub-base materials. Technical report No. MN/RC – 2005-06, Minnesota department of transportation, December 2004, pp.112, 2004.
- Gupta M. L., A. R. Douglass, S. R. Kawa, S. Pawson, 2004b. Use of radon for evaluation of atmospheric transport models: sensitivity to emissions. *Tellus B: Chemical and Physical Meteorology*, 56:5, 404-412, DOI: 10.3402/tellusb.v56i5.16467
- Hadka D. (2012): MOEA framework: a free and open-source java framework for multiobjective optimization, 2012.
- Hakl J., I. Hunyadi, I. Csige, G. Géczy, L. Lénárt, A. Várhegyi, 1997. Radon transport phenomena studied in Karst caves-international experiences on radon levels and exposures. *Radiation Measurements*, Volume 28, Issues 1–6, 1997, Pages 675-684, ISSN 1350-4487, [https://doi.org/10.1016/S1350-4487\(97\)00163-7](https://doi.org/10.1016/S1350-4487(97)00163-7).
- Harrington F., R. J. Cuss, J. Talandier, 2017. Gas transport properties through intact and fractured Callovo-Oxfordian mudstones. *Geological Society, London, Special Publications*, 454(1): 131-154.
- Harrington J., R. de La Vaissière, D. Noy, R. Cuss, J. Talandier, 2012. Gas flow in Callovo-Oxfordian claystone (COx): results from laboratory and field-scale measurements. *Mineralogical Magazine*, 76(8): 3303-3318.

- Hassine S.B.H., M. Dymitrowska, V. Pot, A. Genty, 2017. Gas Migration in Highly Water-Saturated Opalinus Clay Microfractures Using a Two-Phase TRT LBM. *Transp. Porous Med.*, 116(3): 975-1003.
- Haverkamp, R., S. Debionne, R. Angulo-Jaramillo, D. de Condappa (2016): Soil Properties and Moisture Movement in the Unsaturated Zone. In: Cushman J.H. and Tartakovsky D.M. (Eds), *The Handbook of Groundwater Engineering*, 3rd Edition, CRC Press, 42 p. eBook ISBN9781315371801.
- Haverkamp R., P. Reggiani, P. J. Ross, J.-Y. Parlange (2002): Soil water hysteresis prediction model based on theory and geometric scaling. In: *Environmental mechanics: Water, mass and energy transfer in the biosphere*, t. 129, p. 213-246, 2002.
- Haverkamp R., M. Vauclin, J. Touma, P. J. Wierenga, G. Vachaud, 1977. A comparison of numerical simulation models for one-dimensional infiltration. *Soil Science Society of America Journal*, 41(2): 285-294.
- Hayduk W., B.S. Minhas, 1982. Correlations for prediction of molecular diffusivities in liquids. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 60(2): 295-299.
- Hesse M.A., A.W. Woods, 2010. Buoyant dispersal of CO<sub>2</sub> during geological storage. *Geophys. Res. Lett.*, 37, L01403, doi:10.1029/2009GL041128.
- Hirst W., G.E. Harrison (1939): The diffusion of radon gas mixtures. In: *Proceedings of the Royal Society of London, Series A*, 169(939), pp. 573-586.
- Hochman H. M., J. D. Rodger, 1969. Pareto optimal redistribution. *The American economic review*, p. 542-557, 1969.
- Holford D.J., H.D. Freeman, 1996. Effectiveness of a passive subslab ventilation system in reducing radon concentrations in a home. *Environ. Sci. Technol.*, 30: 2914-2920.
- Holford D.J. (1994). Rn3D: a finite element code for simulating gas flow radon transport in variably saturated, non-isothermal porous media. User's manual, version 1.0, PNL-8943; Pacific Northwest Laboratory, DEO, 1994.
- Holtz M.H. (2002): Residual gas saturation to aquifer influx: a calculation method for 3-D computer reservoir model construction (SPE 75502). In: Paper presented at SPE gas technology symposium, Calgary, Alberta, 30 April–2 May; 2002.
- Huang H.-C., Y.-C. Tan, C.-W. Liu, C.-H. Chen, 2005. A novel hysteresis model in unsaturated soil. *Hydrological Processes*, 19(8): 1653-1665.
- Ielsch G., C. Gréau, Z. Saâdi, N. Mansouri (2017): Influence of karsts on the radon production and migration: experimental data and numerical modelling (Fourbanne site, French Jura Mountains). In: *The 2017 AARST International Radon Symposium*, 01 - 04 October 2017, New Orleans, USA.
- Ielsch G., Z. Saâdi, C. Bertrand, G. Alcalde, E. Barker (2016): Influence of karstic environment on geogenic radon potential: first experimental results on the Fourbanne site (French Jura Mountains). In: *13th International Workshop on the Geological Aspects of Radon Risk Mapping (GARRM 13th)*, Oral presentation, Prague, Czech Republic, September 15-16, 2016.
- Ielsch G., Z. Saâdi, C. Bertrand, S. Denimal, G. Alcalde, E. Barker, C. Debayle, E. Manach (2016): Radon production and migration in the Fourbanne karst system (French Jura Mountains): preliminary results. In: *Eurokarst 2016 conference*, Oral presentation by Z. Saâdi, Neuchatel, Switzerland, September 05-09, 2016.
- Ielsch G., Z. Saâdi, C. Bertrand (2016) : Etude de l'influence des cavités souterraines naturelles (environnement karstique) sur le potentiel radon géogénique. Rapport d'étape : état de l'art, méthode et résultats de la première phase d'acquisition de données expérimentales. Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), Rapport Technique n° IRSN/PRP-DGE/2016-00028, 111 p. avec Annexes, 2016.
- Ippisch O., H.-J. Vogel, P. Bastian, 2006. Validity limits for the van Genuchten–Mualem model and implications for parameter estimation and numerical simulation. *Advances in Water Resources*, 29(12): 1780-1789.
- Irisarri F. (2009) : Stratégies de calcul pour l'optimisation multi-objectif des structures composites. Thèse de doctorat, 274p. Université de Toulouse III–Paul Sabatier, Toulouse, France, 2009.
- IRSN (2017) : *Projet de stockage Cigéo - Examen du Dossier d'Options de Sûreté*. Tome1. Rapport IRSN N° 2017-00013, 2017.
- Iskandar D., H. Yamazawa, T. Iida, 2004. Quantification of the dependency of radon emanation power on soil temperature. *Applied Radiation and Isotopes*, 60(6): 971-973.
- Jamet D., M. Chandesris, B. Goyeau, 2009. On the Equivalence of the Discontinuous One- and Two-Domain Approaches for the Modeling of Transport Phenomena at a Fluid/Porous Interface. *Transp. Porous Med.*, 78: 403–418. <https://doi.org/10.1007/s11242-008-9314-9>
- Johnson P.C., R.A. Ettinger, 1991. Heuristic model for predicting the intrusion rate of contaminant vapors into buildings. *Environ. Sci. Technol.*, 25: 1445-52.

- Justinavicius D. (2014): Investigation of gas migration in a geological repository. Summary of Doctoral Dissertation. Technological Sciences, Energetics and Power Engineering (06T), Lithuanian Energy Institute, Nuclear Engineering Laboratory, 2014, Kaunas, Lithuania, 36 p.
- Kaempfer Th.-U., Y. Mishin, J. Brommundt, J. Roger, E. Treille, N. Hubschwerlen, 2014. Extension and tuning of TOUGH2-MP/EOS7R for the assessment of deep geological repositories for nuclear waste: Hydrogen, arbitrarily long decay chains, and solubility limits. *Nuclear Technology*, 187(2) :131-146.
- Kakachi Z. (2020) : Analyse de propagation d'incertitudes dans les modèles Darcéen et de Fick de migration de l'hydrogène dans un site de stockage géologique profond des déchets radioactifs. Rapport de fin de stage M2R, Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire/PSE-ENV/SEDRE et Centrale Supélec, Décembre 2020, 42 p.
- Kalyanmoy D., A. Pratap, S. Agarwal, T. Meyarivan, 2002. A fast and elitist multiobjective genetic algorithm: NSGA-II. *IEEE transactions on evolutionary computation*, 6(2): 182-197.
- Kfoury M., R. Ababou, B. Noetinger, M. Quintard, 2004. Matrix-fracture exchange in a fractured porous medium: stochastic upscaling. (Coefficient d'échange matrice-fracture en milieu poreux fracturé : changement d'échelle par approche stochastique). *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences de Paris, C.R. de Mécanique*, 332 : 679-686, Elsevier.
- King D.B., W.J. De Bruyn, M. Zheng, E.S. Saltzman, 1995. Uncertainties in the molecular diffusion coefficient of gases in water for use in the estimation of air-sea exchange, In: Jähne B., Monahan E.C. (Ed.) *Air-Water Gas Transfer*, AEON Verlag and Studio, Hanau, p. 13-22.
- Kim J., G. J. Moridis, 2013. Development of the T+M coupled flow–geomechanical simulator to describe fracture propagation and coupled flow–thermal–geomechanical processes in tight/shale gas systems. *Computers & Geosciences*, 60: 184–198.
- Klinkenberg L. (1941): The permeability of porous media to liquids and gases. In: *Drilling and production practice*, OnePetro, 1941.
- Koffi J. (2009) : Analyse multicritère des stratégies de ventilation en maisons individuelles. *Energie électrique*. PhD Thesis (in French), Université de La Rochelle, pp. 224, 2009.
- Kohl T., F. Medici, L. Rybach, 1994. Numerical simulation of radon transport from subsurface to buildings. *J. Appl. Geophys.*, 31: 145-152.
- Krevor S.C., R. Pini, B. Li, S.M. Benson, 2011. Capillary heterogeneity trapping of CO<sub>2</sub> in a sandstone rock at reservoir conditions. *Geophysical Research Letters*, t. 38, no 15, 2011.
- Kuznetsov A.V., S.M. Becker (2004): Effect of the interface roughness on turbulent convective heat transfer in a composite porous/fluid duct. *Int. Commun. Heat Mass Transf.*, 31(1), 11–20.
- Land C.S., 1968. Calculation of imbibition relative permeability for two-and three-phase flow from rock properties. *Society of Petroleum Engineers Journal*, 8(2): 149-156.
- Lassin A., M. Dymitrowska, M. Azaroual, 2011. Hydrogen solubility in pore water of partially saturated argillites: Application to Callovo-Oxfordian clayrock in the context of a nuclear waste geological disposal, *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, 36(17–18): 1721-1728. ISSN 1474-7065, <https://doi.org/10.1016/j.pce.2011.07.092>
- Lenhard R., J. Parker, M.Th. van Genuchten, F. Leij, L. Lund (1992): Modeling multiphase fluid hysteresis and comparing results to laboratory investigations. In: *Proc. Intl. Workshop on Indirect Methods for Estimating the Hydraulic Properties of Unsaturated Soils*, edited by M. Th van Genuchten, FJ Leij, and LJ Lund, University of California, Riverside, 1992, p. 233-248.
- Lenhard R., J. Parker, 1987. A model for hysteretic constitutive relations governing multiphase flow: 2. Permeability-saturation relations. *Water Resources Research*, 23(12): 2197- 2206.
- Levasseur S., F. Collin, K. Daniels, M. Dymitrowska, J. Harrington, E. Jacops, O. Kolditz, P. Marschall, S. Norris, X. Sillen, J. Talandier, L. Truche, J. Wendling (2021): Initial State of the Art on Gas Transport in Clayey Materials. Deliverable D6.1 of the HORIZON 2020 project EURAD, Work Package Gas. EC Grant agreement no : 847593.
- Lins Y., Y. Zou, T. Schanz (2007): Physical Modeling of SWCC for Granular Materials. In: *Theoretical and Numerical Unsaturated Soil Mechanics*, T. Schanz (Ed.), Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2007, p. 61-74.
- Lions J. (2005) : Application de RADON2 au site de Kersaint. Rapport DEI/SARG/2005-025.
- Liu J.-F., Y. Song, F. Skoczylas, J. Liu, 2015. Gas migration through water-saturated bentonite–sand mixtures, CO<sub>x</sub> argillite, and their interfaces. *Canadian Geotechnical Journal*, 2016, 53(1) : 60-71, <https://doi.org/10.1139/cgj-2014-0412>
- Liu J.-F. (2013) : Etanchéité de l'interface argilite-bentonite re-saturée et soumise à une pression de gaz, dans le contexte du stockage profond de déchets radioactifs. Autre. Ecole Centrale de Lille, 2013. Français. NNT: 2013ECLI0011. tel-00951147
- Liu H.H., C.B. Haukwa, C.F. Ahlers, G.S. Bodvarsson, A.L. Flint, W.B. Guertal (2003): Modeling flow and transport in unsaturated fractured rock: an evaluation of the continuum approach. *Journal of Contaminant Hydrology*, 62-3:173–188.



- Loureiro C.O., L.M. Abriola, J.E. Martin, R.G. Sextro, 1990. Three-dimensional simulation of radon transport into houses with basements under constant negative pressure. *Environ. Sci. Technol.*, 24(9): 1338-1348.
- Luckner L., M.Th. van Genuchten, D.R. Nielsen, 1989. A consistent set of parametric models for the two-phase flow of immiscible fluids in the subsurface. *Water Resour. Res.*, 25(10): 2187-2193.
- Mace A., Rudolph D.L., Kachanoski R.G., 1998. Suitability of parametric models to describe the hydraulic properties of an unsaturated coarse sand and gravel. *Ground Water*, 36: 465-475.
- Manohar S.N., H.A.J. Meijer, M.A. Herber (2013): Radon flux maps for the Netherlands and Europe using terrestrial gamma radiation derived from soil radionuclides. *Atmospheric Environment*, 81: 399-412.
- Mansouri N., C. Gréau (2018) : Etude de l'influence des cavités souterraines naturelles (environnement karstique) sur le potentiel radon géogénique. Traitement des données, modélisation. Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN), Rapport Technique n° RT/PSE-ENV/2018-00025, 98 p. avec Annexes, 2018.
- Marie L. (2014) : Bassin minier houiller lorrain. Mesures de l'activité volumique du radon sur le bassin d'ennoyage. Concessions «DE WENDEL» et «SARRE et MOSELLE» - Etat final - Période hivernale. RT IRSN/PRP-DGE/2014-00014, 42p.
- Menaceur H. (2014) : Comportement thermo-hydro-mécanique et microstructure de l'argilite du Callovo-Oxfordien. Matériaux et structures en mécanique [physics.class-ph]. Université Paris-Est, 2014. Français. NNT : 2014PEST1167. tel-01164364
- Menard C., Z. Saâdi (2017) : Influence de la couche pédologique sur l'émanation et le transport du radon jusqu'en surface : méthodes de caractérisation du potentiel radon des sols à l'échelle de la parcelle. Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN), PRP-DGE/SEDRAN/BERAM, Rapport Technique, 112 p., Mars 2017.
- Meskini-Vishkaee F., M.H. Mohammadi, M. Vanclooster, 2014. Predicting the soil moisture retention curve, from soil particle size distribution and bulk density data using a packing density scaling factor. *Hydrology and Earth System Sciences*, 18: 4053-4063.
- Meslin P.-Y., P.M. Adler, J.-C. Sabroux, 2010. Diffusive transport of gases in wet porous media. Application to radon. *Soil Science Society of America Journal*, 74(6): 1871-1885.
- Millington R.J., J.M. Quirk, 1961. Permeability of porous solids. *Faraday Society Transactions* 57(7): 1200-1207.
- M'Jahad S., C.A. Davy, F. Skoczylas, J. Talandier, 2017. Characterization of transport and water retention properties of damaged Callovo-Oxfordian claystone. *Geological Society, London, Special Publications*, 443(1): 159-177, 2017.
- M'Jahad S. (2012) : Impact de la fissuration sur les propriétés de rétention d'eau et de transport de gaz des géomatériaux. Application au stockage profond des déchets radioactifs. Thèse de doctorat, Ecole Centrale de Lille, 2012.
- Molinero-Guerra A. (2018): Experimental and numerical characterizations of the hydro-mechanical behavior of a heterogeneous material: pellet/powder bentonite mixture. *Géotechnique*. Université Paris-Est, 2018. English. NNT: 2018PESC1022. tel-01982196
- Mosthaf K., K. Baber, B. Flemisch, R. Helmig, A. Leijnse, I. Rybak, B. Wohlmuth, 2011. A coupling concept for two-phase compositional porous-medium and single-phase compositional free flow. *Water Resour. Res.*, 47(10), W10522.
- Mowris R.J. (1986): Analytical and numerical models for estimating the effect of exhaust ventilation on radon entry in houses with basements or crawl spaces. Master of Science, Department of Civil, Environmental, & Architectural Engineering, Faculty of the Graduate School, University of Colorado, pp. 123 [Berkeley, CA, Lawrence Berkeley Laboratory; Report No. LBL-22067] 1986.
- Mualem Y., A. Beriozkin, 2009. General scaling rules of the hysteretic water retention function based on Mualem's domain theory. *European Journal of Soil Science*, 60(4): 652-661.
- Mualem Y., 1984. A modified dependent-domain theory of hysteresis. *Soil Science*, 137(5): 283-291.
- Mualem Y., 1976. A new model for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated porous media. *Water Resources Research*, 12(3): 513-522.
- Mualem Y., 1974. A conceptual model of hysteresis. *Water Resources Research*, 10(3), 514-520.
- Najafi B., E.A. Mason, J. Kestin, 1983. Improved corresponding states principle for noble gases. *Physica* 119(A): 387-440.
- Nazaroff W.W., 1992. Radon transport from soil to air. *Rev. Geophys.*, 30: 137-160.
- Nazaroff W.W., 1988. Predicting the rate of <sup>222</sup>Rn entry from soil into the basement of a dwelling due to pressure-driven air flow. *Radiat. Prot. Dosimetry*, 24: 199-202.



- Nazaroff W.W., H. Feustel, A.V. Nero, K.L. Revzan, D.T. Grimstud, M.A. Essling, R.E. Toohey, 1985. Radon transport into a detached one-story house with a basement. *Atmos. Environ.*, 19: 31-46.
- Navarro E. (2007) : Application de RADON2 au site de Kersaint. Etudes des paramètres liés à la ventilation. Rapport DEL/SARG/2007-006.
- Nero A.V., 1989. Earth, air, radon and home. *Phys. Today*, 42(4): 32-39.
- Neufeld P.D., A.R. Janzen, R.A. Aziz, 1972. Empirical equations to calculate 16 of the transport collision integrals  $\Omega(1,s)$  for the Lennard-Jones 12-6 potential. *Journal of Chemical Physics*, 57(3): 1100-1102.
- Nezmal M., M. Nezmal, 2005. Permeability as an important parameter for radon risk classification of foundation soils. *Annals of Geophysics*, 48(1): 175-180.
- Nielson K.K., V.C. Rogers, G.W. Gee, 1984. Diffusion of radon through soils: A pore distribution model. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 48: 482-487.
- Nielson K.K., V.C. Rogers, M.L. Mauch, J.N. Hartley, H.D. Freeman (1982): Radon emanation characteristics of uranium mill tailings. In: *Uranium Mill Tailings Management-V*, Colorado State University, Fort Collins, p. 335-368.
- Niemi A., G. Bodvarsson, 1988. Preliminary capillary hysteresis simulations in fractured rocks, Yucca Mountain, Nevada. *Journal of Contaminant Hydrology*, 3(2): 277-291; Rapid and Far-Reaching Hydrologic Processes in the Vadose Zone. [https://doi.org/10.1016/0169-7722\(88\)90036-8](https://doi.org/10.1016/0169-7722(88)90036-8).
- Ochoa-Tapia J.A., S. Whitaker, 1995a. Momentum transfer at the boundary between a porous medium and a homogeneous fluid. I: Theoretical development. *Int. J. Heat Mass Transf.*, 38: 2635-2646.
- Ochoa-Tapia J.A., S. Whitaker, 1995b. Momentum transfer at the boundary between a porous medium and a homogeneous fluid. II: Comparison with experiment. *Int. J. Heat Mass Transf.*, 38: 2647-2655.
- Oldenburg C., K. Pruess (1995): EOS7R: Radionuclide Transport for TOUGH2. Report LBL-34868, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, California, USA, 54p.
- Oostrom M., R.J. Lenhard, 1996. Radon transport into dwellings: considering groundwater as a source. *Geophysical Research Letters*, 23(13): 1577-1580.
- Parker J., R. Lenhard, T. Kuppusamy, 1987. A parametric model for constitutive properties governing multiphase flow in porous media. *Water Resources Research*, 23(4): 618- 624.
- Parker J., R. Lenhard, 1987. A model for hysteretic constitutive relations governing multiphase flow: 1. Saturation-pressure relations. *Water Resources Research*, 23(12): 2187-2196.
- Parlange J.-Y., 1976. Capillary hysteresis and the relationship between drying and wetting curves. *Water Resources Research*, 12(2): 224-228.
- Pazdniakou A., M. Dymitrowska, 2018. Migration of gas in water saturated clays by coupled hydraulic-mechanical model. *Geofluids*, Volume 2018, Article ID 6873298, 25 pages.
- Pellegrini D. (1997) : Etude de l'émanation du radon à partir de résidus de traitement de minerais d'uranium. Mise en évidence de relations entre le facteur d'émanation et les caractéristiques du matériau. Thèse de chimie-physique, U.F.R. des Sciences et Techniques de Franche-Comté, 1997.
- Pentland C.H., E. Isekiri, S.K. Al Mansoori, S. Iglauer, B. Bijeljic, J.B. Martin, 2010. Measurement of nonwetting-phase trapping in sandpacks. *SPE J.*, 15: 274-281. doi: <https://doi.org/10.2118/115697-PA>
- Perrier F., F. Girault, 2012. Measuring effective radium concentration with less than 5 g of rock or soil. *Journal of Environmental Radioactivity*, 113: 45-56.
- Perrier F., P. Richon, J.-C. Sabroux, 2009. Temporal variations of radon concentration in the saturated soil of Alpine grassland: The role of groundwater flow. *Science of the Total Environment*, 407: 2361-2371.
- Perrier F., P. Richon, U. Gautam, D.R. Tiwari, P. Shrestha, S.N. Sapkota, 2007. Seasonal variations of natural ventilation and radon-222 exhalation in a slightly rising dead-end tunnel. *J. Environ. Radioactiv.*, 97(2-3): 220-235.
- Perrier F., P. Richon, J.C. Sabroux, 2005. Modelling the effect of air exchange on radon-222 and its progeny concentration in a tunnel atmosphere. *Sci. Total Environ.*, 350: 136-150.
- Pham Q.T., F. Vales, L. Malinsky, D.N. Minh, H. Gharbi, 2007. Effects of desaturation-resaturation on mudstone. *Physics and Chemistry of the Earth*, 32: 646-655.

- Pham Q.T. (2006) : Effets de la désaturation et de la resaturation sur l'argilite dans les ouvrages souterrains. Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique X, 2006.
- Pham H.Q., D.G. Fredlund, S.L. Barbour, 2005. A study of hysteresis models for soil-water characteristic curves. *Canadian Geotechnical Journal*, 42(6): 1548-1568.
- Philip J. R., 1957. The theory of infiltration: 1. The infiltration equation and its solution. *Soil Science*, 83(5): 345-358.
- Pruess K., C. Oldenburg, G.J. Moridis (2011): TOUGH2 User's Guide, Version 2.0. Report LBNL-43134 revised, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, California, USA, 197p.
- Pruess K., M.J. O'Sullivan, B.M. Kennedy (2000): Modeling of phase-partitioning tracers in fractured reservoirs. In: *Proceedings of the Twenty-Fifth Workshop on Geothermal Reservoir Engineering*, Stanford University, Stanford, CA, January 24–26, SGP-TR-165, LBNL-44802, pp. 167-173.
- Pruess K., C. Oldenburg, G. Moridis (1999): TOUGH2 User's Guide, Version 2.0. LBNL-43134, Lawrence Berkeley National Laboratory, 1999.
- Pruess K., 1991. TOUGH2: A general-purpose numerical simulator for multiphase fluid and heat flow, Report LBNL-29400, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, CA.
- Pruess K., 1987. TOUGH User's Guide, Nuclear Regulatory Commission Report NUREG/CR-4645; also Report LBL-20700, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, CA.
- Przylibski T.A., 1999. Radon concentration changes in the air of two caves in Poland. *Environmental Radioactivity*, 45: 81-94.
- Qiao Y., A. Tuttolomondo, X. Lu, L. Laloui, W. Ding, 2021. A generalized water retention model with soil fabric evolution. *Geomechanics for Energy and the Environment*, Volume 25, 2021, 100205, ISSN 2352-3808, <https://doi.org/10.1016/j.gete.2020.100205>
- Raeesi B., N.R. Morrow, G. Mason, 2014. Capillary pressure hysteresis behavior of three sandstones measured with a multistep outflow–inflow apparatus. *Vadose Zone Journal*, 13(3): 1539-1663. <https://doi.org/10.2136/vzj2013.06.0097>
- Rapport IRSN/PRP-CRI/SIAR/2016-00365. Investigations radiologiques à Saint Germain sur Moine (49) : 8 Lieu-dit Le Moulin de la Breauderie.
- Rapport IRSN/DEI/SARG/2009-011. Cartographie du potentiel radon des formations géologiques à l'échelle du 1/1 000 000, Méthode générale. Et rapports décrivant les résultats obtenus ; rapports IRSN/DEI : SARG-2009-013, SARG-2009-014, SARG-2009-015, SARG-2009-016, SARG-2009-017, SARG-2009-018, SARG-2010-004, SARG-2010-005, SARG-2010-006, SARG-2010-007, SARG-2010-008, SARG-2010-009, SARG-2010-010, SARG-2010-011, SARG-2010-012, SARG-2010-013, SARG-2010-014, SARG-2010-016, SARG-2010-017, SARG-2010-018, SARG-2010-019, SARG-2010-020, SARG-2010-022, SARG-2010-023
- Reid R.C., J.M. Prausnitz, B.E. Poling (1987): *The Properties of Gases and Liquids*, 4th edn., McGraw-Hill, New York, 741pp.
- Renard P., Bertrand C. (eds) (2016): *Advances in Karst Science*. Springer, Cham. EuroKarst 2016, Neuchâtel. [https://doi.org/10.1007/978-3-319-45465-8\\_13](https://doi.org/10.1007/978-3-319-45465-8_13)
- Renard F. (2012) : Conséquences d'un relâchement d'eau lourde sur les eaux souterraines. Rapport Commissariat à l'Energie Atomique et aux énergies alternatives, Centre DAM Ile de France, Centre de Saclay, installation Orphée, DASE/SRCE, Bruyères-le-Châtel, N° EP : A4-ORPHEE-02-01-10-01, June 2012, 35p.
- Renou M. (2020): Two-Phase Flow and Transport Modeling in Porous Media, for Application to a Radioactive Repository: Validation and Sensitivity Analyses. Rapport de stage M2R, IMFT Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse, septembre 2020.
- Revzan K.L., W.J. Fisk, 1992. Modeling radon entry into houses with basements: the influence of structural factors. *Indoor Air*, 2: 40-48.
- Revzan K.L., W.J. Fisk, A.J. Gadgil, 1991. Modeling radon entry into houses with basements: model description and verification. *Indoor Air*, 2: 173-189.
- Richon P. (2011) : Le radon-222 traceur de la dynamique des systèmes géologiques : Méthodologie et traitement du signal, interprétation du comportement du radon-222 en milieux géologiques actifs. Thèse de doctorat en Géochimie, Institut de physique du globe, Paris.
- Rogers V., K. Nielson, V.C. Rogers, R. Holt (1996): RAETRAD-F: version 1.1 user's guide for analyzing site-specific measurements of soil radon potential category for Florida houses. U.S. Environmental Protection Agency, Washington, D.C., EPA/600/R-96/126 (NTIS PB97-115364), 1996.

- Rogers V.C., K.K. Nielson, 1991a. Multiphase radon generation and transport in porous materials. *Health Physics*, 60(6): 807-815.
- Rogers V.C., K.K. Nielson, 1991b. Correlations for predicting air permeabilities and  $^{222}\text{Rn}$  diffusion coefficients of soils. *Health Physics*, 61(2): 225-230.
- Rosenzweig R., U. Shavit, 2007. The laminar flow field at the interface of a Sierpinski carpet configuration, *Water Resour. Res.*, 43, W10402, doi:10.1029/2006WR005801
- Runeberg N., P. Pyykkö, 1998. Relativistic pseudopotential calculations on  $\text{Xe}_2$ ,  $\text{RnXe}$ , and  $\text{Rn}_2$ : the van der Waals properties of radon. *International Journal of Quantum Chemistry*, 66(2): 131-140.
- Rutqvist J., 2011. Status of the TOUGH-FLAC simulator and recent applications related to coupled fluid flow and crustal deformations. *Computers & Geosciences*, 37(6): 739-750.
- Saâdi Z., A. Amri, R. Ababou (2022): Modeling two-phase flow with entry pressure and hysteresis: application to gas transport in deep geological structures. In: CLAY 2022: 8th Internat. Conf. on Clays in Natural & Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement (13-16 June 2022, Nancy, France). Extended abstract. #CLAY00629 [TOPIC 03: Fluid (water, gas) transport & solute migration] <https://hopsotch.key4events.com/AbstractList.aspx?e=190&g=2bf8b675-5cc9-4885-a4a8-738e06ba32f6&preview=1&aig=-1&ai=13952&stamp>
- Saâdi Z., N. Mansouri, L. Marie, G. Ielsch, 2021. Towards a better assessment model of transient radon concentrations in dwellings basements for the study of soil depressurization systems designs. *Journal of Environmental Radioactivity*, Volumes 235–236, Article 106651, 2021. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2021.106651>
- Saâdi Z., M. Dymitrowska, F. Deleruyelle, F. Marsal, 2020. An evaluation model of the impact of hydrogen 'piston effect' on water displacement in a deep geological repository for radioactive waste. *Environmental Earth Sciences*, 79: 434.
- Saâdi Z., A. Amri, R. Ababou (2020): A revisited compositional two-phase flow model for the simulation of gas transport at different scales in the heterogeneous porous structure of a deep HLW disposal facility. InterPore 2020 (The 12th Annual Meeting): In (MS7) Mathematical and numerical methods for multi-scale multi-physics, nonlinear coupled processes, pp. 36-37, 31 August-4 September 2020, Qingdao, China.
- Saâdi Z., A. Amri, R. Ababou (2019): Evaluation of some models of gas transport at different scales in a deep geological repository. In: Proceedings of the workshop Advances in the SIMulation of reactive flow and TRANsport in porous Media (SITRAM'19), Keynote speaker, Book of Abstracts, p. 15, Pau, France, December 2-3, 2019. [Sitram2019\\_Saadi\\_2.pdf](#) (sciencesconf.org) - [Sitram.pdf](#) (sciencesconf.org).
- Saâdi Z., M. Dymitrowska, L. Pan, F. Deleruyelle, N. Mokni, F. Marsal (2018): A simplified mechanistic model for studying the impact of hydrogen 'piston effect' on water displacement in a deep geological repository for radioactive waste. TOUGH Symposium 2018, 8-10 October 2018, Berkeley, USA, Extended abstract, 5 p. 2018.
- Saâdi Z., 2018. Comparison between equivalent continuum and discrete crack models of transient radon transport at the soil-building foundation crack interface using TOUGH2/EOS7Rn. *Transp. Porous Med.*, 123 : 477–500. DOI: <https://doi.org/10.1007/s11242-017-0994-x>
- Saâdi Z., L. Marie, 2017. An experimental and numerical study on radon transport from UMT-contaminated sand to a house basement under variable weather conditions. *J. Environ. Chem. Eng.*, 5: 3667–3683. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jece.2017.07.017>
- Saâdi Z., Marie L., Ielsch G. (2017): An efficient numerical model for simulating radon concentration variations in dwellings basements under time-dependent negative pressure fluctuations indoors. In: Proceedings of The 4th International Conference on Radioecology & Environmental Radioactivity, Poster presentation, Berlin, 3-8 September, 2017.
- Saâdi Z. (2017a) : Modèle mathématique de transport du radon dans le continuum Bâtiment-Bassin Géologique-Cavité souterraine (B2GC). Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), NT/PRP-DGE/2017-00003, pp. 52, Octobre 2015.
- Saâdi Z. (2017b) : Développement du nouveau module TOUGH2/EOS7Rn pour la modélisation de l'émanation et de transport du radon dans la géosphère. Vérification numérique et validation expérimentale. Note technique PRP-DGE n° 2017-00006, Mars 2017, pp. 106.
- Saâdi Z. (2017c) : Etat de l'art sur les méthodes de caractérisation du potentiel radon du sol d'un site non-constructible. Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), NT/PRP-DGE/2021-000XX, 47 p. (soumis).
- Saâdi Z., J. Guillevic, 2016. Comparison of two numerical modelling approaches to a field experiment of unsaturated radon transport in a covered uranium mill tailings soil (Lavaugrasse, France). *Journal of Environmental Radioactivity*, 151: 361–372, 2016. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2015.03.019>

- Saâdi Z. (2015): Numerical modelling of radon transport from soil to a house basement under variable weather conditions. In: Radon in the Environment 2015 conference, Oral presentation, Book of Abstracts, p. 35, Krakow, Poland, May 25-29, 2015. RADON 2015 Krakow, Poland ([ipb.ac.rs](http://ipb.ac.rs))
- Saâdi Z., J. Guillevic (2015): Comparison between equivalent continuum and discrete crack models of transient radon transport at the soil-building foundation crack interface using TOUGH2/EOS7Rn. In: Blanco-Martin L. et al. (Eds), Proceedings, TOUGH Symposium 2015, Session Environmental Engineering and Vadose Zone, Oral presentation, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, California, September 28-30, 2015, 439-465 p. [Proceedings\\_TOUGHSymposium2015\\_newest8.pdf](#) ([lbl.gov](http://lbl.gov))
- Saâdi Z., 2014. On the air-filled effective porosity parameter of Rogers and Nielson's (1991) bulk radon diffusion coefficient in unsaturated soils. *Health Physics*, 106(5): 598-607, 2014.
- Saâdi Z., D. Gay, J. Guillevic, R. Améon, 2014. EOS7Rn—A New TOUGH2 module for simulating radon emanation and transport in the subsurface. *Computers & Geosciences*, 65: 72-83. <http://dx.doi.org/10.1016/j.cageo.2013.09.003>
- Saâdi Z. (2014): TOUGH2/EOS7Rn as a reliable numerical modelling tool for the exploration of fractured groundwater and geothermal reservoirs. In: First international symposium on Energy Challenges and Mechanics, Session 04: Reservoir simulation, Aberdeen, Scotland, UK, July 10, 2014. <https://nscj.co.uk/ecm1/sessions/session04.html>
- Saâdi Z., J. Guillevic (2014): Comparison of two numerical modelling approaches to a field experiment of unsaturated radon transport in a covered uranium mill tailings soil (Lavaugrasse, France). In: Proceedings of The 3rd International Conference on Radioecology & Environmental Radioactivity, Barcelona, 7-12 September, 2014.
- Saâdi Z. (2013): Numerical verification and experimental validation of the TOUGH2/EOS7Rn module for non-isothermal radon transport in two-phase porous and fractured media. In: Journées Multiphasiques, Modélisation Mathématique et Scientifique, MoMaS, Abstracts 2013, Keynote speaker, Institut des Hautes Etudes Scientifiques IHES, Bures-sur-Yvette, France, 7-9 October, 2013. [https://www.imo.universite-paris-saclay.fr/~gtanl/resumes\\_des\\_seminaires\\_MoMas2013.pdf](https://www.imo.universite-paris-saclay.fr/~gtanl/resumes_des_seminaires_MoMas2013.pdf)
- Saâdi Z., D. Gay, J. Guillevic, R. Améon (2012): EOS7RN—A New TOUGH2 module for simulating radon emanation and transport in the subsurface. In: Finsterle et al. (Eds), Proceedings, TOUGH Symposium 2012, session VIII Environmental Engineering, Oral presentation, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, California, September 17-19, pp. 481-489, 2012. <https://escholarship.org/uc/item/8pr8n5mv>
- Saâdi Z. (2001) : Premières tentatives de modélisation des transferts d'eau et d'azote dans les sols agricoles de Mnasra (Nord-Ouest du Maroc). Thèse de doctorat en physique, Mécanique des Fluides, Faculté des Sciences, Kénitra, Maroc, 299 p.
- Saâdi Z., A. Maslouhi, M. Zéraouli, J.-P. Gaudet, 2000. First attempts for predicting seasonal nitrate concentration variations at Mnasra aquifer (Morocco). *Environmental Technology*, 21(6): 671-680. DOI: <https://doi.org/10.1080/09593332108618078>
- Sasaki T., Y. Gunji, T. Okuda, 2004. Mathematical modeling of radon emanation. *Journal of Nuclear Science and Technology* 41(2): 142-151.
- Satomi K., P. Kruger (1982): Radon emanation mechanism from finely ground rocks. Report SGP-TR-63, Stanford University, Stanford, CA, 77pp.
- Schery S.D., S. Whittlestone, 1989. Desorption of radon at Earth's surface. *Journal of Geophysical Research* 94(D15): 18 297-18 303.
- Schubert M., A. Paschke, E. Lieberman, W.C. Burnett, 2012. Air-water partitioning of 222Rn and its dependence on water temperature and salinity. *Environmental Science & Technology*, 46(7): 3905-3911.
- Scott P., 1983. Hysteretic effects on net infiltration. *Advances in infiltration*, p. 163-170, 1983.
- Sentís M.L., C.W. Gable, 2017. Coupling LaGrit unstructured mesh generation and model setup with TOUGH2 flow and transport: A case study. *Computers & Geosciences*, 108: 42-49.
- Sentís M.L., 2014. Two-phase flow modeling with TOUGH2-MP of a deep geological repository within the first benchmark of the FORGE project. *Nuclear Technology*, 187(2): 117-130.
- Semprini L., P. Kruger (1983): Simulation of radon transport in geothermal reservoirs. In: Proceedings Ninth Workshop Geothermal Reservoir Engineering, Stanford University, Stanford, California, USA, pp. 261-268.
- Shan C., K. Pruess, 2004. EOSN — A new TOUGH2 module for simulating transport of noble gases in the subsurface. *Geothermics*, 33(4): 521-529.
- Shan C., K. Pruess (2003): EOSN: A TOUGH2 Module for Noble Gases. Report LBNL-52379, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, CA, USA, 28pp.

- Shavit U., 2009. Special issue: Transport phenomena at the interface between fluid and porous domains. *Transp. Porous Med.*, 78(3): 327-540.
- Song Y. (2014) : Rétention d'eau et microstructure fine de l'argilite de Bure. Thèse de doctorat, Ecole centrale de Lille, 2014.
- Somerton W., A. El-Shaarani, S. Mobarak (1974): High temperature behaviour of rocks associated with geothermal type reservoirs, Society of Petroleum Engineers, Paper SPE-4897, presented at 48th Annual California Regional Meeting of the Society of Petroleum Engineers.
- Spizzico M., 2005. Radium and radon content in the carbonate-rock aquifer of the southern Italian region of Apulia. *Hydrogeology Journal*, 13: 493–505. <https://doi.org/10.1007/s10040-004-0380-y>
- Stavropoulou E. (2017) : Comportement différé des interfaces argilite/béton : caractérisation et modélisation. Mécanique des solides [physics.class-ph]. Université Grenoble Alpes, 2017. Français. NNT: 2017GREAI077. tel-01718614
- Stephens D.B., K.R. Rehfeldt, 1985. Evaluation of closed-form analytical models to calculate conductivity in a fine sand. *Soil Science Society of America Journal*, 49(1): 12-19.
- Suzanne K., G. Hamon, J. Billiotte, V. Trocme (2003): Experimental relationships between residual gas saturation and initial gas saturation in heterogeneous sandstone reservoirs. In: SPE Annual Technical Conference and Exhibition, Society of Petroleum Engineers, 2003. doi: <https://doi.org/10.2118/84038-MS>
- Taconet O., R. Bernard, D. Vidal-Madjar, 1986. Evapotranspiration over an agricultural region using a surface flux/temperature model based on NOAA-AVHRR data. *J. Clim. Appl. Meteorol.*, 25: 284-307.
- Tadolini T., M. Spizzico, 1998. Relation between "terra rossa" from the Apulia aquifer of Italy and the radon content of groundwater: Experimental results and their applicability to radon occurrence in the aquifer. *Hydrogeology Journal*, 6: 450–454. <https://doi.org/10.1007/s100400050167>
- Talandier J. (2008): Benchmark Couplex-Gaz. Synthèse des résultats et enseignements – Direction Scientifique MOMAS – Journées Multiphasiques - Septembre 2008.
- Tang K.T., J.P. Toennies, 2003. The van der Waals potentials between all the rare gas atoms from He to Rn. *Journal of Chemical Physics*, 118(11): 4976-4983.
- Tang K.T., J.P. Toennies, 1986. New combining rules for well parameters and shapes of the van der Waals potential of mixed rare gas systems. *Zeitschrift für Physik D Atoms, Molecules and Clusters*, 1(1): 91-101.
- Tang K.T., J.P. Toennies, 1984. An improved simple model for the van der Waals potential based on universal damping functions for the dispersion coefficients. *Journal of Chemical Physics*, 80(8): 3726-3741.
- Tanner A.B., 1988. A tentative protocol for measurement of radon availability from the ground. *Radiat. Prot. Dosimetry*, 24(1/4): 79-83.
- Terleev V., W. Mirschel, A. Nikonorov R. Ginevsky, V. Lazarev, A. Topaj, K. Moiseev, K. Layshev, M. Arkhipov, A. Melnichuk, I. Dunaieva, V. Popovych (2018): Five models of hysteretic water-retention capacity and their comparison for sandy soil. *MATEC Web Conf.* 193 02036 (2018), DOI: 10.1051/mateconf/201819302036, t. 193, p. 02036.
- Thom A.S., 1972. Momentum, mass and heat exchange of vegetation. *Quart. J.R. Met. Soc.*, 98:124-134.
- Thunderhead engineering (2010). *PetraSim user manual*, Version 5.0.
- Trevisan L. (2015): Study of trapping mechanisms of supercritical carbon dioxide in deep heterogeneous geological formations through intermediate-scale testing and modeling. PhD thesis, Colorado School of Mines, Department of Environmental Science and Engineering, 178 p.
- Trevisan L., A. Cihan, F. Fagerlund, E. Agartan, H. Mori, J.T. Birkholzer, Q. Zhou, T.H. Illangasekare, 2014. Investigation of mechanisms of supercritical CO<sub>2</sub> trapping in deep saline reservoirs using surrogate fluids at ambient laboratory conditions. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 29: 35-49. ISSN 1750-5836, <https://doi.org/10.1016/j.ijggc.2014.07.012>.
- Tsang Y.W., T.N. Narasimhan, 1992. Effects of periodic atmospheric pressure variation on radon entry into buildings. *J. Geophys. Res.*, 97(B6): 9161-9170.
- Twarakavi N.K., H. Saito, J. Šimunek, M.Th. van Genuchten, 2008. A new approach to estimate soil hydraulic parameters using only soil water retention data. *Soil Science Society of America Journal*, 72(2): 471-479.
- Unger A.J.A., S. Finsterle, G.S. Bodvarsson, 2004. Transport of radon gas into a tunnel at Yucca Mountain—Estimating large-scale fractured tuff hydraulic properties and implications for the operation of the ventilation system. *Journal of Contam. Hydrol.*, 70(3-4): 153–171. [doi:10.1016/j.jconhyd.2003.07.001](https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2003.07.001)



- Valdés-Parada F.J., D. Lasseux, 2021. A novel one-domain approach for modeling flow in a fluid-porous system including inertia and slip effects. *Physics of Fluids* 33, 022106 (2021). <https://doi.org/10.1063/5.0036812>
- Van der Spoel W.H. (1998): Radon transport in sand: a laboratory study. PhD Thesis, Eindhoven, the Netherlands; Eindhoven University of Technology, 1998.
- Van Genuchten M.Th., F.J. Leij, S.R. Yates (1991): The RETC Code for Quantifying the Hydraulic Functions of Unsaturated Soils. Report EPA/600/2-91/065, R.S. Kerr Environ. Res. Laboratory, US Environmental Protection Agency, Ada, Oklahoma; p. 85, December 1991.
- Van Genuchten M.Th., 1980. A closed form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. *Soil Sci Soc. Am. J.*, 44:892–898.
- Vaupotic J., 2008. Nanosize radon short-lived decay products in the air of the Postojna Cave. *Science of the Total Environment*, 393: 27-38.
- Verma S., K. Aziz (1997): A control volume scheme for flexible grids in reservoir simulation. In: *Proceedings of SPE Reservoir Simulation Symposium*, Dallas, Texas.
- Vogel T., M. Cislérova, 1988. On the reliability of unsaturated hydraulic conductivity calculated from the moisture retention curve. *Transp. Porous Med.*, 3: 1–15.
- Vogel T., M.Th. Van Genuchten, M. Cislérova, 2001. Effect of the shape of the soil hydraulic functions near saturation on variably-saturated flow predictions. *Advances in Water Resources*, 24(2): 133-144.
- Von Gunten H.R., H. Surbeck, E. Rössler, 1996. Uranium Series Disequilibrium and High Thorium and Radium Enrichments in Karst Formations. *Environ. Sci. Technol.*, 30(4): 1268–1274.
- Wan M., P. Delage, A.M. Tang, J. Talandier, 2013. Water retention properties of the Callovo-Oxfordian claystone. *International J. of Rock Mech. & Mining Sci.*, 64: 96-104. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.ijrmms.2013.08.020>
- Wang H., W. Xu, M. Cai, J. Zuo, 2016. An experimental study on the slippage effect of gas flow in a compact rock. *Transp. Porous Med.*, 112(1): 117-137.
- Wang F., I.C. Ward, 2000. The development of a radon entry model for a house with a cellar. *Building and Environment*, 35: 615-631.
- Wassermann J., J.C. Sabroux, S. Pontreau, S. Bondiguel, S. Guillon, P. Richon, E. Pili, 2011. Characterization and monitoring of the excavation damaged zone in fractured gneisses of the Roselend tunnel, French Alps. *Tectonophysics*, Volume 503, Issues 1–2, 2011, Pages 155-164, ISSN 0040-1951. <https://doi.org/10.1016/j.tecto.2010.10.013>
- Wendling J., D. Justinavicius, M. Sentís, B. Amaziane, A. Bond, N. J. Calder, E. Treille, 2019. Gas transport modelling at different spatial scales of a geological repository in clay host rock. *Environ. Earth Sci.* 78: 221, 2019. <https://doi.org/10.1007/s12665-019-8230-3>.
- Wendling J., L. Yu, E. Treille, M. Dymitrowska, D. Pellegrini, E. Ahusborde, M. Jurak, B. Amaziane, F. Caro, A. Genty, P. Poskas, D. Justinavicius, M. Sentís, S. Norris, A. Bond, H. Leung, and N.J. Calder (2013a): Final report on benchmark studies on repository-scale numerical simulations of gas migration. Part 1: cell scale benchmark. FORGE Deliverable Report D1.6-R, Luxembourg: European Commission, 168 p., 2013.
- Wendling J., E. Treille, M. Dymitrowska, D. Pellegrini, E. Ahusborde, M. Jurak, B. Amaziane, F. Caro, A. Genty, P. Poskas, D. Justinavicius, M. Sentís, S. Norris, A. Bond, H. Leung, N.J. Calder (2013b): Final report on benchmark studies on repository-scale numerical simulations of gas migration. Part 2: module scale benchmark. FORGE Deliverable Report D1.6-R. Luxembourg: European Commission, 171 p., 2013.
- Wilke C.R., P. Chang, 1955. Correlation of diffusion coefficients in dilute solutions. *American Institute of Chemical Engineers Journal* 1(2): 264-270.
- Wilke C.R., C.Y. Lee, 1955. Estimation of diffusion coefficients for gases and vapors. *Industrial and Engineering Chemistry*, 47(6): 1253-1257.
- Webb S., Z. Saâdi (2016): iT2IRSN-Radon: Modification of iTOUGH2 for Atmospheric Boundary Conditions Including the Effect of Plants Including Radon. Canyon Ridge Consulting Report, CRC2016-0001-Draft, November 2016.
- Webb S., J. Phelan (2003): Implementation of land surface boundary conditions in TOUGH2. *Proceedings of TOUGH Symposium 2003*, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, California, May 12-14, 2003.
- Xiong Y., P. Fakcharoenphol, P.H. Winterfeld, Y.-S. Wu (2013): User's guide of TOUGH2-EGS-MP: A Massively Parallel Simulator with Coupled Geomechanics for Fluid and Heat Flow in Enhanced Geothermal Systems. Technical Report December 2013.
- Xu T., R. Senger, S. Finsterle, 2008. Corrosion-induced hydrogen generation in a nuclear waste repository: reactive geochemistry and multiphase flow effects. *Appl. Geochem.*, 23: 3423–3433.



- Yaws C.L., J.R. Hopper, X. Wang, A.K. Rathinsamy, R.W. Pike, 1999. Calculating solubility and Henry's law constants for gases in water. *Chemical Engineering*, 106(6): 102-105.
- Yaws C.L. (1999): *Chemical Properties Handbook: Physical, Thermodynamic, Environmental, Transport, Safety, and Health related Properties for Organic and Inorganic Chemicals*, McGraw-Hill, New York, 779pp.
- Yu S., A.J.A. Unger, B. Parker, 2009. Simulating the fate and transport of TCE from groundwater to indoor air. *J. Contam. Hydrol.*, 107(3-4): 140-161.
- Yuan H. (2017) : *Caractérisation expérimentale de propriétés poromécaniques et de transfert de l'argilite du CO<sub>2</sub>*. Thèse de doctorat, Ecole Centrale de Lille, Génie Civil, Laboratoire de Mécanique de Lille, France, 2017, p. 1-125.
- Zahorowski W., S.D. Chambers, A. Henderson-Sellers, 2004. Ground based radon-222 observations and their application to atmospheric studies, *Journal of Environmental Radioactivity*, Volume 76, Issues 1-2, 2004, Pages 3-33, ISSN 0265-931X, <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2004.03.033>
- Zhang Z., M. Thiéry, V. Baroghel-Bouny, 2014. A review and statistical study of existing hysteresis models for cementitious materials. *Cement and Concrete Research*, 57: 44-60. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2013.12.008>.
- Zhang K., Y.-S. Wu, K. Pruess (2008): *User's Guide for TOUGH2-MP — A Massively Parallel Version of the TOUGH2 Code*. LBNL-315E, Lawrence Berkeley National Laboratory, University of California, Berkeley, CA 94720.
- Zhang C., T. Rothfuchs, 2004. Experimental study of the hydro-mechanical behavior of the Callovo-Oxfordian argillite. *Applied Clay Science*, 26: 325-336.
- Zhao B., C. W. Macminn, H. E. Huppert, R. Juanes, 2014. Capillary pinning and blunting of immiscible gravity currents in porous media. *Water Resources Research*, 50(9): 7067-7081.
- Zhuo W., T. Iida, M. Furukawa, 2006. Modeling radon flux density from the Earth's surface. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 43(4): 479-482.

# Annexes

## ANNEXE A : Appareils de mesure des propriétés physiques et radiologiques des sols

### A.1 Principe de la méthode de mesure de la perméabilité à l'air des sols par l'appareil RADON-JOK

L'appareil RADON-JOK, développé par la société RADON v.o.s., est un équipement portable, robuste, autonome et simple d'utilisation (Figure A-1). Il permet de mesurer *in situ* la perméabilité aux gaz des sols à l'aide d'une aspiration d'air au moyen d'une pression négative (Neznal et Neznal, 2005). Le gaz du sol est pompé à pression constante, grâce à des poids, à travers une canne de prélèvement enfoncée dans le sol et reliée à un soufflet de deux litres, préalablement vidé de son air. Considérant un sol homogène, la perméabilité aux gaz du sol est calculée sur la base de l'équation de Darcy. Elle est donc déterminée à partir du débit d'extraction de l'air du sol à travers la canne de prélèvement et donc du temps nécessaire pour remplir le soufflet selon la formule suivante :

$$Q = F \frac{k}{\mu} \Delta p$$

Avec,  $Q$  ( $\text{m}^3/\text{s}$ ) est le flux d'air,  $F$  (m) est le facteur de forme de la sonde,  $k$  ( $\text{m}^2$ ) la perméabilité du sol au gaz,  $\mu$  (Pa.s) est la viscosité dynamique de l'air, et  $\Delta p$  (Pa) la différence de pression entre la surface et l'aire active de la sonde.



Figure A-1 – Appareil RADON-JOK utilisé pour la mesure de la perméabilité à l'air des sols.

### A.2 Principe de la méthode de mesure de flux surfacique d'exhalation du radon par la méthode « d'accumulation » (norme NF EN ISO 11665-7)

La méthode de mesure « d'accumulation » est décrite dans la norme NF EN ISO 11665-7. Elle consiste à déterminer, après un temps d'accumulation donné, l'activité volumique du radon dans un conteneur dont la face ouverte est appliquée sur le sol étudié. Ce conteneur possède sur sa face fermée un orifice obturé par un bouchon caoutchouc au travers duquel un prélèvement d'air est effectué à l'aide de fioles scintillantes (Figure A-2).

Connaissant l'activité volumique dans le conteneur, la durée d'accumulation et le volume d'accumulation, le flux d'exhalation peut être estimé.

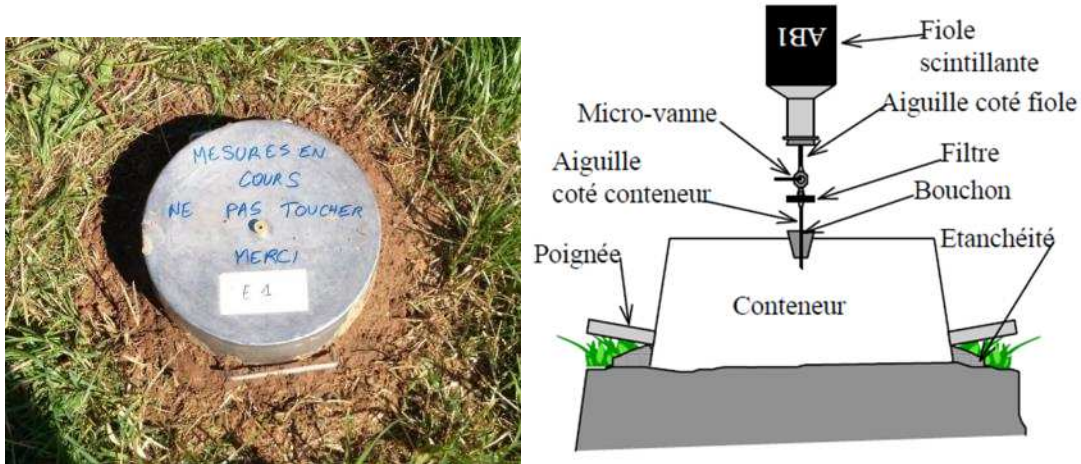


Figure A-2 – Photographie d'un volume d'accumulation mis en place pour la mesure d'un flux surfacique d'exhalation du radon et schéma du principe de la mesure

### A.3 Principe de la méthode de mesure ponctuelle de l'activité volumique du radon-222 dans l'air du sol

L'activité volumique du radon dans l'air du sol est mesurée conformément aux exigences de la norme NF ISO 11665-6. La technique utilisée consiste à effectuer un prélèvement ponctuel actif d'un volume d'air préalablement filtré à l'instant  $t$ , puis à introduire cet échantillon préfiltré dans une chambre de détection. Le prélèvement d'air est réalisé au moyen d'une canne creuse introduite dans le sol à une profondeur d'environ 50 cm reliée à une fiole scintillante de type Lucas de 125 cm<sup>3</sup>, préalablement mise sous vide (Figure A-3). Deux échantillons d'air par point sont prélevés successivement. La mesure est doublée sur chaque site (deux points).

Les parois latérales internes de la fiole sont tapissées d'une couche de sulfure de zinc activé à l'argent sensible au rayonnement alpha. Lorsqu'une particule  $\alpha$  frappe le sulfure de zinc celui-ci absorbe son énergie et émet de la lumière dans le visible. Le signal lumineux est converti en signal électrique au moyen d'un photomultiplicateur. Il est proportionnel au nombre de noyaux de radon qui se sont désintégrés.

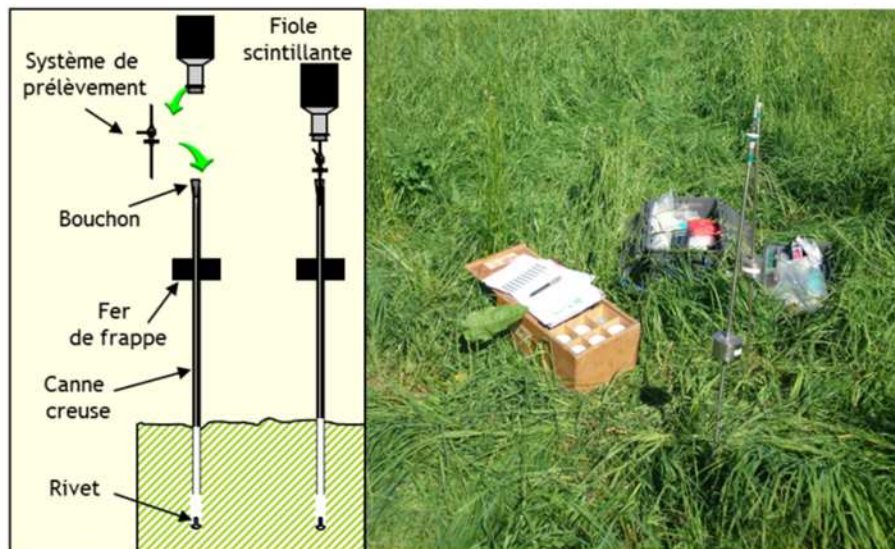


Figure A-3 – Système de prélèvement d'air utilisé pour la mesure ponctuelle de l'activité volumique du radon dans l'air du sol.

#### A.4 Principe de mesure en continu de l'activité volumique du radon-222 dans l'air du sol par la sonde BMC2

La sonde BMC2 permet de réaliser la mesure en continu de l'activité volumique du radon dans les sols (conformément aux exigences de la norme NF ISO 11665-5) associée aux paramètres environnementaux. Elle mesure l'isotope 222 du radon grâce à un détecteur silicium placé dans une enceinte fermée protégée par des filtres. La présence d'un volume mort situé à l'entrée de la sonde permet de s'affranchir de l'isotope 220 du radon. Alimentée par un boîtier de piles alcalines, elle est conçue pour mesurer des concentrations de radon allant de quelques centaines de  $\text{Bq.m}^{-3}$  à  $10^9 \text{Bq.m}^{-3}$  avec une autonomie de l'ordre de l'année. Sa conception lui permet de supporter des conditions atmosphériques difficiles (fortes humidités, fortes températures). La sonde BMC2 effectue une mesure simultanée du radon ainsi que de la température et de la pression atmosphérique.

Chaque sonde a été installée à 1 m de profondeur, dans un tube PVC et son emplacement a été camouflé (Figure A-4). L'étanchéité avec l'atmosphère extérieure a été réalisée par la mise en place de deux bouchons à l'extrémité supérieure du tube. Un repère en surface a été matérialisé au moyen de gros blocs de pierre. Un pas horaire d'acquisition a été fixé. Une vérification de leur bon fonctionnement et le relevé des données enregistrées ont été effectués régulièrement (tous les trimestres).

A l'emplacement de chaque sonde, la perméabilité des sols a été mesurée et des prélèvements de sols ont été réalisés pour mesurer leur granulométrie, leur humidité et l'activité massique de l'uranium-238 et du radium-226.





Figure A-4 – Mise en place d'une sonde BMC2 pour la mesure en continu de l'activité volumique du radon dans l'air du sol ; A : insertion de la sonde dans le tube PVC jusqu'à 1 m de profondeur ; B : étanchéification par la pose de deux bouchons ; C : Emplacement de la sonde après camouflage.



## Docteur en physique (Mécanique des fluides)

Ingénieur chercheur au sein de l'IRSN

### Domaines de compétences scientifiques

- Etude des phénomènes de transferts du radon dans les milieux poreux et/ou fracturés diphasiques (sols, roches, résidus miniers d'uranium) et dans les conduits souterrains (karsts, vides miniers...) vers l'environnement naturel et l'habitat (métrologie et modélisation) – Cadre : **Radon et Radioprotection**.
- Etude des phénomènes Thermo-Hydro-Mécaniques-GAZ (THM-GAZ) au sein d'une installation de stockage profond des déchets radioactifs, en particulier l'hydrogène généré par corrosion anaérobie des aciers des différentes composantes métalliques de l'installation : alvéole, module à plusieurs alvéoles, et site à plusieurs modules (métrologie et modélisation) – Cadre : **Sûreté des installations de stockage géologique profond des déchets radioactifs à HA et MAVL (projet Cigéo)**.
- Modélisation de l'évolution d'un bassin sédimentaire et de la genèse et de la migration des hydrocarbures (Ecoulements multiphasiques - Modélisation) – Cadre : **Génie pétrolier**.
- Etude de la caractérisation des réservoirs géothermiques en utilisant les gaz nobles comme traceurs environnementaux (Modélisation) – Cadre : **Géothermie**.
- Hydraulique des eaux de surface et de subsurface (métrologie et modélisation). Cadre : **Géosciences, Hydrologie du bassin versant**.
- Ingénierie des réservoirs du gaz et du pétrole (caractérisation et simulation) – Cadre : **Génie pétrolier**.
- Hydrodynamique et processus d'oxydation de l'eau (conception et modélisation) – Cadre : **Traitement des eaux usées**.
- Etude des systèmes agro-environnementaux et leur gestion (métrologie et modélisation) – Cadre : **Irrigation & Drainage, Agronomie, Agroforesterie**.
- **Physique du sol ; Calcul numérique et scientifique (HPC) ; Développement logiciel.**

### Gestion de projets et animation scientifique

- 2015-2018 : projet Interreg France-Suisse JURAD-BAT (étude du radon et de la qualité de l'air intérieur - caractérisation du réseau karstique d'une zone pilote).  
Equipe : 3 chercheurs + 1 post-doc (partenaires franco-suisses)  
Collaborations : IRSN / Laboratoire Chrono-Environnement (UMR CNRS 6249 - UFC – UFR Sciences et Techniques, Université de Franche Comté à Besançon)
- 2015-2016 : projet de développement du code T2Rn (étude de transport non-isotherme multiphasique du radon dans la bio-géo-sphère).  
Equipe : 3 chercheurs.  
Collaborations: IRSN / CRC-LLC (Canyon Ridge Consulting; Sandia Park, New Mexico, USA) / LBNL (Lawrence Berkeley National Laboratory; Berkeley, USA) / Autorité de sûreté anglaise NDA/RWM (Nuclear Decommissioning Authority / Radioactive Waste Management).
- 2007-2008 : projet de développement d'outils de mesures des propriétés hydrodynamiques capillaires des sols à partir des essais d'infiltration et d'absorption d'eau en surface.  
Equipe : 2 chercheurs  
Collaborations: INRAe Montpellier / Department of Soil and Water of the Spanish National Research Council

- 2009 : projet WASA (Développement d'un réacteur de décontamination d'eau de source en Italie).  
Equipe : 1 chercheur + deux ingénieurs R & D + autres partenaires portugais et luxembourgeois.  
Collaborations: HydrolLogic Systems Group S.A.
- 2019-2024 : projet européen EURAD HORIZON 2020 (WP DONUT et WP GAS : développement de codes diphasique et participation au benchmark d'une modélisation THM-GAS à l'échelle d'un site de stockage générique).  
Equipe : plus qu'une dizaine d'équipes partenaires + 1 doctorant IRSN  
Collaborations : IRSN / Labo chrono-Environnement (Université de Franche-Comté)
- 2004-2006 : projet de recherche ANR 2005 - N° dossier : NT052\_41539 (Vers une plate-forme de Modélisation Hydrologique Intégrée Multi-Echelles : MHIME)  
Equipe : 5 chercheurs + 3 doctorants + 2 Ingénieurs informaticiens (côté LTHE)  
Collaborations : CNRS / CEMAGREF / Autres équipes CNRS du secteur Sciences de l'Univers et géo-environnement
- 2003-2004 : Projet ACTA (Association de Coordination Technique Agricole) - Benchmark entre modèles agro-hydrologiques des bassins versants dans le cadre du projet ACTA  
Equipe : 1 chercheur + post-doc (côté INRA)  
Collaborations : INRA / CEMAGREF / Institut d'élevage / Chambre d'agriculture / Arvalis / Université Rennes II (département de Géographie)
- 2021-2024 : projet de collaboration bipartite pour le développement du code TOUGH2-MP (étude de l'hydromécanique dans les modèles de migration de l'hydrogène dans un site de stockage géologique profond des déchets radioactifs)  
Equipe : 2 chercheurs + 1 doctorant  
Collaborations : IRSN / IMFT (Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse - UMR 5502 CNRS/INPT/UPS – Université de Toulouse)
- 2018-2021 : projet de collaboration bipartite pour le développement du code iTOUGH2 (étude de la propagation des incertitudes dans les modèles de migration de l'hydrogène dans un site de stockage géologique profond des déchets radioactifs)  
Equipe : 2 chercheurs + 1 doctorant  
Collaborations : IRSN / IMFT (Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse - UMR 5502 CNRS/INPT/UPS – Université de Toulouse)
- 2018-2021 : projet de collaboration bipartite pour le développement d'un module au sein du code massivement parallélisé TOUGH2-MP (étude de transport de H<sub>2</sub> à l'échelle d'un module d'une centaine d'alvéoles au sein d'un stockage géologique profond de déchets radioactifs - Elaboration d'un algorithme pour générer le diagramme de Voronoi à partir d'un maillage en éléments finis non structuré 3D).  
Equipe : 3 chercheurs  
Collaborations : IRSN / LAGA (Laboratoire Analyse, Géométrie et Applications – UMR 7539 CNRS/Université Paris 13 - La Villetaneuse)
- 2016-2017 : Plan National d'Action 2016-2019 (gestion du risque lié au Radon)  
Equipe : 5 chercheurs + 1 post-doc  
Collaborations : ASN / IRSN / CSTB (Centre Scientifique et Technique du Bâtiment)

## Expérience professionnelle

- Depuis avril 2010 : Ingénieur – Chercheur à l'IRSN à Fontenay aux Roses (92). Chargé d'évaluation de la maîtrise des risques spécialité en risques liés à la radioactivité dans l'environnement - En charge de développement de programmes de recherche sur la migration du radon depuis les sols vers l'habitat dans les environnements naturels et anthropiques ; et sur la migration des gaz dans une installation de stockage géologique profond de déchets radioactifs (projet Cigéo).
- Décembre 2008 – Février 2010 : Ingénieur R&D chez HydrolLogic Systems Group S.A., R&D Unit – Luxembourg/Luxembourg – Gestion du projet Réacteur WASA ICWO (WATERSafe, Infra-Critical Water Oxidation) - Dimensionnement des 3 chambres d'un réacteur d'épuration des eaux usées par auto-oxydation avancée (UV, Oxygénation, Champs Electromagnétiques...).
- Novembre 2006 – Octobre 2008 : Ingénieur de recherche (CDD 2 ans) à l'Institut National de la Recherche Agronomique (INRAe) – Département Environnement & Agronomie, UMR SYSTEM, Fonctionnement et

Conduite des systèmes de culture Méditerranéens et Tropicaux - Montpellier/France – Modélisation des facilitations interspécifiques en peuplements agro-forestiers.

- Septembre 2004 – Aout 2006 : Ingénieur de Recherche (CDD 2 ans) – Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS) – Institut des Géosciences de l'Environnement IGE (ex-laboratoire LTHE) UMR CNRS/INSU-IRD-UGA-INPG- Grenoble/France - Gestion d'une Start-up CNRS (Hydrowide S.A) pour le développement d'une plateforme hydrologique (POWER) – Modélisation hydrologique spatialisée à base physique du cycle de l'eau sur les bassins versants (Application au bassin versant de la Donga au Bénin).
- Avril 2003 – Aout 2004 : Post-doc de recherche à l'Institut National de la Recherche Agronomique (INRAe) – Département Environnement & Agronomie, UMR SAS, Sol Agro et hydro-système Spatialisation - Rennes/France – Modélisation intégrée de transfert d'azote à différentes échelles de bassins versants.
- Janvier 2002 – Janvier 2003 : Post-doc de recherche à l'Institut Français du Pétrole (IFP) – Division Géologie-Géochimie - Rueil-Malmaison/France – Introduction de la zone insaturée dans le simulateur des bassins sédimentaires pétroliers CERES2D.

## Expérience d'encadrement d'étudiants

- **Doctorat de Mohamed Haythem Bahlouli** (octobre 2021 – Septembre 2024)  
Pourcentage encadrement : 50 %  
Sujet : Analyse des incertitudes issues de la modélisation couplée HM-Gaz à grande échelle dans une installation de stockage géologique profond de déchets radioactifs.  
Directeur de thèse : Rachid Ababou (IMFT - Toulouse)  
Devenir de l'étudiant : Thèse en cours
- **Doctorat de Abdellah Amri** (octobre 2018 – Décembre 2021) + **stage M2** (mars 2018 - Septembre 2018)  
Pourcentage encadrement : 50 %  
Sujet : Réévaluation du modèle physique de transfert de l'hydrogène pour l'étude du transitoire hydraulique-gaz dans un stockage profond de déchets radioactifs.  
Directeur de thèse : Rachid Ababou (IMFT - Toulouse)  
Devenir de l'étudiant : Ingénieur consultant (Référént technique) chez Capgemini Engineering – secteur Renewable energy | Hydrogen | SMR - depuis janvier 2022 - Issy-les-Moulineaux, Île-de-France, France
- **Doctorat de Valérie Viaud** (2001 – 2004)  
Pourcentage encadrement : 15 %  
Sujet : Organisation spatiale des paysages bocagers et flux d'eau et de nutriments. Approche empirique et modélisation.  
Directeurs de thèse : Patrick Durand et Jacques Baudry (INRAe Rennes)  
Devenir de l'étudiant : Chargé de recherche à l'INRAe de Rennes
- **Doctorat de François Oehler** (2003 - 2006)  
Pourcentage encadrement : 15 %  
Sujet : Mesure de la dénitrification et modélisation spatialisée des flux d'azote à l'échelle d'un petit bassin versant d'élevage.  
Directeurs de thèse : Patrick Durand (INRAe Rennes) et Paul Bordenave (CEMAGREF Rennes)  
Devenir de l'étudiant : Président / CEO de la société SCHEME R&D - Environnement et énergies renouvelables (Société de reCHERche En Modélisation Et Environnement)
- **Doctorat de Devaraj, de Condappa** (2002 – 2005)  
Pourcentage encadrement : 20 %  
Sujet : Étude de l'écoulement d'eau à travers la Zone Non-Saturée des aquifères de socle à l'échelle spatiale du bassin versant. Application à l'évaluation de la recharge au sein du bassin versant de Maheshwaram, Andhra Pradesh, Inde.  
Directeur de thèse : Randel Haverkamp (LTHE – INPG – CNRS - Université Joseph Fourier de Grenoble)  
Devenir de l'étudiant : Freelance Consultant, Associate to the Stockholm Environment Institute. Berlin, Germany
- **Doctorat de Karim Tamoh** (soutenue en 2005) + **stage M2** (ancien DEA - 1998)  
Pourcentage encadrement : 40 %  
Sujet : Etude des transferts hydriques et de nitrates dans les sols de Mnasra, caractérisation hydrodynamique, modélisation et SIG.  
Directeur de thèse : Abdellatif Maslouhi (Université Ibn Tofaïl, Faculté des Sciences de Kénitra, Maroc)  
Devenir de l'étudiant : Enseignant chercheur (Université Ibn Tofaïl, Faculté des Sciences de Kénitra, Maroc)

- **M2 de Zoubir Kakachi** (Juin 2020 – Décembre 2020)  
Pourcentage encadrement : 100%  
Sujet du mémoire : Analyse de propagation d'incertitudes dans les modèles Darcéen et de Fick de migration de l'hydrogène dans un site de stockage géologique profond des déchets radioactifs.
- **M2 d'Audrey Gineau** (Mars 2017 – août 2017)  
Pourcentage encadrement : 50%  
Sujet du mémoire : Modélisation de transport du radon dans les sols jusqu'à l'interface sol-bâtiment : comparaison entre modèles numériques et analogiques-analytiques.
- **M2 de Coralie Menard** (Avril 2017 – Septembre 2017)  
Pourcentage encadrement : 100%  
Sujet : Influence de la couche pédologique sur l'émanation et le transport du radon jusqu'en surface. Méthodes de caractérisation du potentiel radon des sols à l'échelle de la parcelle.
- **M2 de Florian Legras** (Avril 2017 – Septembre 2017)  
Pourcentage encadrement : 100%  
Sujet : Validation de l'application CARAIBE à partir des mesures expérimentales de Kersaint-Plabennec. Validation de la modélisation des matrices « bâtiment » et « conditions extérieures au bâtiment ».
- **M2 de Cuezva Daniel Dubois** (Avril 2015 – Septembre 2015)  
Pourcentage encadrement : 30%  
Sujet : Simulation de l'écoulement eau-hydrogène au voisinage d'un stockage géologique de déchets radioactifs.
- **M2 d'Emilie Neveu** (Avril 2006 – Septembre 2006)  
Pourcentage encadrement : 100%  
Sujet : Analyse numérique du modèle 3D à base physique d'écoulements d'eau dans le sol. Adaptation de la méthode volumes finis sur un maillage prenant en compte les entités hydrologiques.
- **M2 de Paul Plouy** (Janvier 2004 – Juin 2004)  
Pourcentage encadrement : 50%  
Sujet : Impact du réseau bocager sur les ressources en eau et la dynamique de l'azote dans les bassins versants agricoles : Modélisation numérique spatialement distribuée.
- **M2 de Simon Lehuger** (Avril 2004 – Septembre 2004)  
Pourcentage encadrement : 50%  
Sujet : Evaluation du risque de pollution azotée de différents systèmes d'exploitation laitière grâce à l'utilisation du modèle agro-hydrologique TNT2.
- **M2 de Driss Zaïda** (Avril 1999 – Septembre 1999)  
Pourcentage encadrement : 50%  
Sujet : Développement et applications d'un modèle 2D de recharge de la nappe.

## Expérience d'encadrement de post-doctorants

- **Post-doctorat de Nahla Mansouri** (Janvier 2017 – Décembre 2017)  
Pourcentage encadrement : 100 %  
Sujet : Modélisation de transport du radon depuis un vide souterrain vers l'interface sol/plante/atmosphère. Applications au cas des systèmes karstiques (projet Franco-Suisse Jurad-Bat).  
Devenir du post-doctorant : Ingénieure – Chercheure à l'IRSN
- **Post-doctorat d'Audrey Gineau** (Mars 2017 – Février 2017)  
Pourcentage encadrement : 100 %  
Sujet : Modélisation du transport du radon dans les sols, jusqu'à l'interface sol-bâtiment - Benchmark entre le modèle numérique T2Rn et les modèles analytiques et semi-empiriques (MA).  
Devenir du post-doctorant : inconnu
- **Post-doctorat de David Moret-Fernández** (Mars 2005 – Février 2006)  
Pourcentage encadrement : 30 %  
Sujet : Détermination des propriétés hydrauliques d'un sol non saturé par une analyse simultanée des mesures transitoires de l'infiltration cumulée et du profil de teneur en eau du sol.

Devenir du post-doctorant : Chercheur au *Department of Soil and Water of the Spanish National Research Council* - Departamento de Suelo y Agua, Estación Experimental de Aula Dei, Consejo Superior de Investigaciones Científicas (CSIC), Zaragoza, Spain.

## Formation

- 1996 – 2001 : Doctorat ès Sciences Physiques (option : Mécanique des fluides) - Université de Kénitra (Maroc) / Université Joseph Fourier de Grenoble (France). Mention : très honorable (avec félicitations du jury oralment).
- 1994 – 1995 : Master 2 (ancien DEA) ès Sciences Physiques (option : Mécanique des fluides). Mention A Bien - Classement : 1/12.
- Juin 1994 : Master 1 (ancienne Maîtrise) ès Sciences Physiques – Université Mohamed V de Rabat (Maroc). Mention Bien - Classement : (6 premiers / 155).

## Production scientifique

- **Dans des revues avec comités de lecture**

Amri A., **Z. Saâdi**, R. Ababou, Parametric sensitivity to gas-entry pressure in two-phase flow models for a deep geologic repository of radioactive waste. *Transp Porous Med*, 145: 13–43, 2022. <https://doi.org/10.1007/s11242-022-01780-w>

**Saâdi Z.**, N. Mansouri, L. Marie, G. Ielsch, Towards a better assessment model of transient radon concentrations in dwellings basements for the study of soil depressurization systems designs. *Journal of Environmental Radioactivity*, Volumes 235–236, Article 106651, 2021. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2021.106651>

**Saâdi Z.**, M. Dymitrowska, F. Deleruyelle, F. Marsal, An evaluation model of the impact of hydrogen ‘piston effect’ on water displacement in a deep geological repository for radioactive waste. *Environmental Earth Sciences*, 79:434, 2020. <https://doi.org/10.1007/s12665-020-09166-1>

**Saâdi Z.**, Comparison between equivalent continuum and discrete crack models of transient radon transport at the soil-building foundation crack interface using TOUGH2/EOS7Rn. *Transp Porous Med*, 123:477–500, 2018. DOI: <https://doi.org/10.1007/s11242-017-0994-x>

**Saâdi Z.**, L. Marie, An experimental and numerical study on radon transport from UMT-contaminated sand to a house basement under variable weather conditions. *J Environ Chem Eng*, 5: 3667–3683, 2017. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jece.2017.07.017>

**Saâdi Z.**, J. Guillevic, Comparison of two numerical modelling approaches to a field experiment of unsaturated radon transport in a covered uranium mill tailings soil (Lavaugrasse, France). *Journal of Environmental Radioactivity*, 151: 361–372, 2016. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2015.03.019>

**Saâdi Z.**, On the air-filled effective porosity parameter of Rogers and Nielson’s (1991) bulk radon diffusion coefficient in unsaturated soils. *Health Physics*, 106(5): 598-607, 2014.

**Saâdi Z.**, Gay, D., Guillevic, J., Améon, R., EOS7Rn—A New TOUGH2 module for simulating radon emanation and transport in the subsurface. *Computers & Geosciences*, 65: 72-83, 2014 <http://dx.doi.org/10.1016/j.cageo.2013.09.003>

Oehler F., P. Durand, P. Bordenave, **Z. Saâdi**, J. Salmon-Monviola, Modelling denitrification at the catchment scale. *Science of the Total Environment*, 407(5): 1726-1737, 2009. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2008.10.069>

Viaud V., P. Durand, P. Mérot, E. Sauboua, **Z. Saâdi**, Modeling the impact of the spatial structure of a hedge network on the hydrology of a small catchment in a temperate climate. *Agricultural Water Management*, 74(2): 135-163, 2005. <https://doi.org/10.1016/j.agwat.2004.11.010>

**Saâdi Z.**, A. Maslouhi, Modeling nitrogen dynamics in the unsaturated soils for evaluating the nitrate contamination of the Mnasra groundwater. *Advances in Environmental Research*, 7(4): 803-823, 2003. DOI: [https://doi.org/10.1016/S1093-0191\(02\)00055-2](https://doi.org/10.1016/S1093-0191(02)00055-2)

**Saâdi Z.**, A. Maslouhi, M. Zéraouli, J.-P. Gaudet, First attempts for predicting seasonal nitrate concentration variations at Mnasra aquifer (Morocco). *Environmental Technology*, 21(6): 671-680, 2000. DOI: <https://doi.org/10.1080/09593332108618078>

**Saâdi Z.**, A. Maslouhi, M. Zéraouli, J.-P. Gaudet, Analyse et modélisation des variations saisonnières des concentrations en nitrates dans les eaux souterraines de la nappe Mnasra (Maroc). *C. R. Acad. Sci.- Série IIA - Sciences de la Terre et des Planètes*, 329(8): 579-585, 1999. DOI: [https://doi.org/10.1016/S1251-8050\(00\)87214-6](https://doi.org/10.1016/S1251-8050(00)87214-6)

- Gabbouhy M., A. Maslouhi, Z. Mghazli, **Z. Saâdi**, Modélisation numérique du transport de soluté dans la zone non saturée d'un sol très sableux. *Math-Recherche & Applications (Math-Recherche & Applications (imist.ma))*, Vol. 4, 77-90, 2002.
- Saâdi Z.**, A. Maslouhi, M. Zéraouli et J.-P. Gaudet, Modélisation de la contamination nitrée de l'aquifère Mnasra. *Revue Marocaine de Génie Civil*, 84 : 15-24, 1999.

- **Dans des actes de congrès avec comités de lecture**

- Saâdi Z.**, A. Amri, R. Ababou (2022) Modeling two-phase flow with entry pressure and hysteresis: application to gas transport in deep geological structures. In: CLAY 2022: 8th Internat. Conf. on Clays in Natural & Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement (13-16 June 2022, Nancy, France). Extended abstract. #CLAY00629 [TOPIC 03: Fluid (water, gas) transport & solute migration] <https://hopscoth.key4events.com/AbstractList.aspx?e=190&g=2bf8b675-5cc9-4885-a4a8-738e06ba32f6&preview=1&aig=-1&ai=13952&stamp>
- Amri A., **Z. Saâdi**, R. Ababou, M. Dymitrowska (2022) Parametric sensitivity to gas-entry pressure in 2-phase flow models in a deep geologic repository for radioactive waste. CLAY 2022: 8th Internat. Conf. on Clays in Natural & Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement, Extended abstract, Poster presentation, 13-16 June 2022, Nancy, France.
- Amri A., **Z. Saâdi**, R. Ababou (2021) Modeling two phase flow with entry pressure and hysteresis: application to gas transport in deep geological structures. *geoENV 2021 Online (The 13th International Conference in Geostatistics for Environmental Applications)*, Oral presentation (accepted), 16 - 18 June 2021. [Confirmed Abstracts 2021.pdf \(geoenvia.org\)](#)
- Saâdi Z.**, A. Amri, R. Ababou (2020) A revisited compositional two-phase flow model for the simulation of gas transport at different scales in the heterogeneous porous structure of a deep HLW disposal facility. InterPore 2020 (The 12th Annual Meeting): In mini-symposium MS7 Mathematical and numerical methods for multi-scale multi-physics, nonlinear coupled processes, Oral communication, Book of abstracts, 36-37 p., 31 August - 4 September, 2020, Qingdao, China (Online). <https://events.interpore.org/event/23/book-of-abstracts.pdf>
- Saâdi Z.**, M. Dymitrowska, L. Pan, F. Deleruyelle, N. Mokni, F. Marsal (2018) A simplified mechanistic model for studying the impact of hydrogen 'piston flow' on water displacement in a deep geological repository for radioactive waste. In: TOUGH Symposium 2018, Session V: Nuclear Waste Management, October 8-10, 2018, Berkeley, USA. Extended abstract, 5 p. [https://drive.google.com/drive/folders/1jEwpmMLRtTzRXLcx5-tAuFspfhfY\\_oCI](https://drive.google.com/drive/folders/1jEwpmMLRtTzRXLcx5-tAuFspfhfY_oCI)
- Gréau C., Mansouri N., Ielsch G., **Saâdi Z.**, Bertrand C. (2018) Radon production and migration in karstic environment: Experimental data and numerical modelling (Fourbanne site, French Jura Mountains). In: Eurokarst 2018 conference, Book of abstracts, 80-81 p., 02-04 July, 2018, Besançon, France. [http://www.eurokarst.org/wp-content/uploads/2016/07/Proceedings\\_Eurokarst2018\\_Besan%C3%A7on.pdf](http://www.eurokarst.org/wp-content/uploads/2016/07/Proceedings_Eurokarst2018_Besan%C3%A7on.pdf)
- Gréau C., Ielsch G., **Saâdi Z.**, Mansouri N., Bertrand C. (2017) Influence of karst on the radon production and migration (Fourbanne site, French Jura Mountains): analysis of experimental data. Third East-European Radon Symposium, May 15-19, 2017, Sofia, Bulgaria.
- Ielsch G., Gréau C., **Saâdi Z.**, Mansouri N. (2017) Influence of karsts on the radon production and migration: experimental data and numerical modelling (Fourbanne site, French Jura Mountains). In: The 2017 AARST International Radon Symposium, 01 - 04 October, 2017, New Orleans, USA. [Influence of a karstic environment on radon geogenic potential: experimental data analysis and radon transport modelling \(Jura Mountains, France\) Géraldine. - ppt download \(slideplayer.com\)](#). <https://internationalradon2017.sched.com/event/AyyB/track-i-science-research-influence-of-a-karstic-environment-on-radon-geogenic-potential-experimental-data-analysis-and-radon-transport-modelling-jura-mountains-france>
- Saâdi Z.**, Marie L., Ielsch G. (2017) An efficient numerical model for simulating radon concentration variations in dwellings basements under time-dependent negative pressure fluctuations indoors. In: Proceedings of The 4th International Conference on Radioecology & Environmental Radioactivity, Poster presentation, Berlin, 3-8 September, 2017.
- Ielsch G., **Saâdi Z.**, Bertrand C., Alcalde G., and Barker E. (2016) Influence of karstic environment on geogenic radon potential: first experimental results on the Fourbanne site (French Jura Mountains). In: 13th International Workshop on the Geological Aspects of Radon Risk Mapping (GARRM 13th), Oral presentation, Prague, Czech Republic, September 15-16, 2016.
- Ielsch G., **Saâdi Z.**, Bertrand C., Denimal S., Alcalde G., Barker E., Debayle C., Manach E. (2016) Radon production and migration in the Fourbanne karst system (French Jura Mountains): preliminary results. In: Eurokarst 2016 conference, Oral presentation by **Z. Saâdi**, Neuchatel, Switzerland, September 05-09, 2016.
- Saâdi Z.** (2015) Numerical modelling of radon transport from soil to a house basement under variable weather conditions. In: Radon in the Environment 2015 conference, Oral presentation, Book of Abstracts, p. 35, Krakow, Poland, May 25-29, 2015. [RADON 2015 Krakow, Poland \(ipb.ac.rs\)](#)



- Saâdi Z.** and J. Guillevic (2015) Comparison between equivalent continuum and discrete crack models of transient radon transport at the soil-building foundation crack interface using TOUGH2/EOS7Rn. In: Blanco-Martin L. et al. (Eds), Proceedings, TOUGH Symposium 2015, Session Environmental Engineering and Vadose Zone, Oral presentation, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, California, September 28-30, 2015, 439-465 p. [Proceedings TOUGH Symposium 2015 newest8.pdf \(lbl.gov\)](#)
- Saâdi Z.** and J. Guillevic (2014) Comparison of two numerical modelling approaches to a field experiment of unsaturated radon transport in a covered uranium mill tailings soil (Lavaugrasse, France). In: Proceedings of The 3rd International Conference on Radioecology & Environmental Radioactivity, Barcelona, 7-12 September, 2014. [Comparison of two numerical modelling approaches to a field e..INIS \(iaea.org\)](#)
- Saâdi Z.**, D. Gay, J. Guillevic and R. Améon (2012) EOS7RN—A New TOUGH2 module for simulating radon emanation and transport in the subsurface. In: Finsterle et al. (Eds), Proceedings, TOUGH Symposium 2012, session VIII Environmental Engineering, Oral presentation, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, California, September 17-19, pp. 481-489, 2012. <https://escholarship.org/uc/item/8pr8n5mv>
- Moret D., **Z. Saâdi** and R. Haverkamp (2007) Determinación de los parámetros hidráulicos del suelo a partir de la medida de la evolución temporal de la humedad a diferentes profundidades en condiciones homogéneas de perfil del suelo. In: Estudios de la Zona No Saturada del Suelo, J.V. Giráldez Cervera y F.J. Jiménez Hornero (Ed.), Vol. VIII, Zaragoza (Spain), pp. 133-138, 2007. [Microsoft Word - Moret 2.doc \(csic.es\)](#)
- Viallet, P., Debionne, S., Braud, I., Dehotin, J., Haverkamp, R., **Saâdi, Z.**, Anquetin, S., Branger, F. and Varado, N. (2006) Towards multi-scale integrated hydrological models using the LIQUID framework. In: J.C. Ph. Gourbesville, J. Cunge, V. Guinot and S.-Y. Liong (Eds) (Editor), 7th International Conference on Hydroinformatics (HIC 2006). Research Publishing, Physical Simulation Modelling, Volume 1, pp. 542-549, 4-8 September, Nice, France, 2006. [Towards multi-scale integrated hydrological models using the LIQUID framework - Institut National de Recherche en Agriculture, Alimentation et Environnement \(inrae.fr\)](#). <https://www.scopus.com/record/display.uri?eid=2-s2.0-34249992964&origin=inward&txGid=c34b78aee50d57dbb5bb678901484bb4>
- Durand P., **Z. Saâdi**, E. Sauboua, L. Ruiz, F. Vertes, J. Salmon-Monviola (2005) Intégration du formalisme de STICS dans un modèle hydrologique distribué : l'exemple de TNT2. In : Annales Séminaire STICS, INRA, Département Environnement et Agronomie, 128-131 p., Carry-le-Rouet, 17-18 Mars 2005. [Microsoft Word - Annales-S\351minaire-Stics-2005.doc \(inrae.fr\)](#)
- Durand P., V. Viaud, F. Tortrat, **Z. Saâdi** (2004) Modélisation de l'effet des pratiques agricoles et de l'aménagement du paysage sur les flux d'eau et de matière dans les bassins versants. In: Colloque BV-Futur - savoir et savoir-faire sur les bassins versants - pollution de l'eau et dynamique de restauration de sa qualité en milieu rural. Thème 3 : les outils de la modélisation au service de la restauration de la qualité de l'eau, Palais des arts, Vannes (France), pp. 205-215, 20-22 Avril 2004. <http://www.bretagne.synagri.com/synagri/savoirs-et-savoir-faire-sur-les-bassins-versants-les-contributions-du-colloque-bv-futur>
- Saâdi Z.**, A. Maslouhi (2001) Un modèle mathématique de transport des nitrates en milieu poreux non saturé pour l'évaluation de la contamination nitrée de la nappe Mnasra. In: 5ème Congrès de Mécanique, Société Marocaine des Sciences Mécaniques - Université Moulay Ismaïl, Meknès, Maroc, 17-20 Avril 2001.
- Saâdi Z.**, A. Maslouhi (2000) Modélisation des transferts des fertilisants azotés dans les sols agricoles de Mnasra. In: Actes de colloque international Eau Souterraine en Région Agricole (ESRA'2000), O. Banton et G. Porel (Ed.), Session S3, Université de Poitiers (France), pp. 15-18, 13-15 Septembre 2000. [205513 doc.pdf \(oieau.org\)](#); [Eaux souterraines en région agricole \[Texte imprimé\] : actes du colloque international ESRA'2000. 13-15 septembre 2000, Poitiers / édité par Olivier Banton et Gilles Porel ; organisé par l'INRS-Eau, université du Québec et l'HydrASA, université de Poitiers\] - Université de Lorraine \(univ-lorraine.fr\)](#)
- Saâdi Z.**, Maslouhi A., Zéraouli M., Gaudet J.-P. (1998) Soil vadose zone characterization at large scale for unsaturated water flow and solute transfer modeling. In: International Symposium on Computer Methods for Engineering in Porous Media, Flow and Transport, University of Franche-Comté, Giens (France), 28 September-2 October 1998.
- Gabbouhy M., A. Maslouhi, Z. Mghazli, **Z. Saâdi** (1998) Modélisation numérique du transport de soluté dans la zone non saturée d'un sol très sableux. In: 5èmes Journées d'Analyse Numérique et d'Optimisation (JANO'5), communication Orale, Université Ibn Tofaïl, Kénitra (Maroc), 28-30 Avril 1998.
- Maslouhi A., **Z. Saâdi** (1996) Transfert de soluté dans un milieu poreux non saturé. In: Actes du colloque international Eau Souterraine en Région Agricole (ESRA'96), présentation Poster, Poitiers (France), 9-12 Septembre 1996.
- **Autres congrès nationaux et internationaux**
- Amri A., **Z. Saâdi**, R. Ababou (2021): Modeling hysteresis in 2 phase flow modeling: comparative study and application to gas transport in deep geological porous formations. InterPore 2021 Online (The 13th Annual Meeting): In mini-

symposium MS6-A Physics of multi-phase flow in diverse porous media, Poster + presentation (accepted), 31 May - 4 June 2021.

- Mansouri N., Gréau C., Ielsch G., **Saâdi Z.**, Bertrand C. (2018): Radon production and migration in karstic environment: Experimental data and numerical modelling (Fourbanne site, French Jura Mountains). In: 14th International Workshop on the Geological Aspects of Radon Risk Mapping (GARRM 14th), Oral communication, September 18-21, 2018, Prague, Czech Republic. [http://www.radon.eu/workshop2018/pres/17\\_mansouri.pdf](http://www.radon.eu/workshop2018/pres/17_mansouri.pdf).  
<http://www.radon.eu/workshop2018/pres.html>
- Saâdi Z.**, C. Dupraz, R. Mulia, I. Lecomte and M. van Noordwijk (2007): A generalized physically based approach to modeling water extraction by roots of competing plants in a 3D unsaturated soil. Application to agro-forestry systems. In: Fourth International Symposium on Dynamics of Physiological Processes in Roots of Woody Plants, 16-20 September 2007, University of Wales, Bangor.
- Moret D., **Z. Saâdi**, R. Haverkamp (2005): Determination of the soil hydraulic properties by simultaneous analysis of soil water cumulative infiltration and transient soil water content. In: European Geosciences Union EGU General Assembly, 15-20 April 2005, Vienna, Austria, Geophysical Research Abstracts, vol. 9, 00070.
- Saâdi Z.**, S. Debionne, P. Viallet, I. Braud, D. de Condappa, R. Haverkamp (2005): A fast, simplified three-dimensional saturated-unsaturated lateral flow numerical simulation model for the hydrological modelling at watershed scale. In: General assembly of the European Geophysical Society, EGU05-A-05200; HS11-1TH5P-0155, VIENNA, Austria, April 24-29, 2005.
- Maslouhi A., **Z. Saâdi** (2002) : Modélisation des transferts de solutés réactifs et non réactifs dans un milieu poreux non saturé et saturé. In: Workshop sur les méthodes adaptatives appliquées aux écoulements dans les milieux poreux, Kénitra, Maroc, 2002.
- Maslouhi, A., **Z. Saâdi** (2001) : Modélisation des transferts des fertilisants azotés dans les sols agricoles de Mnasra. In: Workshop sur l'analyse et modélisation des risques de contamination souterraine, Moncton, Canada, 2001.
- Saâdi Z.**, A. Maslouhi, J.-P. Gaudet, R. Schoen, M. Zéraouli (1997) : Modélisation des transferts hydrique et de solutés dans les sols non saturés. In: 5th Scientific Assembly of the International Association of Hydrological Sciences (IAHS'97), Poster presentation, Rabat (Maroc), 23 April-3 May 1997.

- **Conférencier invité**

- Saâdi Z.** (2019): Evaluation of some models of gas transport at different scales in a deep geological repository. In: Proceedings of The workshop Advances in the Simulation of reactive flow and TRANsport in porous Media (SITRAM'19), Keynote speaker, Book of Abstracts, p. 15, Pau, France, December 2-3, 2019. [Sitram2019\\_Saadi\\_2.pdf](#) ([sciencesconf.org](http://sciencesconf.org)) - [Sitram.pdf](#) ([sciencesconf.org](http://sciencesconf.org))
- Saâdi Z.** (2018) : Modélisation du transitoire hydraulique-gaz dans les environnements naturel et anthropique. Exemples de transport du radon depuis les sols et les systèmes karstiques vers la surface, et de l'hydrogène au voisinage d'un site de stockage géologique profond des déchets radioactifs à haute activité. Université Mohammed VI Polytechnique, Conférencier invité, Ben Guérir, Marrakech, Maroc, Avril 26, 2018.
- Saâdi Z.** (2014): TOUGH2/EOS7Rn as a reliable numerical modelling tool for the exploration of fractured groundwater and geothermal reservoirs. In: First international symposium on Energy Challenges and Mechanics, Session 04: Reservoir simulation, Aberdeen, Scotland, UK, July 10, 2014. <https://nscj.co.uk/ecm1/sessions/session04.html>
- Saâdi Z.** (2013): Numerical verification and experimental validation of the TOUGH2/EOS7Rn module for non-isothermal radon transport in two-phase porous and fractured media. In: Journées Multiphasiques, Modélisation Mathématique et Scientifique, MoMaS, Abstracts 2013, Keynote speaker, Institut des Hautes Etudes Scientifiques IHES, Bures-sur-Yvette, France, 7-9 October, 2013. [https://www.imo.universite-paris-saclay.fr/~gtanl/resumes\\_des\\_seminaires\\_MoMas2013.pdf](https://www.imo.universite-paris-saclay.fr/~gtanl/resumes_des_seminaires_MoMas2013.pdf)

- **Ouvrages, contributions à ouvrages ou chapitres**

- Durand P., F. Tortrat, V. Viaud et **Z. Saâdi**, 2006, Modélisation de l'effet des pratiques agricoles et de l'aménagement du paysage sur les flux d'eau et de matière dans les bassins versants. In: Qualité de l'eau en milieu rural. Savoirs et pratiques dans les bassins versants. Chapitre 3 : Les outils de la modélisation au service de la restauration de la qualité de l'eau. Mérot Ph. (Eds.), Editions Quae, pp. 193-209. <https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-01461061>; [Qualité de l'eau en milieu rural - Google Books](#)

- **Autre**

**Saâdi Z.** (2001) : Premières tentatives de modélisation des transferts d'eau et d'azote dans les sols agricoles de Mnasra (Nord-Ouest du Maroc). Thèse de doctorat en physique, Mécanique des Fluides, Faculté des Sciences, Kénitra, Maroc, 299 p.

## Expérience en développement de codes numériques

**VZM** : Vadoze Zone Model (for solute and nitrogen transport in agricultural soils at natural field conditions) - Code de calcul que j'ai développé au sein du laboratoire LMFTT (Laboratoire de Mécanique des Fluides et des Transferts Thermiques; Kénitra; Maroc) dans le cadre de ma thèse (Z. Saâdi, 2001) en collaboration avec l'Université Joseph Fourier de Grenoble (Laboratoire d'étude des transferts en Hydrologie et Environnement, Ecole Nationale Supérieure d'Hydraulique et de Mécanique de Grenoble).

**TOUGH2/EOS7Rn** : Nouveau module EOS7Rn de transport du radon dans la plateforme informatique TOUGH (Transport Of Unsaturated Groundwater and Heat). TOUGH2 a été développé au laboratoire LBNL (*Lawrence Berkeley National Laboratory* ; Université de Berkeley, Californie, USA). J'ai développé EOS7Rn à partir de 2012 au sein de l'IRSN pour l'évaluation du risque lié au radon provenant du sol, du sous-sol et des cavités souterraines vers l'environnement naturel et l'habitat.

**T2Rn** : C'est un module amélioré de TOUGH2/EOS7Rn prenant en compte l'évaporation du sol, la transpiration de la plante et le ruissellement de surface en introduisant les méthodes numériques inverses à travers la plateforme iTOUGH2. J'ai développé ce code dans le cadre d'une collaboration avec la société CRC-LLC (Canyon Ridge Consulting ; Sandia Park, New Mexico, USA), le laboratoire LBNL (*Lawrence Berkeley National Laboratory* ; Université de Berkeley, Californie, USA) et l'autorité de sûreté anglaise NDA/RWM (Nuclear Decommissioning Authority / Radioactive Waste Management).

**TNT2** (Topography Nitrogen Transport and Transfer) : Code développé au sein de l'INRAe Rennes Département EA, UMR SAS. J'ai contribué à son développement et sa validation pour la première fois sur 3 bassins versants agricoles bretons (Fontaine du Teil 1.3 km<sup>2</sup> ; Kervidy 5 km<sup>2</sup> ; Yar 61.5 km<sup>2</sup>), en particulier la modélisation des concentrations en nitrates et de flux d'azote mesurés à leurs exutoires.

**Hi-Safe** (Agroforesterie) : Code développé au sein de l'INRAe Montpellier – Département EA, UMR SYSTEM. J'ai contribué à son développement et sa validation à l'échelle d'une parcelle agroforestière.

**POWER** (Planner Oriented Watershed modelling system for Environmental Responses) : Code développé au sein du laboratoire d'Étude et des Transferts en Hydrologie LTHE (UMR 5564 CNRS/INPG/IRD/UJF) pour évaluer les impacts de changement des pratiques agricoles sur le régime hydrologique des bassins versants à travers une modélisation hydrologique distribuée à base physique à l'échelle du bassin versant. J'ai contribué au développement et à la validation de POWER pour l'étude du bilan hydrologique du bassin versant de la DONGA au Bénin (500 km<sup>2</sup>) et du bassin versant Maheshwaram situé dans l'Etat de l'Andhra Pradesh en Inde (53 km<sup>2</sup>).

**CERES 2D** (Modélisation de la lithologie d'un bassin sédimentaire et sa génération des hydrocarbures du pétrole) : Code développé au sein du l'IFP (Département Géologie-Géochimie). J'ai contribué à son développement pour une généralisation à un bassin lithologique sédimentaire non saturé (Onshore).