

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À MONTRÉAL

INVESTIGATION PHYSIQUE ET HYDROGÉOCHIMIQUE D'AQUIFÈRES
ROCHEUX FRACTURÉS PAR DIAGRAPHIE THERMIQUE ET
ÉCHANTILLONNAGE SÉQUENTIEL, QUÉBEC, CANADA

THÈSE

PRÉSENTÉE

COMME EXIGENCE PARTIELLE

AU DOCTORAT EN SCIENCES DE LA TERRE ET DE L'ATMOSPHÈRE

PAR

GUILLAUME MEYZONNAT

NOVEMBRE 2020

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À MONTRÉAL
Service des bibliothèques

Avertissement

La diffusion de cette thèse se fait dans le respect des droits de son auteur, qui a signé le formulaire *Autorisation de reproduire et de diffuser un travail de recherche de cycles supérieurs* (SDU-522 – Rév.10-2015). Cette autorisation stipule que «conformément à l'article 11 du Règlement no 8 des études de cycles supérieurs, [l'auteur] concède à l'Université du Québec à Montréal une licence non exclusive d'utilisation et de publication de la totalité ou d'une partie importante de [son] travail de recherche pour des fins pédagogiques et non commerciales. Plus précisément, [l'auteur] autorise l'Université du Québec à Montréal à reproduire, diffuser, prêter, distribuer ou vendre des copies de [son] travail de recherche à des fins non commerciales sur quelque support que ce soit, y compris l'Internet. Cette licence et cette autorisation n'entraînent pas une renonciation de [la] part [de l'auteur] à [ses] droits moraux ni à [ses] droits de propriété intellectuelle. Sauf entente contraire, [l'auteur] conserve la liberté de diffuser et de commercialiser ou non ce travail dont [il] possède un exemplaire.»

REMERCIEMENTS

Je remercie tout d'abord Florent Barbecot et José Corcho Alvarado, mes directeurs de Thèse, pour avoir suivi et interagi sur ces travaux de recherche pendant plusieurs années, et pour m'avoir particulièrement initié au domaine tout autant passionnant que complexe de la datation des eaux souterraines. Merci à Florent Barbecot pour ses idées originales à la base des développements pour les échantillonneurs passifs et d'avoir permis d'initier la focalisation de cette recherche sur la diagraphie thermique. Je tiens à remercier chaleureusement les participations actives de Jean-Marc-Lauzon et de Renald McCormack, pour avoir partagé leurs expertises incomparables de l'hydrogéologie du Québec, pour leur soutien à tous les niveaux et la confiance qu'ils m'ont accordée tout au long de la thèse. Un soutien financier très important a notamment été apporté par l'intermédiaire du projet « For'Age », dans le cadre d'une subvention en recherche et développement coopérative du CRSNG, dont TechnoRem et Envir'Eau-Puits ont été les partenaires. Mes remerciements s'adressent également à Antoine Tognelli, sans qui les développements en thermique n'auraient sans doute pas pu être aussi aboutis, et avec qui se fut un réel plaisir de travailler en alliant perspicacité, rigueur et bonne humeur. Un très grand merci à Hermann Zeyen, dont la contribution scientifique a été décisive concernant les publications sur la thermique. Je remercie les membres du jury de thèse, Daniele Pinti, Romain Chesnaux et Éric Rosa pour leurs commentaires judicieux et précis qui ont contribué à élargir la portée des connaissances acquises pendant la thèse. Merci beaucoup à José Corcho Alvarado, Daniele Pinti, Anthony Lapp et Florian Freud pour leur expertise et leur support concernant les gaz rares, domaine tout aussi utile que délicat. Je remercie Michel Lamothe pour avoir partagé sa passion de la géologie glaciaire pendant tout mon séjour à l'UQAM, ses enseignements s'avérant essentiels pour la compréhension des contextes hydrogéologiques du Québec. Un immense merci à Marina Tcaci pour sa bonne humeur et sa présence rayonnante au laboratoire, merci pour sa contribution aux expérimentations délicates et toute l'opération des spectromètres parfois bien capricieux. Mes remerciements à Diogo Barnetche et France Beauchemin, qui ont toujours été en support pour régler le nombre incalculable de choses que j'ai pu leur demander pendant des années. Merci à mes collègues étudiants du même bureau, Alexandra Mattei, Rachid Barry et Victor Morand pour nos discussions légères ou sérieuses, pour leur présence. Dédicace spéciale à ma sœur, qui a combattu une longue maladie, l'a vaincue, et qui a été pour moi un exemple de courage ces dernières années. Enfin, je voulais remercier chaleureusement ma conjointe et mes proches pour leurs conseils et leur soutien, pour lesquels je suis infiniment reconnaissant, et à mes enfants Antoine et Marius.

TABLE DES MATIÈRES

LISTE DES FIGURES.....	vi
LISTE DES TABLEAUX.....	xiii
RÉSUMÉ	xiv
ABSTRACT	xvi
INTRODUCTION	1
CHAPITRE I ÉTAT DES CONNAISSANCES SUR L'INVESTIGATION DE L'HÉTÉROGÉNÉITÉ DES AQUIFÈRES, DATATION DE L'EAU SOUTERRAINE ET ÉTUDES HYDROGÉOCHIMIQUES AU QUÉBEC	6
1.1 Introduction du chapitre I	6
1.2 Investigations physiques de l'hétérogénéité des aquifères	7
1.2.1 Diagraphies physiques	8
1.2.2 Diagraphie par traçage chimique	10
1.2.3 Investigations diagraphiques en température	12
1.2.4 Propriétés hydrauliques et investigations au Québec	16
1.3 Datation de l'eau souterraine	18
1.3.1 Traceurs et principes de datation en théorie et en pratique.....	18
1.3.2 Pertinence du multitraçage.....	23
1.3.3 Conditions et processus influençant les traceurs.....	25
1.3.4 Investigations hydrogéochimiques et en datation au Québec	32
1.4 Conclusion du chapitre I et objectifs de la thèse	34
1.4.1 Pertinence des travaux de thèse concernant l'investigation verticale d'aquifères rocheux fracturés.....	34
1.4.2 Hypothèses de la thèse	37
1.4.3 Objectifs de la thèse	38

CHAPITRE II INVESTIGATIONS DE L'HÉTÉROGÉNÉITÉ DES AQUIFÈRES ROCHEUX FRACTURÉS. FOCALISATION SUR L'INTERPRÉTATION ANALYTIQUE DES RELEVÉS THERMIQUES HAUTE RÉSOLUTION	39
2.1 Introduction au chapitre II	39
2.2 Opération des diagraphies physiques	40
2.3 Zone d'étude et sélection des forages	41
2.4 Conceptualisation analytique des relevés thermique haute résolution par bilan de chaleur (article 1).....	42
2.5 Généralisation du bilan de chaleur dans les puits : l'outil « BHB Calculator » (article 2).....	88
2.6 Conclusions sur le Chapitre II	122
2.6.1 Compilation des propriétés hydrauliques et de leur distribution selon la profondeur.....	122
2.6.2 Avantages et limitations des techniques diagraphiques	124
CHAPITRE III INVESTIGATION HYDROGÉOCHIMIQUE DES MASSES D'EAU SELON LA PROFONDEUR DANS LES AQUIFÈRES ROCHEUX FRACTURÉS DES BASSES-TERRES DU SAINT-LAURENT, QUÉBEC.....	128
3.1 Introduction au chapitre III.....	128
3.2 Précautions aux investigations hydrogéochimiques en contexte d'aquifère rocheux fracturé	129
3.2.1 Échantillonnage de la colonne d'eau en « régime permanent ».....	129
3.2.2 Influence des débits « passifs » sur la composition de la colonne d'eau des puits.....	130
3.2.3 Choix des traceurs	131
3.3 Investigation hydrogéochimique séquentielle d'aquifères rocheux fracturés des Basses-Terres du Saint-Laurent (article 3).....	132
3.4 Conclusions du chapitre III.....	203
CONCLUSIONS.....	206
4.1 Conclusions générales	206
4.2 Apports et contributions de la recherche	210
4.3 Limitations des investigations verticales réalisées	213
4.4 Recommandations concernant les investigations dans le cadre d'études régionales	216
4.5 Perspectives de recherche	221

ANNEXE A DONNÉES RELATIVES AUX DIAGRAPHIES.....	230
ANNEXE B DONNÉES GÉOCHIMIQUES	254
ANNEXE C MODÉLISATION ET ESSAIS D'ÉCHANTILLONNAGES POUR LES GAZ ANTHROPIQUES TRACES (SF ₆ , CFC-11, CFC-12, CFC-113)	261
ANNEXE D REPORTAGE PHOTOGRAPHIQUE	298
APPENDICE A « LA RICHESSE DE LA RESSOURCE EN EAU DU QUÉBEC », GÉOLOGUES, 2018.....	311
APPENDICE B ESSAIS DIAGRAPHIQUES PAR TRAÇAGE CHIMIQUE.....	319
RÉFÉRENCES.....	331

LISTE DES FIGURES

Figure 1.1 : Dépendance de la conductivité hydraulique selon l'échelle de différents essais hydrauliques. Aquifère fracturé carbonaté, Racine Formation, Wisconsin (tiré de Schulze-Makuch et al., 1999)	8
Figure 1.2 : (a) Montage pour un essai par obturateur (USGS), (b) mise en place d'un micromoulinet (UQAM)	9
Figure 1.3 : Micromoulinet équipé de centreurs (Terraplus, 2014b)	10
Figure 1.4 : (a) Schéma d'installation pour la diagraphie par traçage chimique et exemple de résultat conceptuel (Brainerd 2004); (b) Équipement pour fins de diagraphie chimique (USGS, 2005)	11
Figure 1.5 : Profils de température saisonniers dans des puits (a) en condition de recharge et (b) en condition de décharge (Taniguchi, 1993)	13
Figure 1.6 : Profils combinés des diographies en température et selon la mesure des vitesses d'écoulement obtenues par « heat-pulse » (Chatelier et al., 2011).....	14
Figure 1.7 : Illustration des flux et des températures de l'eau pour deux puits interceptés par des fractures et représentés à l'aide d'une modélisation numérique en 2D (M. V. Klepikova et al., 2014)	14
Figure 1.8 : Illustration d'une installation de mesure de température distribuée par fibre optique, incluant des bains de calibration (Bense et al., 2016)	15
Figure 1.9 : Distribution des conductivités hydrauliques moyennes selon la profondeur des puits et pour quatre lithologies présentes pour le Québec méridional (Nastev et al., 2004).....	17
Figure 1.10 : Concentrations atmosphériques en SF ₆ , CFCs et tritium (USGS, 2018)	19
Figure 1.11 : Traceurs environnementaux et leurs gammes « d'âges », modifié de Axel Suckow (2014), Bartyzel & Rozanski (2016)	21
Figure 1.12 : Dépendance de la distribution des temps de résidences de l'eau souterraine selon l'échelle d'observation dans l'aquifère (IAEA, 2013).....	22

Figure 1.13 : Diagramme binaire de traceurs récents SF ₆ - CFC-12 pour estimation des régimes d'écoulement pour les eaux modernes : PFM écoulement piston; EPM exponentiel piston; EMM mélange exponentiel et BMM mélange binaire(Gooddy et al., 2006)	24
Figure 1.14 : Exemple de résultats en multitraçage ³ H/ ³ He - ⁸⁵ Kr - ³⁹ Ar pour un mélange complexe d'eaux récentes et anciennes (Corcho Alvarado et al., 2007). Les lignes en gras continues et en pointillés représentent respectivement les compositions atmosphériques en surface et celles calculées à 35 m de profondeur en zone vadose, les lignes fines sont les droites de mélange binaire entre pôles de masses d'eau « récentes » et « anciennes ».....	24
Figure 1.15 : Âges hydrauliques en contexte d'aquifère libre (Cook & Herczeg, 2000)	25
Figure 1.16 : Âges hydrauliques en contexte d'aquifère captif (Cook & Herczeg, 2000)	26
Figure 1.17 : Systèmes d'écoulements et hydrogéochimie selon la géométrie et l'échelle des bassins (Modèle conceptuel de Tóth, 1999).....	27
Figure 1.18 : Stratification verticale d'un aquifère granulaire par analyse ³ H/ ³ He dans des piézomètres (points) et caractérisation des mélanges dans les puits avec longues crêpines (bandes) par multitraçage (Visser et al., 2013)	29
Figure 1.19 : Concentrations atmosphériques en SF ₆ élevées proches de centres urbains en Floride (Santella et al., 2008)	30
Figure 1.20 : Atténuation des concentrations en CFCs dans un aquifère en conditions réductrices (Darling et al., 2012)	31
Figure 1.21 : Exemple théorique de (a) l'âge hydraulique de l'eau souterraine selon la profondeur pour un aquifère libre et homogène (n=5%, R=150 mm/an et H=100 m, équation 1.1) et (b) concentrations correspondantes des traceurs considérant leur décroissance radioactive selon les demi-vies de 12.63 ans pour le ³ H, 268 ans pour ¹ ³⁹ Ar et 5 730 ans pour le ¹⁴ C. C ₀ représente la concentration atmosphérique pour ces traceurs, supposée constante dans cet exemple pour fins de simplification.....	36
Figure 2.1 : Localisation des forages investigués en diagraphe dans le cadre de la thèse	42
Figure 2.2 : Location of wells investigated in 2016 and geological map	51
Figure 2.3 : Conceptual schematic of temperature profiles in a fractured aquifer: (a) ambient scenario, (b) pumping scenario, and (c) TS and TD temperature profiles in the borehole.....	58

Figure 2.4 : Heat budget at the borehole scale.....	61
Figure 2.5 : Dynamic depth-temperature profiles modeled with the heat budget.....	64
Figure 2.6 : Comparison of advection and conduction heat fluxes at the borehole scale. Φ advection = f(total flow rate, temperature offset due to groundwater inflow), Φ conduction = f(distance of radial temperature propagation into the aquifer, TD- TS offset).....	66
Figure 2.7 : Example of $T_i(z)$ initialisation prior to $TD(z)$ modeling with the heat budget.....	68
Figure 2.8 : Results of $TD(z)$ modeling with the heat budget at $QT=1$ L/min. (a) Flow-depth distribution; (b) dynamic temperature profiles ($TD(z)$) and temperatures of inflows ($T_i(z)$)	69
Figure 2.9 : Results of $TD(z)$ modeling with the heat budget at $QT=20$ L/min. (a) Flow-depth distribution; (b) dynamic temperature profiles ($TD(z)$) and temperatures of inflows ($T_i(z)$)	70
Figure 2.10 : Temperature profiles in June 2016 for all wells under static conditions (a), and under static and dynamic conditions for wells PO-7 (b), P-Cl (c), and F3 (d)	72
Figure 2.11 : Borehole PO-7 logging results: (a) televIEWING close-up of the most productive fracture, (b) televIEWING log, (c) flow distribution obtained by flowmeter, (d) vertical distribution of hydraulic conductivity obtained by flowmeter, and (e) temperature profiles under static and dynamic conditions and temperature of groundwater inflows calculated with the heat budget	77
Figure 2.12 : Borehole F3 logging results: (a) televIEWING close-up of productive intervals, (b) televIEWING log, (c) flow distribution obtained by flowmeter and flow calculated with the heat budget between 14 and 16 m depth, (d) vertical distribution of hydraulic conductivity obtained by flowmeter, and (e) temperature profiles under static and dynamic conditions and temperature of groundwater inflows calculated with the heat budget.....	78
Figure 2.13 : Temperature profiles in well F3: static conditions for June and November 2016 (a); static and dynamic conditions with several discharge rates and pumping durations for June (b) and November (c). T_i are the mean inflow temperatures calculated using the borehole-scale heat budget	79
Figure 2.14 : Evolution of main inflow temperatures ($T_i(z)$) in well F3 during November 2016 pumping.....	81
Figure 2.15 : Localization of boreholes investigated in 2017-2018 and geological map	94

Figure 2.16 : Camera snapshots (Saint-Lawrence Lowlands) of features providing groundwater inflows: (a) dissolution conduit-dolomite; (b) discrete fracture-red shale; (c) fractured interval-dolomite	95
Figure 2.17 : Diagram of the heat budget in a section of borehole	97
Figure 2.18 : Different flowing systems resulting from various pump placement in the wellbore: (a) pump placed at the top; (b) pump placed at the bottom; (c) pump placed at intermediate position; (d) several pump placed at different depths; (e) pumping in wellbore influenced by a neighbouring pumping	100
Figure 2.19 : Borehole Heat Budget Calculator fitting procedure	103
Figure 2.20 : Conceptual heat budgeting using the BHB Calculator with pump placed: (a) on top; (b) in the middle; (c) at the bottom.....	105
Figure 2.21 : Wellbore #1 logging: (a) wellbore characteristics, (b) temperature profiles, (c) flowmeter profile, (d) televIEWING.....	107
Figure 2.22 : Wellbore #2 logging: (a) wellbore characteristics, (b) temperature profiles, (c) flowmeter profile, (d) televIEWING.....	108
Figure 2.23 : Wellbore #3 logging: (a) wellbore characteristics, (b) temperature profiles, (c) flowmeter profile, (d) televIEWING.....	109
Figure 2.24 : Wellbore #4 logging: (a) wellbore characteristics, (b) temperature profiles, (c) “static” flowmeter profile, (d) flowmeter profile with pumping, (e) televIEWING	110
Figure 2.25 : Heat budget modeling for wellbore #1	112
Figure 2.26 : Heat budget modeling for wellbore #2	114
Figure 2.27 : Heat budget modeling for wellbore #3	116
Figure 2.28 : Heat budget modeling for wellbore #4	117
Figure 2.29 : Compilation de la distribution des transmissivités (t_i), des conductivités hydrauliques (k_i) et de l’ouverture apparente des fractures (b_i) en fonction de la profondeur pour les 15 puits investigués	123
Figure 3.1 : Localization of the wellbores investigated and geological map.....	140
Figure 3.2 : Groundwater passive samplers and dispatching to subsequent vials for analysis.....	142
Figure 3.3 : Laboratory re-equilibration test for passive liquid samplers (a) a sampler filled with distilled water, as used in situ, (b) a sampler containing a solution more saline than that of its environment to only solicit molecular diffusion....	143
Figure 3.4 : passive samplers for noble gases and sealing clamps.....	144

Figure 3.5 : Representation of flow conditions and sampler's placement in a long screened wellbore during pumping	145
Figure 3.6 : Reactions of dissolution, exchanges and isotopic fractionations of DIC involved in correction models for radiocarbon dating	149
Figure 3.7 : Equilibration results in laboratory: (a) conditions as implemented in situ (samplers filled with warmer distilled water), (b) equilibration soliciting only molecular diffusion (isothermal experience with higher mineralization into the sampler).....	155
Figure 3.8 : Theoretical breakthrough curves for the transport of Na-Cl by molecular diffusion in stagnant water at 20°C.....	156
Figure 3.9 : Borehole logging results for well influenced by permanently occurring flows. Flows in and out from the wellbores are depicted by green and red arrows. Red or grey color for sampler's depth refers to flowing or stagnant water zones.	158
Figure 3.10 : Placement of passive samplers for wells having stagnant water column. Flows for Chateauguay were imposed by a permanent low flow pumping. Flows into the wellbore are represented by green arrows. Grey arrows represent the position of fractures identified from pumping tests. Red or grey color for sampler's depth refers to flowing or stagnant water zones.....	159
Figure 3.11 : Stand-alone low flow pumping system with solar panel.....	160
Figure 3.12 : Temperature surveys in the Mirabel (a) and St-Roch (b) wellbores before and after passive sampling (unchanged flow directions in the water column).	161
Figure 3.13 : Comparison of passive samplers compositions and groundwater pumped at depth.....	162
Figure 3.14 : TDS as a function of depth and lithology (red-schist, orange-sandstone, green-dolomite and blue-limestone)	164
Figure 3.15 : (a) Saturation Indexes for calcite and dolomite; (b) Saturation Indexes for incongruous dissolution of dolomite driven or not by gypsum dissolution	165
Figure 3.16 : Samples pCO ₂ as a function of pH, shown together with saturation equilibriums for calcite and initial pCO ₂ at recharge (soil and atmosphere)....	166
Figure 3.17 : Bicarbonate and carbonate as a function of (a) pCO ₂ and (b) the anionic charge	166
Figure 3.18 : (a) Saturation Index for gypsum and (b) sulfate contributions to the anionic charge	168

Figure 3.19 : Chlorine concentrations as a function of (a) anions and (b) Na/Cl ratio	169
Figure 3.20 : ^{18}O and ^2H compositions and local meteoric data	170
Figure 3.21 : ^{18}O and ^2H compositions sampled at depth. Arrow represents samples within mixing zones	171
Figure 3.22 : Graphical representation of the main geochemical processes that interfere with radiocarbon dating (Han et al., 2012).....	172
Figure 3.23 : ^{14}C and ^{13}C compositions and models predictions for various $\delta^{13}\text{C}_{\text{Cg}}$. Samples with similar pH are represented in (a, b) St-Lazare and Chateauguay; (c, d) Ormstown, Napierville and Chateauguay 55m; (e, f) Mirabel and St-Roch	176
Figure 3.24 : $^3\text{He}/^4\text{He}$ - $\text{Ne}/^4\text{He}$ ratios in samples to distinguish about He sources..	183
Figure 3.25 : Weise diagram for the evaluation of ^3He contributions in samples	184
Figure 3.26 : (a) $^3\text{H}/^3\text{He}$ ages and (b) $^4\text{He}_{\text{terr}}$ concentrations at depth	186
Figure 3.27 : $^3\text{H} + ^3\text{He}_{\text{tri}}$ in samples compared with historical ^3H inputs in precipitations (Ottawa Station) and with compositions of mixing with 75 and 95% pre-bomb water (8 TU). “gas” and “water” refer to the sampling mode for noble gases.....	188
Figure 3.28 : evaluation of flow mixing conditions for Chateauguay wellbore: (a) $\text{SF}_6/\text{CFC-12}$ compositions and (b) $^3\text{H} + ^3\text{He}_{\text{tri}} / \text{SF}_6$ compositions compared with those predicted by flow and mixing models (PFM, EMM, BMM)	189
Figure 3.29 : Mixing conditions evaluated for Chateauguay with $^3\text{H} + ^3\text{He}$ and corrected ^{14}C activities (i.e. $^{14}\text{C}_0=100 \text{ pMC}$, ^{14}C ages computed with $\delta^{13}\text{C}=-23\text{\textperthousand}$). Error bars for ^{14}C are given as $\pm 1\text{\textperthousand} \delta^{13}\text{C}_{\text{g}}$	192
Figure 3.30 : TDS data deconvoluted at fractures (a) compared with those measured with passive samplers at depths within mixing zones (b). Outside of mixing zones (symbols not associated with arrows), composition and depths are directly those of fractures.....	195
Figure 3.31 : ^3H content compared with groundwater mineralization: (a) electrical conductivity, (b) bicarbonates, (c) chlorine and (d) sulfate	200
Figure 4.1 : Caractéristiques du puits de Châteauguay (profondeur, position des fractures, données datation tritium et radiocarbone) placées dans le contexte topo géologique de la région : (a) carte du modèle d’élévation (b) profil topo géologique et emplacement du puits	209
Figure 4.2 : Portrait conceptuel concernant le calage de modèles numériques d’écoulement pour la délimitation des aires de protection avec des traceurs	

environnementaux : (a) multitraçage détaillé du mélange pompé, (b) traçage séquentiel uniquement avec des traceurs récents (cas anticipé en cas de stratification verticale), (c) Contexte d'aquifère rocheux fracturé (observations découlant de la thèse).....	225
--	-----

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 2.1 : Avantages et inconvénients des méthodes diagraphiques utilisées.....	125
Tableau 3.1 : Exemple du temps nécessaire à l'homogénéisation de la colonne d'eau dans un puits en contexte d'aquifère hétérogène	130
Table 3.2 : Concentrations measured at depths by passive sampling and by low flow pumping	162
Table 3.3 : Comparison of passive sampling with samples collected at pumping's discharge	163
Table 3.4 : Radiocarbon dating modeling	177
Table 3.5 : Excess air and NGT modeling in groundwater samples	180
Table 3.6 : Noble gases results from water (w) and gas (g) passive sampling	182
Table 3.7 : Results for ${}^4\text{He}_{\text{terr}}$, ${}^3\text{He}_{\text{tri}}$, ${}^3\text{H}$ and ${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$ ages.....	185
Table 3.8 : SF ₆ and CFC-12 dating results.....	187
Table 3.9 : Recharge area length and confinement condition computed from ${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$ ages.....	198

RÉSUMÉ

Cette recherche concerne l'investigation verticale physique et hydrogéochimique d'aquifères rocheux fracturés carbonatés sur une profondeur de 100 m. Au Québec, l'exploitation d'aquifères rocheux fracturés assure l'approvisionnement en eau de plus du tiers des municipalités et de près de 80% de la population en région rurale depuis des puits individuels. Depuis 2008, des campagnes d'investigations majeures sont réalisées au Québec et ont déjà permis l'acquisition de connaissances remarquables sur les systèmes hydrogéologiques et hydrogéochimiques régionaux. En lien avec cet élan d'acquisition de connaissances, l'objectif de cette recherche est de détailler l'hétérogénéité des aquifères à l'échelle de forages, et d'identifier, le cas échéant, la stratification des masses d'eau selon la profondeur. La recherche menée comporte une première composante physique focalisant sur les relevés diagraphiques en température. La deuxième composante porte sur le développement d'échantilleurs passifs permettant la collecte de données hydrogéochimiques en mode séquentiel. Le couplage de ces deux méthodes permet de tirer un portrait de la stratification verticale d'aquifères rocheux fracturés (Groupes de Potsdam, de Beekmantown et de Trenton) situés dans les Basses-Terres du Saint-Laurent, et quelques puits dans la région des Appalaches. Au total, vingt et un (21) forages d'une profondeur comprise entre 22 et 128 m ont été investigués par diagraphie en température haute résolution. Quinze (15) de ces puits ont également inclus des relevés microvélométriques et optiques et ont été sollicités en pompage. Neuf (9) puits sur les vingt et un (21) puits diagraphiés ont présentés des débits passifs ou étaient sous l'influence de pompages municipaux voisins. Dix puits (10) ont fait l'objet d'investigations hydrogéochimiques. Vingt-neuf (29) échantillonnages séquentiels ont été collectés pour les ions majeurs et les isotopes stables de l'eau, dix-sept (17) pour le tritium, treize (13) pour le ^{14}C et le ^{13}C , quinze (15) pour les gaz rares et quatre (4) pour le SF₆ et le CFC-12. Les résultats diagraphiques relèvent une grande hétérogénéité de la distribution des fractures et de leurs transmissivité. Quarante-vingts pour cent (80%) des zones productives identifiées ($n=54$ pour 15 forages) sont des fractures discrètes ou des conduits, dont l'ouverture apparente est comprise entre 1 et 40 cm. La transmissivité des fractures est très inégale ($1.9 \cdot 10^{-2}$ à $2.2 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$, moyenne harmonique $2.6 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$) et aucune tendance n'est discernable selon la lithologie ou selon la profondeur. Les investigations thermiques en conditions dynamiques ont permis d'identifier que la moitié des fractures drainent des horizons aquifères plus profonds que la fracture interceptant le puits, et l'autre moitié des horizons superficiels (moins profonds que la fracture) plutôt drainés depuis la surface. Les investigations vis-à-vis du système calcocarbonique reportent une influence dominante de la dissolution des carbonates. Cependant, ces eaux "modernes" auraient

une évolution plutôt limitée en système fermé vis-à-vis du CO₂. L'échange isotopique entre le CID et la matrice carbonatée et l'échange cationique sont évidents et témoignent d'une certaine évolution des eaux souterraines au sein de ces aquifères. Les minéralisations les plus élevées sont essentiellement liées à la présence de minéraux très solubles, sulfates et apports salins. Les résultats en datation mettent en lumière la présence majoritaire de masses d'eau « modernes » (c.-à-d. âges ³H/³He et SF₆ de 16 à 44 ans). La recharge de la moitié de ces masses d'eau serait postérieure aux années 1960, et l'autre moitié serait un mélange disparate (mélange binaire) avec des proportions atteignant 75% d'eaux pré-1960. L'interprétation concernant les âges ¹⁴C et les isotopes stables de l'eau suggèrent l'absence de masses d'eau significativement « anciennes », ce d'autant plus quand les puits sont influencés par des pompages municipaux voisins, ce qui modifie les conditions d'écoulements naturels. Les temps de résidences « modernes » n'apparaissent pas influencer la composition (type et minéralisation totale) des masses d'eau. La composition minérale ne varie pas ou très peu selon la profondeur, et quand elle survient, est essentiellement liée à la présence de minéraux les plus solubles (sulfates et apports salins). Les données collectées reportent ainsi une distribution hétérogène des zones productives selon la profondeur. Les masses d'eau majoritairement « modernes » seraient reliées à des écoulements relativement « rapides » au sein des fractures, accentués par les drainages anthropiques, quelle que soit la profondeur. Les réseaux de fractures n'induisent pas de conditions captives, ou en tout cas, ceci n'est pas apparent ni selon la composition, ni selon le temps de résidence de l'eau. Ces écoulements « modernes » et mélangés n'induisent pas de stratification des masses d'eau sur la fenêtre d'observation de 100 m de profondeur.

Mots clés : Aquifère rocheux fracturé, Diagraphie thermique, Datation de l'eau souterraine, Échantillonnage passif, Hydrogéochimie, Tritium, Radiocarbone, Gaz rares.

ABSTRACT

This research concerns the vertical physical and the hydrogeochemical investigation of carbonate fractured aquifers over a depth of 100 m. In Quebec, the exploitation of fractured aquifers ensures the water supply of more than a third of the municipalities and nearly 80% of the population in rural areas from individual wells. Since 2008, major investigation campaigns have been conducted in Quebec and have already led to the acquisition of remarkable knowledge on regional hydrogeological and hydrogeochemical systems. In relation with this momentum, the objective of this research is to detail the heterogeneity of aquifers at the scale of boreholes, and to identify, if occurring, the stratification of water bodies according to the depth. The research conducted includes a first physical component focusing on temperature surveys. The second component involves the development of passive samplers dedicated to the sequential collecting of hydrogeochemical data. The coupling of these two methods enables to draw a portrait of the vertical stratification of fractured aquifers located in the St. Lawrence Lowlands region (Potsdam, Beekmantown and Trenton Groups) as well as some wellbores in the Appalachian's range. A total of 21 boreholes ranging from 22 to 128 m depth were investigated by high-resolution temperature logging. Fifteen (15) of these wells also included spinner flowmeter and optical surveys and solicited by pumping. Nine (9) among twenty-one (21) wellbores investigated were influenced by natural passive flow or by nearby municipal pumping. Ten wells (18) were investigated for hydrogeochemistry. Twenty-nine (29) samples were sequentially collected for major ions and stable isotopes of water, seventeen (17) for tritium, thirteen (13) for ^{14}C and ^{13}C , fifteen (15) for noble gases, and four (4) for SF₆ and CFC-12. Borehole logging results show a large heterogeneity in the distribution of fractures and their transmissivity. Eighty percent (80%) of the productive zones identified ($n=54$ for 15 boreholes) are discrete fractures or conduits, with apparent apertures ranging from 1 to 40 cm. The transmissivity of the fractures is very uneven ($1.9 \cdot 10^{-2}$ to $2.2 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$, harmonic mean $2.6 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$) and show no discernible trend according to lithology or depth. Thermal investigations under dynamic conditions have identified that half of the fracture drain aquifer horizons deeper than the fractures themselves, and the other half likely drain water from the surface or shallower horizons. Investigations regarding the calco-carbonic system reports the dominance of carbonates weathering. However, these "modern" waters showed rather limited evolution in a closed system conditions towards CO₂. Isotopic exchange between DIC and carbonate matrix and cation exchange are evident and still testifies about a certain evolution of groundwater within the aquifers. Highest water mineralization relates to the presence of highly soluble materials such as sulfate from gypsum dissolution and saline inputs. Groundwater dating reports the

prevalence of "modern" water bodies (i.e. $^3\text{H}/^3\text{He}$ and SF_6 ages ranges from 16 to 44 years). Half of these water bodies would have recharged post-1960s, and the other half would be a binary mixture with proportions of up to 75% of pre-1960s waters. Interpretation regarding ^{14}C ages does not report significant contribution of "old" water bodies, especially when the wellbores are influenced by nearby municipal pumping which are modifying groundwater flows apart from their natural dynamic. "Modern" residence times do not appear to influence the composition (water type and total mineralization) of the groundwater. Little or no variation of mineral composition is observed towards the depth, and when it does occur, is essentially site dependent and related to the presence of soluble minerals (sulfate and saline inputs). The data collected report heterogeneous distribution of the productive zones according to depth. Such "modern" water bodies are related to relatively "quick" flows, enhanced by nearby pumping whatever the depth, suggesting that the fracture networks do not induce apparent confining conditions, or at least, it is not apparent regarding water composition and residence time. These "modern" and mixed flows (pre/post 1960s) do not follow evident vertical stratification of water masses over a range of between 0 to 100 m depth for the wells investigated.

Keywords: Fractured carbonate aquifer, Long screened wellbore, High resolution temperature sensing, Groundwater dating, Passive sampling, Hydrogeochemistry, Tritium, Radiocarbon, Noble gases.

INTRODUCTION

Cette recherche concerne l'investigation d'aquifères rocheux fracturés situés dans les Basses-Terres du Saint-Laurent, Québec, Canada. L'investigation focalise particulièrement sur les conditions de stratification selon la profondeur. Une motivation initiale pour ces travaux de thèse concerne spécifiquement un partenariat industriel dans le cadre d'une subvention en recherche et développement coopératif du CRSNG. Dans ce cadre, les entreprises TechnoRem et Envir'Eau-Puits, partenaires du projet de recherche, ont exprimé un vif intérêt quant à l'amélioration des mesures de protection des captages municipaux. Ces intérêts concernaient le développement de méthodologies d'investigation verticale d'aquifère qui soient robustes et opérationnelles, et qui visaient à bonifier la délimitation des aires de protection des captages. Ceci notamment dans le cadre de la modélisation des aires de protection intermédiaire bactériologique et virologique, qui sont définies réglementairement selon des temps de résidence de l'eau souterraine (c.-à-d. 200 et 550 jours). Ces temps de résidence ne sont habituellement pas corroborés selon l'échantillonnage de traceurs environnementaux. Par ailleurs, de nombreuses études hydrogéologiques régionales sont réalisées depuis 2008 au Québec selon le Programme d'Acquisition de Connaissance sur les Eaux Souterraines. Ces dernières ont déjà permis l'acquisition massive de connaissances sur les systèmes hydrogéologiques présents, tant sur les aspects physiques touchant à la géomorphologie des dépôts glaciaires, des contextes hydrogéologiques associés, les propriétés hydrauliques, les conditions de recharge et la disponibilité de la ressource en eau, que ceux relatifs à la géochimie des eaux et de leur qualité. Les caractérisations hydrogéochimiques ont particulièrement bien décrit les processus

dictant la composition des eaux souterraines et leur qualité, tout en permettant d'argumenter et de bonifier la compréhension des systèmes hydrogéologiques en place. Des informations ont également été collectées concernant la datation des masses d'eau, principalement par la collecte de tritium et radiocarbone. De par la nature régionale de ces études, la densité des échantillonnages a généralement été de l'ordre d'un puits par 30 km^2 de territoire. Pour ces études, la collecte d'échantillons pour les ions majeurs et les différents traceurs a été réalisée depuis l'eau pompée aux puits. Ces derniers représentent ainsi la composition moyenne des solutés selon l'épaisseur de l'aquifère intercepté, au prorata des mélanges d'eaux venant des différentes zones productives du forage. À noter que la grande majorité des puits investigués lors de ces études régionales concernent des aquifères rocheux fracturés.

Afin de complémenter les informations découlant des études régionales et de répondre aux intérêts des entreprises partenaires TechnoRem et Envir'Eau-Puits, l'approche privilégiée pour cette recherche est l'investigation d'un nombre plus restreint de puits, mais d'une manière plus détaillée pour chacun. Le niveau de détail concerne la collecte d'informations de nature physique et hydrogéochimique en fonction de la profondeur. Les aquifères rocheux fracturés sont nécessairement associés à des hétérogénéités physiques. L'approche proposée a pour objectif de donner un portrait concernant la distribution des fractures et de leur productivité en fonction de la profondeur, ainsi que de mettre en lumière, ou d'infirmer, si l'hydrogéochimie de l'eau souterraine est dépendante de la profondeur. Dans ce qui suit, le terme « stratification verticale » fait référence aux variations des propriétés hydrauliques ou de l'hydrogéochimie qui seraient dépendantes de la profondeur au sein de l'aquifère. L'investigation en stratification verticale vise ici les aquifères rocheux fracturés car les puits interceptent des épaisseurs significatives (au moins plusieurs dizaines de mètres) tandis que les crêtes des puits installées en contexte d'aquifères granulaires n'excèdent généralement pas quelques mètres, rendant les investigations en dépendance à la profondeur moins pertinentes. Au Québec, les

aquifères rocheux fracturés assurent l'approvisionnement de plus du tiers des municipalités et de près de 80% de la population en région rurale depuis des puits individuels. La question de la stratification verticale est importante car elle peut engendrer des enjeux liés à la qualité et la vulnérabilité des masses d'eau souterraine. Ainsi, une stratification d'âge serait éventuellement à relier à une minéralisation croissante selon la profondeur, et donc à une qualité naturelle de l'eau souterraine qui serait meilleure en surface qu'en profondeur. Les eaux superficielles seraient en revanche plus facilement affectées par des pollutions d'origine anthropique qui se trouvent à la surface du sol. Ces remarques concernant les masses d'eau sont indissociables de la stratification physique. La profondeur des fractures hydrauliquement actives et leur distribution dans les forages déterminent la profondeur des apports d'eaux souterraines collectées au puits. Finalement, la considération de la stratification éventuelle des aquifères rocheux fracturés est également déterminante pour adapter les mesures de protection de captages. Ces mesures de protection étant contraintes selon des temps de résidence de l'eau souterraine, qui sont généralement modélisés en considérant des aquifères à matrice poreuse primaire et relativement homogène.

La recherche menée comporte une composante physique focalisant sur les relevés diagraphiques en température, et une deuxième composante portant sur le développement et la collecte de données hydrogéochimiques en mode séquentiel grâce à des échantilleurs passifs. Le couplage de ces méthodes vise à identifier, le cas échéant, les stratifications verticales d'ordre hydraulique et hydrogéochimique à l'emplacement des fractures hydrauliquement actives selon la profondeur. Les investigations ont porté sur des aquifères rocheux fracturés dans la région des Basses-Terres du Saint-Laurent. Au total, 21 forages d'une profondeur comprise entre 22 et 128 m ont été investigués par diagraphie en température haute résolution. Quinze de ces puits ont également inclus des relevés microvélodimétrique et optique et ont été sollicités en pompage. Dix puits présentant une distribution de zones productives

favorables (c.-à-d. relativement bien distribuées selon la profondeur) ont fait l'objet d'investigations hydrogéochimiques. Vingt-neuf échantillons ont été collectés séquentiellement pour les ions majeurs et les isotopes stables de l'eau, 17 pour le tritium, 13 pour le ^{14}C et le ^{13}C , 15 pour les gaz rares et 4 pour le SF₆ et le CFC-12.

Selon ces composantes, le document est structuré de la manière suivante :

- Le Chapitre I présente une revue de l'état des connaissances concernant l'investigation physique des aquifères hétérogènes, et concernant la portée et les limitations liées aux techniques de datation de l'eau souterraine. Dans le cadre du Québec, l'état des connaissances est présenté concernant les propriétés hydrauliques et l'hétérogénéité des aquifères rocheux fracturés (Section 1.2.4), ainsi que pour l'hydrogéochimie et la datation (Section 1.3.4). La fin du chapitre I souligne la pertinence de l'investigation verticale d'aquifères rocheux fracturés et décrit les hypothèses et les objectifs de la thèse.
- Le Chapitre II traite des investigations diagraphiques qui ont été réalisées entre 2016 et 2019 sur 21 forages situés dans les Basses-Terres du Saint-Laurent. Ces relevés diagraphiques avaient pour objectif de mesurer les propriétés hydrauliques en fonction de la profondeur des puits. Les investigations diagraphiques ont particulièrement focalisé sur le développement de la diagraphie thermique haute résolution, en s'appuyant sur des mesures par micromoulinet et des relevés optiques. Ces développements sont notamment présentés sous la forme d'articles publiés aux sections 2.4 et 2.5. Ces articles concernent la cartographie de la distribution des zones productives dans les puits, le traçage thermique de l'origine de l'eau au sein des aquifères, ainsi que la modélisation analytique des flux de chaleur. Par l'intermédiaire du deuxième article, un outil analytique est mis à disposition de la communauté désireuse d'exploiter les relevés thermiques haute résolution dans les forages.
- Le Chapitre III présente les investigations hydrogéochimiques qui ont été réalisées entre 2017 et 2019 sur 10 forages préalablement caractérisés en diagraphie

complète. Un manuscrit d'article présente l'ensemble de ces résultats (Section 3.3). Les résultats rapportent le développement d'échantillonneurs passifs qui ont été spécifiquement testés en laboratoire et utilisés *in-situ* pour la collecte de solutés non gazeux (c.-à-d. ions majeurs, ^3H , ^{13}C , ^{14}C , ^2H et ^{18}O). Les investigations concernent également la collecte d'eau souterraine pour les gaz rares (eau et échantillonnage passif gazeux), ainsi que les SF₆ et le CFC-12 pour un site. Le manuscrit détaille la représentativité des échantillonnages séquentiels de l'eau souterraine sur une fenêtre d'observation atteignant 100 m de profondeur. Les processus hydrogéochimiques dominants la qualité de l'eau sont décrits en fonction des systèmes calcocarboniques impliqués, la présence de minéraux très solubles, et grâce aux isotopes du carbone pour les échanges avec la matrice carbonatée. La signification des concentrations pour les traceurs investigués ($^3\text{H}/^3\text{He}$, SF₆, CFC-12, ^2H , ^{18}O et ^{14}C) est interprétée en termes de temps de résidence, systèmes d'écoulement, mélanges et de vulnérabilité relative des masses d'eau investiguées.

- Le chapitre IV présente les conclusions des travaux, les contributions de la thèse, les limitations, ainsi que des recommandations et des pistes de recherches futures.

Des travaux réalisés pendant le cadre de la thèse sont présentés en annexe et en appendices. La modélisation, essais en laboratoire et mesures *in-situ* concernant des travaux en développement sur l'échantillonnage passif gazeux des traceurs SF₆, CFC-11, CFC-12 et CFC-113 sont présentés à l'Annexe B. Un article généraliste publié concernant la ressource en eau du Québec est présenté à l'Appendice A, ainsi que des essais réalisés par traçage chimique dans les forages sont présentés à l'Appendice B.

CHAPITRE I

ÉTAT DES CONNAISSANCES SUR L'INVESTIGATION DE L'HÉTÉROGÉNÉITÉ DES AQUIFÈRES, DATATION DE L'EAU SOUTERRAINE ET ÉTUDES HYDROGÉOCHIMIQUES AU QUÉBEC

1.1 Introduction du chapitre I

Bien que les lois physiques relatives à l'écoulement de l'eau et au transport de soluté en milieux poreux soient bien connues (c.-à-d. équations de continuité pour les écoulements et d'advection-dispersion de solutés), un des défis récurrent de l'hydrogéologie reste d'estimer la distribution des propriétés hydrauliques des aquifères, ces dernières étant généralement réparties de manière hétérogène. La recherche en hydrogéologie porte ainsi sur une myriade de techniques : essais hydrauliques; essais de traçage; hydrogéochemie et modélisations numériques subséquentes, qui visent essentiellement à comprendre et à cartographier le mieux possible ces hétérogénéités contrôlant les écoulements souterrains et le transport de solutés. Les propriétés hydrauliques des aquifères sont le plus souvent déterminées grâce à la réalisation d'essais de pompage et d'essais de perméabilité à différence de charge variable. Ces techniques fournissent une mesure rapide et fiable des transmissivités moyennes au sein du rayon d'influence des différentes approches. Associé aux essais de débit, ceci représente une information généralement suffisante pour la gestion de la ressource en eau souterraine en termes de productivité. Cependant, pour les applications où le transport de soluté intervient et ne peut pas être

négligé (c.-à-d. délimitation des aires de protection des captages, caractérisation et réhabilitation d'aquifères contaminés), la connaissance des paramètres hydrauliques moyens devient insuffisante et les patrons d'écoulement des eaux souterraines doivent être caractérisés à l'aide d'autres outils complémentaires, impliquant généralement la collecte et l'interprétation de données hydrogéochimiques et de traceurs. Dans le cadre du prélèvement de l'eau souterraine pour fins de consommation humaine, la détermination de la composition de l'eau dans les forages et des temps de résidence associés sont essentielles, car ces dernières sont des indicatrices de la qualité de la ressource en eau, de sa vulnérabilité aux contaminations anthropiques, ainsi que de sa pérennité en ce qui concerne son exploitation.

L'état des connaissances présenté dans cette section rapporte les moyens d'investigations réalisés pour caractériser l'hétérogénéité physique des aquifères rocheux fracturés, les approches et les limitations liées à la datation de l'eau souterraine, ainsi qu'un rappel des études hydrogéochimiques réalisées au Québec.

1.2 Investigations physiques de l'hétérogénéité des aquifères

Les hydrogéologues doivent faire face à un certain degré d'hétérogénéité spatiale. Ceci parce que l'architecture des aquifères est déterminée par des processus géologiques (sédimentaires, tectoniques et d'altération) dont la complexité engendre quasi systématiquement des écoulements complexes (de Marsily et al., 2005). Bien qu'il existe des aquifères relativement homogènes, ceux-ci représentent des cas exceptionnels et habituellement, les conductivités hydrauliques sont hétérogènes. De surcroît, les valeurs de conductivité hydraulique dépendent de l'échelle à laquelle elles sont mesurées (Schulze-Makuch et al., 1999), selon les différents volumes d'aquifères sollicités. Sollicitant des volumes croissants de matrice aquifère, citons les essais au perméamètre en laboratoire, les essais dans les puits à charge imposée et essais de pompage à différentes échelles d'observation (Figure 1.1).

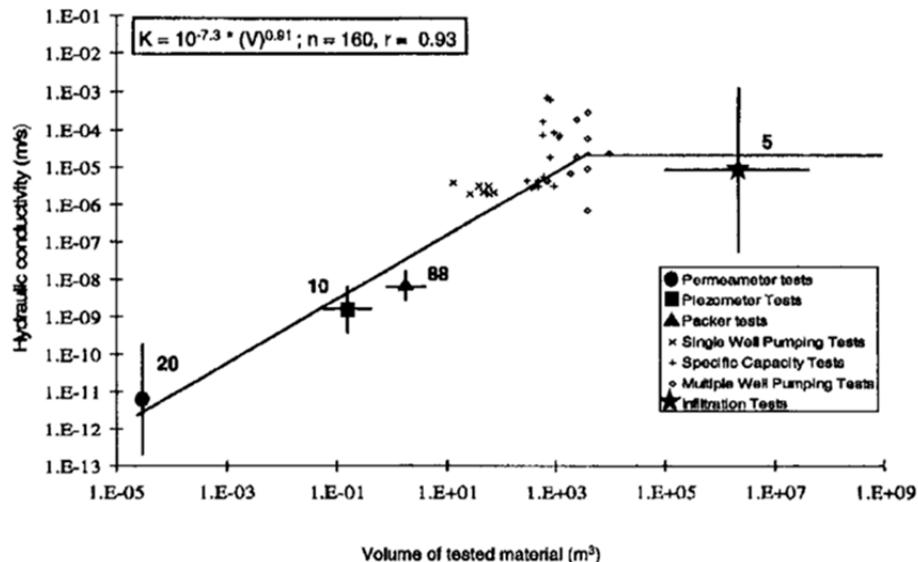


Figure 1.1 : Dépendance de la conductivité hydraulique selon l'échelle de différents essais hydrauliques. Aquifère fracturé carbonaté, Racine Formation, Wisconsin (tiré de Schulze-Makuch et al., 1999)

1.2.1 Diagraphies physiques

Il existe de nombreuses méthodes de diagraphies utilisées dans le domaine des sciences de la Terre. Certaines visent à caractériser la stratigraphie des unités géologique dans les forages, d'autres à déterminer la nature des matériaux. Les diagraphies dont il est question dans cette thèse visent essentiellement à la détermination de la distribution des conductivités hydrauliques selon la profondeur dans les forages. La technique des essais par obturateurs reste la plus répandue pour mesurer la distribution verticale de la conductivité hydraulique dans les forages. Elle consiste à obtenir la conductivité hydraulique d'un segment isolé du puits à l'aide d'obturateurs gonflables (Figure 1.2 a). Cette technique est utilisée depuis longtemps, en particulier pour les puits à longs intervalles crépinés, et permet d'accompagner avantageusement les essais de pompage en fournissant des informations sur les propriétés hydrauliques distribuées selon la profondeur (Dagan, 1978).



Figure 1.2 : (a) Montage pour un essai par obturateur (USGS), (b) mise en place d'un micromoulinet (UQAM)

Les essais par obturateurs nécessitent des temps d'opération sur le terrain et en analyse postopératoire non négligeables ainsi que de l'équipement spécialisé, encombrant (Figure 1.2 a), voire sensible (Yihdego, 2016). Cette technique offre au final une résolution verticale des conductivités hydrauliques qui est souvent faible comparée au temps investi, ce qui rend l'intérêt de la méthode discutable. De plus, des complications dans les conditions opératoires sont connues et peuvent rendre l'interprétation des données délicate, voire induire des biais quantitatifs sur les résultats. Parmi ces derniers, des problèmes d'étanchéité des obturateurs avec les parois du forage sont souvent rapportés pour les puits sans tubage installés dans les aquifères rocheux fracturés, ainsi que des problèmes de dépendance des résultats selon l'échelle de mesure (Illman, 2006). Il est aussi connu que la qualité des données récoltées avec des obturateurs dépend de l'existence de courts-circuits hydrauliques possibles entre fractures interconnectées à l'intérieur et en dehors des intervalles scellés (Tiedeman & Hsieh, 2001; Illman, 2006; Quinn et al., 2015). Pour les hydrogéologues en charge de l'implantation des installations de captages, de tels essais « usuels » par obturateurs s'ajouteraient aux coûts déjà induits par les essais de pompage habituels, de sorte que l'investigation dédiée à la reconnaissance de l'hétérogénéité verticale des aquifères reste finalement assez rare. Outre les essais par obturateurs, d'autres méthodes physiques de diagraphies en forage sont décrites dans

la littérature scientifique depuis les deux dernières décennies. Des méthodes utilisant les vélocimètres à moulinet (Figure 1.3) (Barahona-Palomo et al., 2011) ou électromagnétiques (F. L. Paillet, 1998; Miyakawa et al., 2000) permettent de mesurer les vitesses d'eau dans les puits en pompage pour calculer la distribution verticale des propriétés hydrauliques avec une grande résolution et avec moins d'encombrement que pour les essais par obturateur (Figure 1.2).



Figure 1.3 : Micromoulinet équipé de centreurs (Terraplus, 2014b)

Pour le même type d'applications, mais pour de faibles vitesses, les équipements à impulsions de chaleur (Hess, 1985; F.L. Paillet, 2004) sont utilisés, notamment pour la mesure de débits passifs dans les puits.

1.2.2 Diagraphie par traçage chimique

En contexte d'aquifère rocheux fracturé, des essais de traçage peuvent être réalisés dans la colonne d'eau du puits pour mettre en évidence les écoulements horizontaux au droit des fractures actives. Un tel exemple est donné par Pittrak et al. (2007) qui consiste à homogénéiser la colonne d'eau à l'aide d'un colorant, puis d'observer la dilution à l'endroit des écoulements horizontaux. D'après les auteurs, cette technique serait efficace. Mais il est tout de même mentionné qu'il est préférable d'isoler la section du puits à tester, afin d'éviter que les flux d'eau verticaux, entre des fractures situées à différentes profondeurs viennent interférer sur l'essai.

Des essais de traçage pour fins diagraphiques peuvent aussi être réalisés en injectant un traceur dans un forage pendant son pompage. La distribution de la concentration

en traceur mesurée dans la colonne d'eau (Figure 1.4 a) permet de déduire la distribution des zones productives selon la profondeur (Brainerd & Robbins, 2004; USGS, 2005).

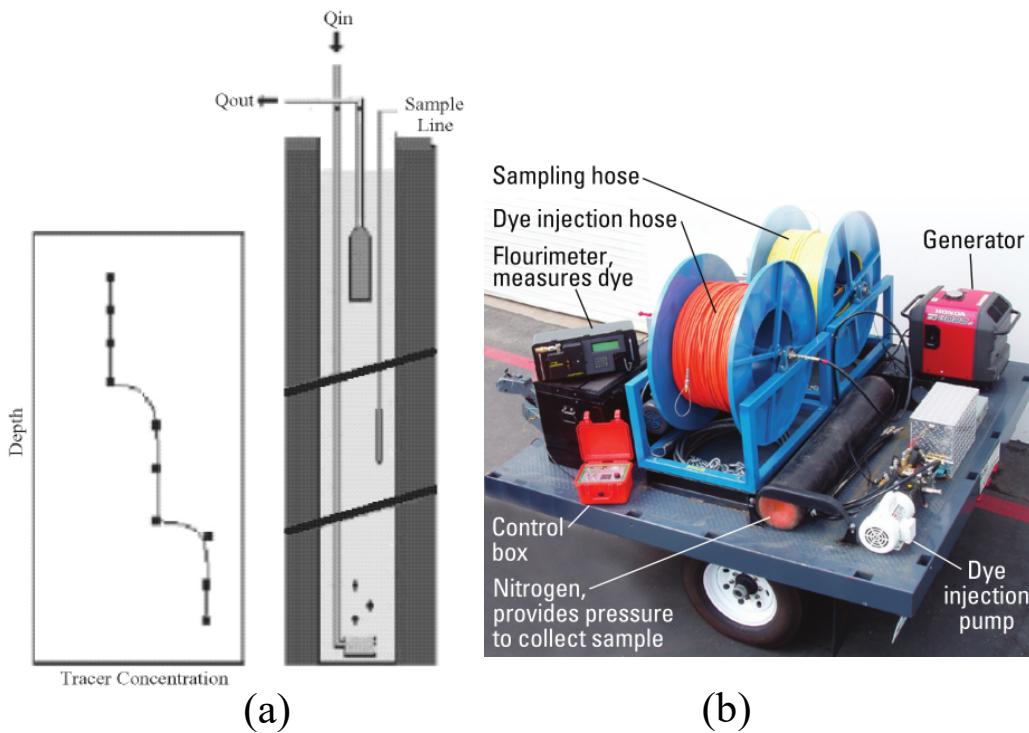


Figure 1.4 : (a) Schéma d'installation pour la diagraphie par traçage chimique et exemple de résultat conceptuel (Brainerd 2004); (b) Équipement pour fins de diagraphie chimique (USGS, 2005)

Les diagraphies par traçage chimique fourniraient des résultats d'une précision équivalente à celles utilisant les mesures de vitesse (Libby & Robbins, 2014). Cependant, ce type de diagraphie reste relativement long à opérer, et nécessite de l'équipement encombrant (Figure 1.4 b). La nature des mesures rend leur opération délicate, et si l'injection est mal réalisée, il faut vidanger l'ensemble de la colonne d'eau avant de pouvoir réaliser un nouvel essai. Pour avoir une résolution spatiale équivalente aux équipements mesurant des vitesses, le traçage chimique est en comparaison beaucoup moins efficace, car il nécessite l'acquisition de nombreux points d'échantillonnage. Enfin, le principal désavantage du traçage chimique est que

si l'injection est réalisée dans une zone de production très faible, la remontée du traceur jusqu'à la surface du puits peut nécessiter un temps considérable. En ce sens, ne sachant pas a priori pas à quelle profondeur sont situées les zones productives, il est quasi impossible qu'un traçage chimique puisse être réalisé pour l'intégralité du puits dès le premier essai. Au début des présents travaux, des essais par traçage chimique ont été réalisés dans certains puits (Appendice B), mais cette technique a été délaissée, du fait des nombreuses limitations citées plus haut, au profit de la diagraphie en température haute résolution qui offrait un meilleur potentiel d'étude et de développement en recherche (Chapitre II).

1.2.3 Investigations diagraphiques en température

La mesure de la température dans les forages est un autre type d'investigation diagraphique. Les profils de température dans les forages profonds (plusieurs centaines de mètres) peuvent être utilisés pour estimer les variations climatiques (Mareschal & Beltrami, 1992; Gosselin & Mareschal, 2003). Les mesures de température sont également utilisées spécifiquement en hydrogéologie, soit pour estimer les taux de recharge (Figure 1.5) (Taniguchi et al., 1999a; Ferguson & Woodbury, 2005), les écoulements souterrains à l'échelle locale (Keys & Brown, 1978) ou régionale (Saar, 2011), ou pour estimer l'hétérogénéité latérale des propriétés hydrauliques sur une section d'aquifère (Ferguson, 2007). Ces dernières applications traitent généralement de processus de transport de chaleur à des échelles relativement grandes et/ou sur des durées relativement longues, soit au moins sur une échelle temporelle saisonnière.

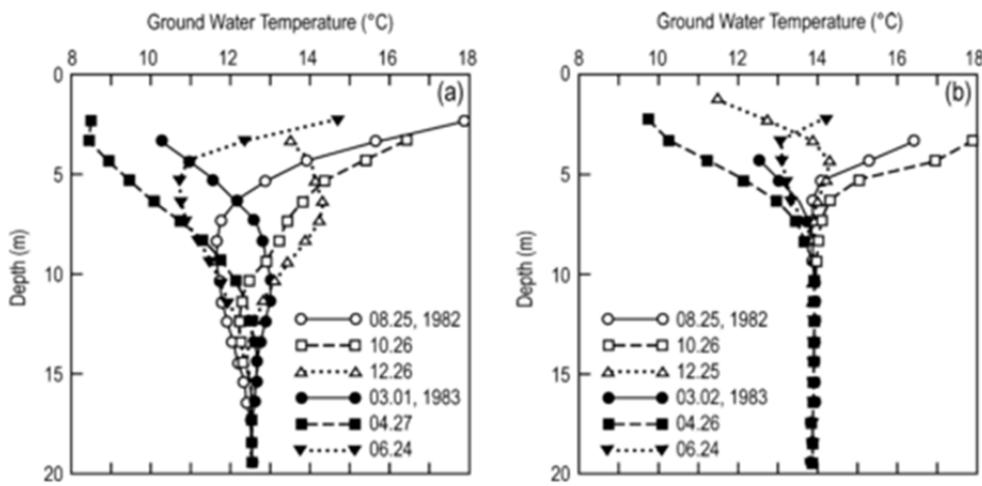


Figure 1.5 : Profils de température saisonniers dans des puits (a) en condition de recharge et (b) en condition de décharge (Taniguchi, 1993)

À l'échelle d'un puits, la température haute résolution présente un intérêt particulier pour l'hydrogéologie et son application s'est améliorée depuis la dernière décennie, car la résolution des thermistances atteint désormais le millième de degré. Étant donné que le transfert de chaleur est un processus physique particulier, l'information hydrogéologique obtenue à partir des mesures de la température n'est pas seulement complémentaire à d'autres techniques d'investigation conventionnelles (c.-à-d. impliquant des analyses d'ordre hydraulique ou hydrogéochimique), mais elle s'en distingue clairement. Ces techniques permettent d'obtenir, par une mesure passive relativement rapide de la température, des informations très pertinentes concernant les hétérogénéités des aquifères, comme l'emplacement et les interconnexions des zones productives en systèmes fracturés, ainsi que l'origine de l'eau souterraine drainée en pompage. Selon des pompages réalisés en milieu karstique, Chatelier et al. (2011) décrivent la distribution verticale et l'interconnectivité des fractures dans les puits en couplant la mesure de vitesse de fluide avec celle de la température (Figure 1.6).

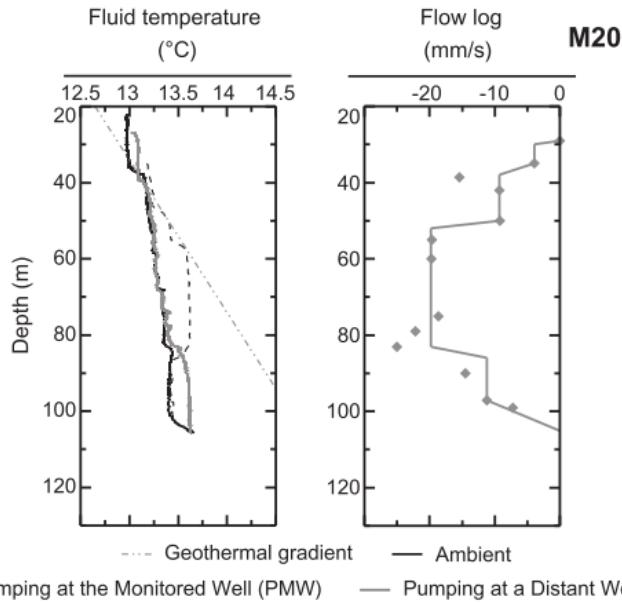


Figure 1.6 : Profils combinés des diagraphies en température et selon la mesure des vitesses d'écoulement obtenues par « heat-pulse » (Chatelier et al., 2011)

D'autres travaux utilisant la modélisation numérique en thermique (Figure 1.7) visent à reproduire les profils de température mesurés dans les puits pour obtenir un portrait de la distribution et de l'interconnexion des fractures actives (M. V. Klepikova et al., 2014).

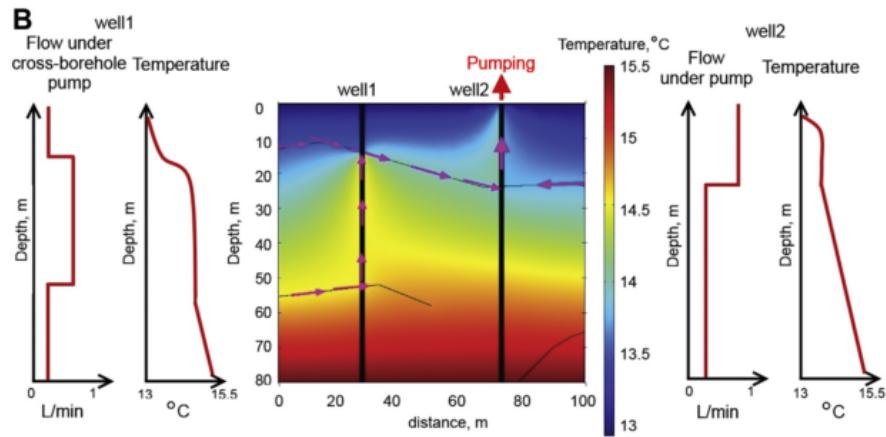


Figure 1.7 : Illustration des flux et des températures de l'eau pour deux puits interceptés par des fractures et représentés à l'aide d'une modélisation numérique en 2D (M. V. Klepikova et al., 2014)

Bien que ces exemples récents montrent une utilisation croissante de la mesure de la température pour la caractérisation des propriétés hydrauliques verticales dans les forages, il n'existe actuellement aucun modèle analytique disponible pour décrire ou calculer les échanges de chaleur à l'intérieur du puits et autour de ce dernier. En pompage, ces travaux précédents font référence à des conditions thermiques en régime permanent (établies ou appréhendées), et sont opérés à des endroits et /ou des profondeurs assez grandes pour que le gradient géothermique soit linéaire. Des discussions sur l'origine des eaux souterraines provenant de zones fracturées hydrauliquement actives ont été présentées dans la littérature (Chatelier et al., 2011), mais ces dernières sont qualitatives plutôt que quantitatives et les températures des venues d'eau alimentant le forage ne sont pas calculées. D'autres avancées techniques récentes en thermique permettent de mesurer des profils de température de manière instantanée à l'aide de fibre optique (Figure 1.8).

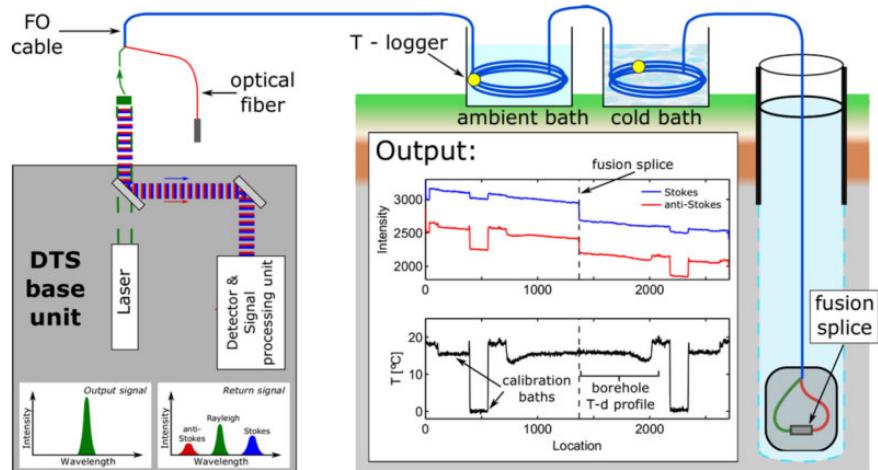


Figure 1.8 : Illustration d'une installation de mesure de température distribuée par fibre optique, incluant des bains de calibration (Bense et al., 2016)

Cette technologie est souvent couplée à un mode de mesure « actif » de la température qui consiste à chauffer une section ou l'ensemble de la colonne d'eau. Pehme et al. (2013) détectent les circulations latérales naturelles dans l'aquifère via des réseaux de fractures actives en mesurant la récupération thermique de la colonne

d'eau dans le puits après son chauffage. Selon un autre exemple, Bense et al. (2016) utilisent un système co-axial de câble chauffant et de fibre optique en pompage, puis utilisent la variation des profils de température pour calculer la distribution des débits d'eau dans le puits selon la profondeur. Bien qu'elles permettent des résultats quantitatifs directs, ces dernières technologies en mode « actif » restent assez délicates et longues à mettre en place *in situ*. De plus, la précision des résultats n'est pas assurée dans tous les cas car la résolution de la mesure de la température à l'aide de fibre optique ($\pm 0,5^\circ\text{C}$ ou au mieux $\pm 0,02^\circ\text{C}$ avec des bains de calibration) reste encore faible par rapport à celle des sondes actuelles à base de thermistance ($\pm 0,001^\circ\text{C}$).

1.2.4 Propriétés hydrauliques et investigations au Québec

D'une manière générale pour le Québec méridional, la conductivité hydraulique des aquifères rocheux fracturés dans les Basses-Terres du Saint-Laurent reste généralement faible. C'est cette caractéristique, associée à un excès de bilan hydrique (précipitations abondantes et faible potentiel d'évapotranspiration annuel), qui crée une forte disponibilité de l'eau douce au niveau du réseau de surface. Pour les aquifères rocheux fracturés, cette configuration hydrogéologique s'apparente donc à une piézométrie largement contrôlée par la topographie du terrain, soit avec des écoulements régionaux superficiels et des nappes d'eau se situant à faible profondeur, généralement à moins de 5 mètres sous la surface du sol (Appendice 1). Or, les hétérogénéités existent à différentes échelles dans les aquifères rocheux fracturés. Dans la région des Basses-Terres, les professionnels en hydrogéologie installent et sélectionnent les meilleurs forages dans le roc lors des travaux de recherche en eau, et certains sont assez productifs pour assurer des approvisionnements municipaux. La nature hétérogène des aquifères canadiens a été soulignée à la fois pour les matrices granulaires (Ouellon et al., 2008) et pour les matrices fracturées (Grasby et al., 2008; Perrin et al., 2011). Nastev et al. (2004) (ainsi que Carrier et al. (2013)) ont décrit une diminution logarithmique notable des conductivités hydrauliques selon la profondeur

en contexte d'aquifère rocheux fracturé au Québec méridional (Figure 1.9), mais avec de fortes disparités sur les conductivités hydrauliques moyennes d'un puits à l'autre.

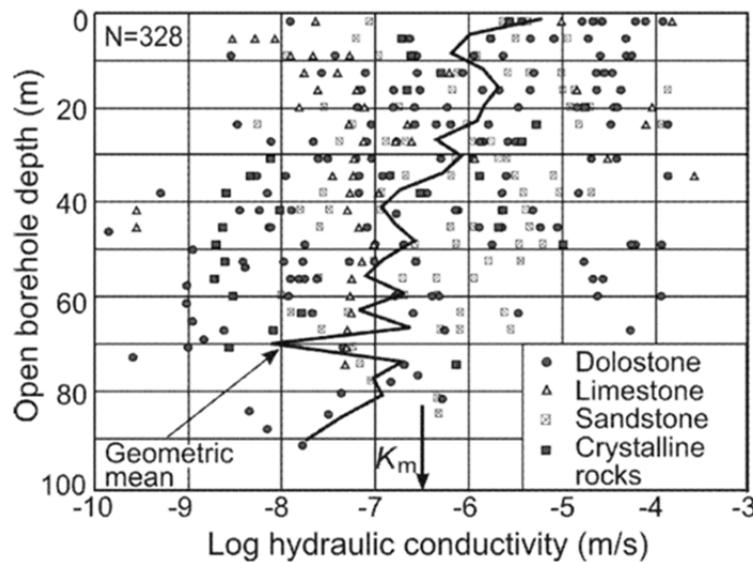


Figure 1.9 : Distribution des conductivités hydrauliques moyennes selon la profondeur des puits et pour quatre lithologies présentes pour le Québec méridional (Nastev et al., 2004)

Les caractérisations régionales des eaux souterraines réalisées entre 2008 et 2015 au Québec ont inclus des travaux d'investigation sur les niveaux de fracturation du roc avec la profondeur. Ces études ont montré que la productivité des puits n'était généralement pas corrélée avec le type de formation rocheuse (Carrier et al., 2013; Larocque et al., 2015a; Larocque et al., 2015b). Cependant, ces résultats, comme ceux de Nastev et al. (2004), présentent un écart type élevé, de sorte que différents patrons d'hétérogénéités verticales peuvent être trouvés d'un puits à l'autre. Les diagraphies les plus complètes (Relevé gamma, température, « heat-pulse », compas et imagerie acoustiques) réalisées par Crow (2013) dans douze puits ont relevé peu de fractures productives distribuées selon la profondeur, et qu'une large proportion de la production en pompage venait d'un mauvais scellement depuis l'ancrage du tubage dans le roc. Cette dernière caractéristique a aussi été largement mise en évidence et décrite par Chesnaux & Chapuis (2007) et par Richard et al. (2016). À noter que pour

les travaux de Crow (2013), les puits investigués ont été installés pour fins de diagraphie (en non dans une démarche de recherche en eau) et se sont avérés peu productifs. Dans le contexte où les aquifères sont très majoritairement de nature hétérogène, il est important de noter que les relevés diagraphiques en forage restent peu utilisés par les hydrogéologues. Les essais de pompage habituels effectués pour les puits de captage en eau potable ne décrivent ainsi généralement pas la variabilité verticale des zones de production dans les forages (Raghavan, 2006).

1.3 Datation de l'eau souterraine

1.3.1 Traceurs et principes de datation en théorie et en pratique

La datation de l'eau souterraine est effectuée grâce des traceurs déjà présents dans l'environnement, qui sont donc adaptés à l'échelle spatiale et temporelle de la dynamique des aquifères. En ce sens, elle apporte une information de grande importance, qui compte tenu des temps de résidence naturels (relativement longs), ne peut pas être obtenue par la réalisation d'essais de traçage artificiels (fenêtre d'observation relativement courte). La datation de l'eau est utilisée depuis plus d'une cinquantaine d'années (Kazemi et al., 2006) sur des domaines variés en hydrogéologie, tels que l'étude de la circulation d'eau souterraine et de solutés dans les aquifères hétérogènes, l'estimation de la recharge et du taux de renouvellement de la ressource en eau (Wachnew et al., 2016). Les concentrations des traceurs d'origine atmosphérique sont bien connues (Figure 1.10) car ils sont souvent associés à des enjeux environnementaux (p. ex. l'émission de gaz à effet de serre).

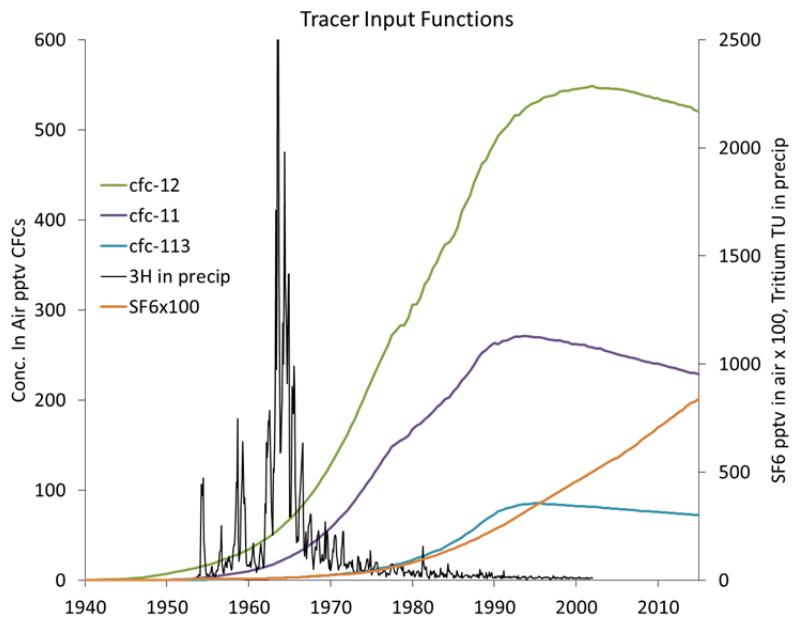


Figure 1.10 : Concentrations atmosphériques en SF₆, CFCs et tritium (USGS, 2018)

Historiquement, la recherche a plus particulièrement porté sur la datation de l'eau souterraine dans des aquifères à matrice poreuse primaire, relativement homogènes et en conditions statiques (Smethie et al., 1992; Szabo et al., 1996; Cook & Solomon, 1997; Dunkle-Shapiro et al., 1998; Corcho Alvarado et al., 2007). Bien qu'en nette émergence, assez peu de travaux concernent la datation de l'eau souterraine en contexte de pompage intensif (USGS, 2005; Visser et al., 2013), ou en contexte d'aquifères rocheux fracturés implicitement hétérogènes (Shapiro, 2001; Kolbe et al., 2016). Bon nombre d'études intègrent désormais l'analyse conjointe de plusieurs traceurs, alors que par le passé beaucoup se limitaient à un âge moyen du mélange pompé au puits en n'utilisant qu'un seul traceur (Kaown et al., 2009). Ceci compromettrait grandement la pertinence de l'usage de la datation de l'eau souterraine car les proportions d'eaux d'âges différents en mélange dans les puits restent indéterminées, ce qui limite passablement l'interprétation des patrons d'écoulement dans l'aquifère. Pour des eaux « modernes » (60 ans et moins), les traceurs les plus communément utilisés sont le tritium (Eriksson, 1963), le couplage ³H/³He (Tolstikhin & Kamensky, 1969), les CFCs (Thompson et al., 1974), le SF₆

(Busenberg & Plummer, 2000) et le ^{85}Kr (Rozanski & Florkowski, 1979). Pour les eaux plus anciennes, la mesure de ^{14}C (Brinkmann et al., 1959) est la plus courante, bien que d'autres traceurs soient parfois utilisés, tels que ^{139}Ar (Oeschger et al., 1974), le ^{81}Kr (Loosli & Oeschger, 1969). Parmi les grandes familles de traceurs, on distingue ceux qui subissent une décroissance radioactive (c.-à-d., ^3H , ^{14}C) de ceux qui sont parfaitement stables (c.-à-d. ^2H , ^{18}O) ou persistants dans l'environnement (i.e., SF_6 , CFCs). Les traceurs utilisés sont présents dans l'environnement et peuvent être d'origine anthropique (c.-à-d. polluants atmosphériques SF_6 et CFCs), d'origine naturelle (c.-à-d., ^{39}Ar) ou même d'une combinaison des deux origines. Par exemple, le ^3H et le ^{14}C sont présents à l'état naturel dans l'environnement, mais leurs concentrations historiques ont fortement varié, notamment en fonction d'essais nucléaires en atmosphère au cours des années 1950-1970. Les traceurs qui subissent une décroissance radioactive produisent une accumulation d'éléments fils dans l'environnement qui peuvent être utilisés comme traceurs par exemple pour la méthode de datation $^3\text{H}/^3\text{He}$ où l'élément radioactif est le ^3H et le produit de sa décroissance est ^3He qui est stable. Les différents traceurs utilisés en hydrogéologie, ainsi que leurs gammes d'âges respectives sont reportées sur la Figure 1.11.

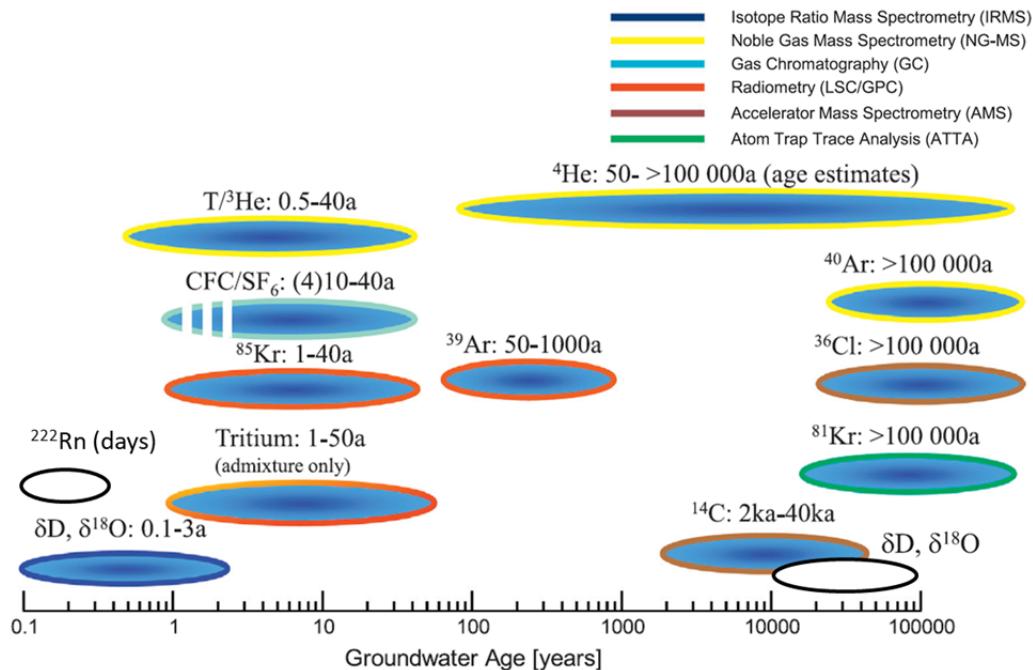


Figure 1.11 : Traceurs environnementaux et leurs gammes « d'âges », modifié de Axel Suckow (2014), Bartyzel & Rozanski (2016)

Les notions théoriques amenées dans le cadre de la datation des eaux souterraines sont souvent présentées pour des aquifères à matrice poreuse, homogènes et isotropes, non perturbés par les activités anthropiques (pompage, irrigation), avec écoulements constants (régime permanent). Or, ces conditions sont rarement réunies en pratique, notamment du fait que les aquifères sont très majoritairement de nature hétérogène (Section 1.1). Bien que la dénomination « d'âge » soit souvent utilisée, cette terminologie est inexacte car elle n'a pas de sens concernant les eaux souterraines. On peut citer J-Ch. Fontes, qui en 1983 mentionnait¹ : « *the “age” of a groundwater sample corresponds generally to a time distribution of many elementary flows. Thus, except in the theoretical case of a pure piston flow system, or of stationary waters entrapped in a geological formation, the concept of groundwater age has little significance* ». Parce qu'ils se produisent en milieux majoritairement hétérogènes, et

¹ J.-Ch. Fontes (1983) in Guidebook on Nuclear Techniques in Hydrology, IAEA

sur des distributions temporelles excédant généralement l'année, et pouvant atteindre des milliers d'années, les molécules d'eau souterraine ne transitent pas à la même vitesse dans les aquifères. La notion d'écoulement piston, c'est-à-dire d'un volume d'eau qui s'écoule dans l'aquifère sans subir de mélange, est utile conceptuellement, mais c'est une vision idéalisée des écoulements souterrains qui ne se produisent jamais de cette manière. En conditions naturelles, des mélanges d'eau surviennent inévitablement selon l'échelle des aquifères et des différents contextes hydrogéologiques mis en jeu. La largeur de la fenêtre à laquelle on se place dans l'aquifère détermine ainsi la distribution d'âge pour l'eau souterraine (Figure 1.12).

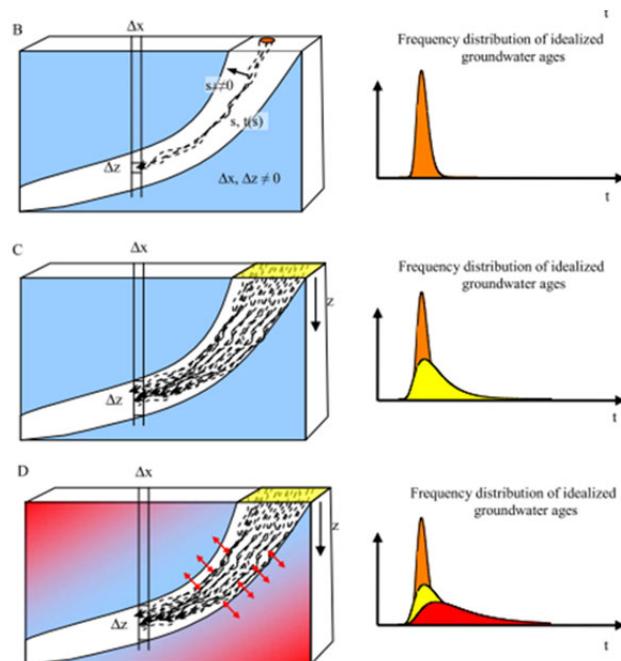


Figure 1.12 : Dépendance de la distribution des temps de résidences de l'eau souterraine selon l'échelle d'observation dans l'aquifère (IAEA, 2013)

En ce sens, les terminologies « distribution d'âge », ou « distribution des temps de résidence » sont donc toujours les plus adaptées aux descriptions concernant la datation des eaux souterraines. C'est donc au sens strict un abus de langage que de parler « d'âge » de l'eau souterraine. Or, cette dénomination reste très utilisée par les spécialistes, généralement pour fins d'allégement du texte.

1.3.2 Pertinence du multitraçage

La pertinence d'utiliser un traceur plutôt qu'un autre est fonction des différents contextes hydrogéologiques, selon l'abondance à laquelle ils sont présents dans l'eau souterraine. En contexte d'aquifère captif, et/ou en conditions de climat aride, les traceurs pour les eaux plus anciennes (i.e., ^{14}C , ^{81}Kr , etc.) prennent toute leur pertinence (IAEA, 2013). Les traceurs pour les eaux modernes (c.-à-d., ^3H , SF_6 , ^{85}Kr) sont les plus pertinents pour les aquifères à nappe libre ou semi-captive, et sont plus particulièrement adaptés pour faire le lien avec les préoccupations concernant la vulnérabilité de la ressource aux sources de contamination anthropique (Jasechko et al., 2017). Néanmoins, l'usage simultané de plusieurs traceurs reste pertinent puisque les eaux souterraines sont généralement en mélange dans les aquifères du fait de conditions naturelles (c.-à-d., hétérogénéités) ou anthropiques (c.-à-d., drainages forcés par pompages). À ce sujet, l'exploitation intensive de certains aquifères en conditions captives ou en milieu aride peut induire un drainage forcé d'eau récente dans les aquifères supposés anciens, ce qui vient contrebalancer la distribution naturelle des âges (Gleeson et al., 2015; B. C. Jurgens et al., 2016; Jasechko et al., 2017), et qui ne peut être mis à jour sans utilisation de plusieurs traceurs. Le multitraçage peut concerner uniquement des traceurs d'âge récent afin de focaliser sur les mélanges de l'eau «moderne», et de déterminer le régime d'écoulement correspondant à la proportion d'eaux modernes (c.-à-d. multitraçage SF_6/CFCs et régimes d'écoulement à la Figure 1.13).

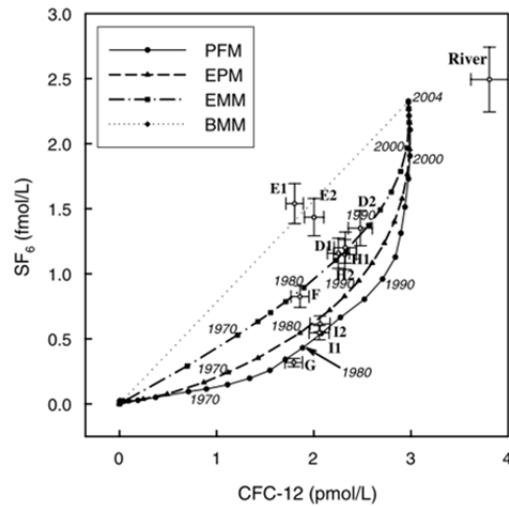


Figure 1.13 : Diagramme binaire de traceurs récents SF₆ - CFC-12 pour estimation des régimes d'écoulement pour les eaux modernes : PFM écoulement piston; EPM exponentiel piston; EMM mélange exponentiel et BMM mélange binaire(Goody et al., 2006)

La pertinence du multitraçage concerne plus généralement des traceurs ayant une représentativité sur des gammes d'âges très différentes, afin de pouvoir contraindre des mélanges d'eau ayant une distribution large des temps de résidence, de quelques dizaines d'années (c.-à-d. contraint avec ⁸⁵Kr et ³H/³He) à plusieurs centaines d'années (c.-à-d. contraint avec ¹³⁹Ar) (Figure 1.14).

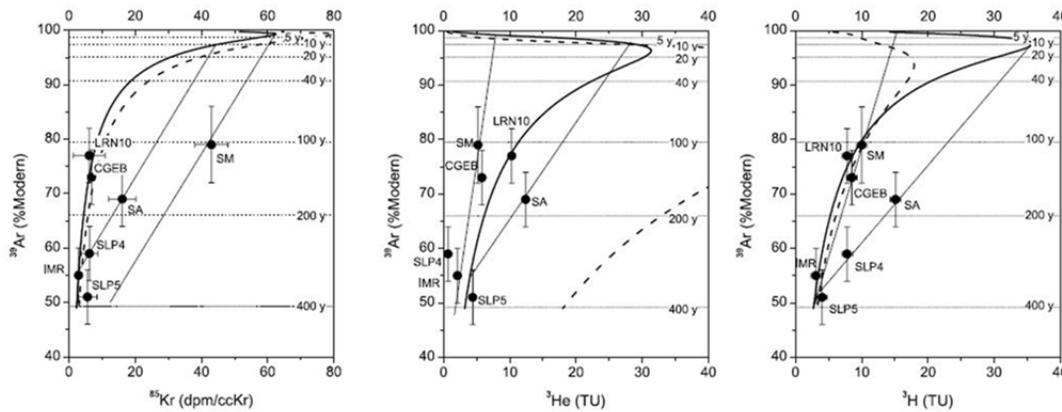


Figure 1.14 : Exemple de résultats en multitraçage ³H/³He - ⁸⁵Kr - ³⁹Ar pour un mélange complexe d'eaux récentes et anciennes (Corcho Alvarado et al., 2007). Les lignes en gras continues et en pointillés représentent respectivement les compositions atmosphériques en surface et celles calculées à 35 m de profondeur en zone vadose, les lignes fines sont les droites de mélange binaire entre pôles de masses d'eau « récentes » et « anciennes ».

1.3.3 Conditions et processus influençant les traceurs

1.3.3.1 Contextes hydrogéologiques et systèmes d'écoulement

En considérant des aquifères idéalisés (c.-à-d. poreux et homogènes), différentes distributions d'âge peuvent être appréhendées grâce aux « âges hydrauliques ». En conditions d'aquifère libre, la distribution de l'âge de l'eau souterraine varie essentiellement verticalement, en augmentant avec la profondeur dans l'aquifère (Figure 1.15).

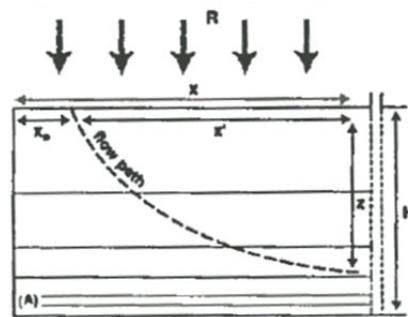


Figure 1.15 : Âges hydrauliques en contexte d'aquifère libre (Cook & Herczeg, 2000)

Dans ce cadre purement théorique, l'âge hydraulique de l'eau selon la profondeur (z) pour un aquifère libre, poreux et homogène, dépend uniquement de sa porosité (n), de son épaisseur (H), et du taux de recharge (R) (Équation 1.1 de Cook & Herczeg, 2000). Les âges hydrauliques peuvent également être estimés pour les conditions captives (Figure 1.16). Dans ce cas, un second terme intervient dans l'Équation 1.1 qui introduit le ratio entre la longueur de la zone confinée et la longueur de la zone de recharge (x^*/x). Dans ce cas, l'écoulement de l'eau en zone captive est longitudinal, ce qui augmente le temps de résidence proportionnellement à la longueur de la zone captive.

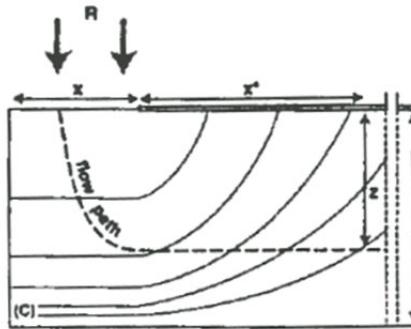


Figure 1.16 : Âges hydrauliques en contexte d'aquifère captif (Cook & Herczeg, 2000)

$$\tau = \frac{Hn}{R} \ln \left(\frac{H}{H-z} \right) + \frac{Hn}{R} \frac{x^*}{x}$$

 Aquifère libre

 Aquifère captif

(1.1)

Les modèles d'âge hydraulique peuvent servir à sélectionner les traceurs « a priori », selon le contexte hydrogéologique appréhendé et à préparer un plan d'échantillonnage adapté aux sites investigués. En fixant par exemple porosité et taux de recharge dans l'équation, on peut estimer théoriquement jusqu'à quelle distance ou quelle profondeur depuis la recharge des traceurs d'âge récent ou plus ancien sont susceptibles d'être présents ou même détectables. Un tel exemple est donné dans le contexte de la thèse (voir la Figure 1.21, section 1.4.1).

En contexte d'aquifère homogène, il est également appréhendé que les écoulements locaux et régionaux d'eaux souterraines soient contrôlés par la géométrie et l'échelle des bassins versants. Selon le modèle contextuel de Tóth (1999) (Figure 1.17), un tel contrôle des écoulements par la topographie engendre des temps de résidence de l'eau souterraine plus ou moins longs selon la profondeur. Ces différents temps de résidence impliquent des modifications associées de la géochimie de l'eau souterraine en lien avec les interactions eau-aquifères qui sont graduelles et plus ou moins longues.

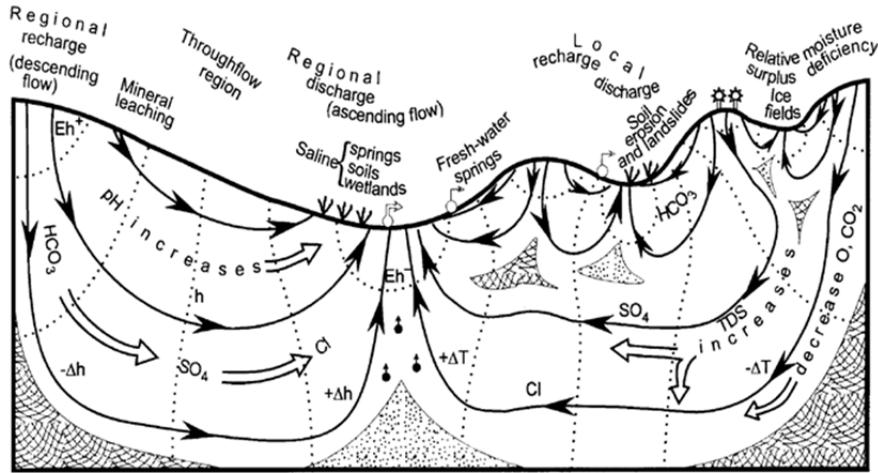


Figure 1.17 : Systèmes d’écoulements et hydrogéochimie selon la géométrie et l’échelle des bassins (Modèle conceptuel de Tóth, 1999)

1.3.3.2 Influence de la zone non saturée

En zone non saturée, les processus de transport sont différents d'un traceur à l'autre et peuvent influencer l'interprétation en datation. Quand la zone saturée est relativement mince, la fraction gazeuse suit généralement les concentrations atmosphériques (Oster et al., 1996). Les études de Weeks et al. (1982) et de Busenberg et al. (1993) indiquent que des concentrations en gaz (c.-à-d. CFCs) dans la zone non saturée suivent généralement les concentrations atmosphériques si l'épaisseur de la zone non saturée reste inférieure à 10 m. Pour des zones non saturées plus épaisses, un délai significatif au transport des gaz peut subvenir, selon leur coefficient de diffusion dans l'air, leur solubilité dans l'eau, ainsi que de la teneur en eau dans la zone non saturée (Weeks et al., 1982; Cook & Solomon, 1995). Parmi les traceurs les plus courants, seul le tritium suit le transport purement advectif de l'eau dans la zone non saturée. Comme le tritium est lié à la molécule d'eau et qu'il subit une décroissance radioactive, la datation ${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$ est pertinente pour estimer les temps de transport non négligeable de l'eau de recharge en zone non saturée (Corcho Alvarado et al., 2007). Dans la région à l'étude (Basses-Terres du Saint-Laurent), la conductivité hydraulique des aquifères rocheux fracturés reste généralement faible. Cette

caractéristique, associée à un excès de bilan hydrique (précipitations abondantes et faible potentiel d'évapotranspiration), maintien généralement des niveaux des nappes à faible profondeur, soit généralement à moins de 5 mètres sous la surface du sol. De fait, les délais impartis par la migration des traceurs en zone non saturée auraient une influence négligeable sur le traitement analytique associé à la datation.

1.3.3.3 Profondeur et longueur de crêpine

Les caractéristiques des puits échantillonnés peuvent également orienter la sélection d'un traceur plutôt qu'un autre, voir motiver un multitraçage. Dans le cas des piézomètres installés dans les dépôts granulaires, les longueurs des crêpines sont typiquement réduites (quelques dizaines de centimètres, à quelques mètres), l'échantillonnage de l'eau concerne une fenêtre restreinte de l'aquifère. Dans ce cas, si un écoulement piston est considéré, l'échantillonnage du piézomètre fournit une eau a priori peu mélangée qui peut être théoriquement caractérisée avec un seul traceur. Pour les puits disposant de longues crêpines, le multitraçage apparaît nécessaire, car l'eau échantillonnée représente le mélange de plusieurs lignes d'écoulement. Un tel exemple est donné à la Figure 1.18, où l'échantillonnage de piézomètres (longueurs crépinées inférieures au mètre) permet de déterminer la stratification verticale de l'aquifère avec des analyses du ${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$, tandis que l'eau en mélange des puits de pompage (crêpines de plusieurs mètres) a été analysée par multitraçage avec ${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$, ${}^{85}\text{Kr}$ et ${}^{39}\text{Ar}$.

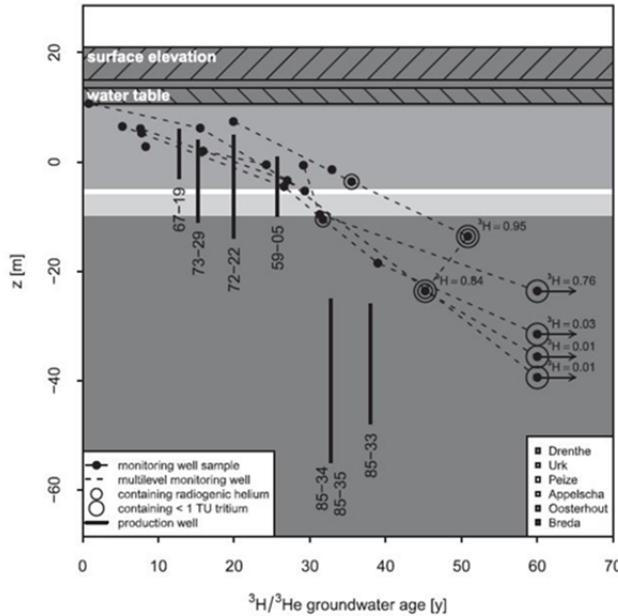


Figure 1.18 : Stratification verticale d'un aquifère granulaire par analyse $^3\text{H}/^3\text{He}$ dans des piézomètres (points) et caractérisation des mélanges dans les puits avec longues crêpines (bandes) par multitraçage (Visser et al., 2013)

En contexte d'aquifère rocheux fracturé, différentes zones productives peuvent être identifiées selon la profondeur. Même si la zone productive est discrète (c.-à-d. fracture centimétrique), la nature des fractures (réseaux) suggère a priori que cette dernière contient un mélange d'eaux ayant chacun des temps de résidence différents, plutôt que provenant d'une seule ligne d'écoulement depuis la recharge. Dans le cas de puits à longs intervalles dans le roc, le multitraçage apparaît donc quasiment toujours pertinent.

1.3.3.4 Atténuation, pollutions, sources anthropiques locales et terrigènes de traceurs

Différentes problématiques reliées à l'existence de sources de pollution locales ou de persistance du traceur peuvent survenir par l'utilisation pour fin de datation. Ces problématiques touchent principalement la famille des traceurs atmosphériques d'origine anthropique (CFCs et le SF_6). La famille des CFCs (CFC-12, CFC-11 et CFC-113) serait la plus touchée par des problèmes éventuels de pollution par des

sources locales (fortes), provenant de décharges ou de centres urbains (Höhener et al., 2003). Il y aurait aussi une source de contamination possible de CFC-11 et CFC-113 dans certains matériaux plastiques pour l'échantillonnage (Busenberg & Plummer, 1992; Shapiro, 2001), ou depuis les matériaux de construction pour les puits tels que les scellants (bentonite) et tubes PVC (Goode, 1998). Pour les CFCs et le SF₆, des études ont montré qu'il pouvait y avoir des pollutions diffuses autour des grands centres urbains (c.-à-d., exemple pour les SF₆ à la Figure 1.19), pouvant induire des concentrations atmosphériques plus de deux fois supérieures à la normale.

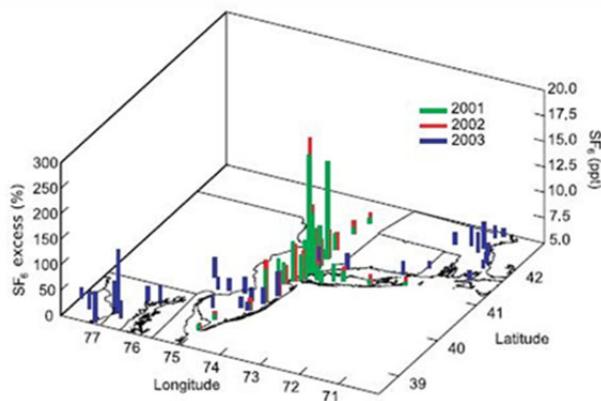


Figure 1.19 : Concentrations atmosphériques en SF₆ élevées proches de centres urbains en Floride (Santella et al., 2008)

Pour le SF₆, des sources terrigènes sont identifiées en contexte volcanique (Koh et al., 2007), mais à ce jour, il n'y a pas de sources terrigènes reconnues pour le SF₆ dans les formations sédimentaires reposant sur socle précambrien. À ce jour, la persistance des CFCs est mise en question. La dégradation des CFCs dans les eaux souterraines en conditions réductrices est rapportée dans la littérature (Höhener et al., 2003; Goody et al., 2006; Sebol et al., 2007; Horneman et al., 2008; Bartyzel & Rozanski, 2016). Des exemples de dégradation des CFCs sont rapportés en zone réductrice dans la zone saturée (Figure 1.20) ou encore selon des résultats en multitraçage CFCs sur plusieurs puits en conditions similaires. Ces études indiquent une tendance à la dégradation plus marquée pour le CFC-12. Ceci implique des limitations en termes de

datation car ce dernier ne peut plus être considéré comme un traceur parfaitement inerte.

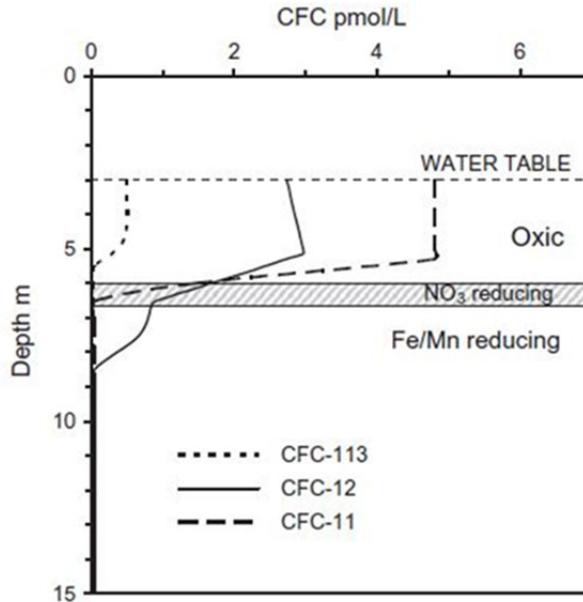


Figure 1.20 : Atténuation des concentrations en CFCs dans un aquifère en conditions réductrices (Darling et al., 2012)

1.3.3.5 Excès d'air et dégazage dans les eaux souterraines

Le point de vigilance principal associé à l'utilisation des gaz (i.e., CFCs, SF₆, ³H/³He) dans le cadre de la datation est d'estimer les conditions effectives d'excès d'air dans l'aquifère. L'excès d'air peut survenir lorsque les conditions de recharge en zone saturée favorisent le piégeage de bulles d'air en provoquant une augmentation des pressions partielles des gaz dissous dans l'eau. À l'inverse, le dégazage au sein même de l'aquifère peut survenir si un gaz est produit en excès, par exemple lors du dégazage de N₂ par dénitritification (Visser, 2009) ou une production naturelle de CH₄ ou de CO₂, ce qui mène potentiellement au dégazage des traceurs gazeux utilisé en datation. Le dépistage de l'excès d'air ou du dégazage peut être estimé en effectuant une analyse des gaz rares (Aeschbach-Hertig et al., 2008). L'analyse des proportions respectives en gaz rares dissous permet ainsi d'estimer l'excès d'air dans l'échantillon d'eau et d'effectuer la correction correspondante pour fin de datation avec des traceurs

gazeux (Goody et al., 2006; Darling et al., 2012). L’USGS (2017) recommande également l’analyse combinée de N₂/Ar pour détermination de l’excès d’air afin de corriger les concentrations le CFCs mesurées dans l’eau pour fin de datation. À noter que la datation avec des isotopes radioactifs comme le ⁸⁵Kr ou l'³⁹Ar est avantageuse pour parer aux incertitudes liées à l’excès d’air. En effet, puisque c’est un rapport isotopique qui est mesuré pour le ⁸⁵Kr ou l'³⁹Ar, ces derniers sont insensibles aux problèmes potentiels liés à l’excès d’air ou au dégazage (Cook & Herczeg, 2000; Kazemi et al., 2006).

1.3.4 Investigations hydrogéochimiques et en datation au Québec

De nombreuses études hydrogéochimiques ont été réalisées au Québec et se sont largement intensifiées au cours des dix dernières années par l’entremise de projets d’acquisition de connaissances sur les eaux souterraines (projets PACES) (Larocque et al., 2018). Les études géochimiques sont assez largement motivées au départ par le besoin d’inventorier la qualité de l’eau souterraine en fonction de la composition en ions majeurs. Ces études datant de plusieurs décennies (Charron, 1978) se sont étoffées au fil du temps, car elles servent aussi à décrire les interactions eau souterraine/aquifère. Ceci contribuant à une meilleure compréhension des contextes hydrogéologiques en place (Vincent Cloutier et al., 2006), assez largement liés à la géomorphologie glaciaire du Québec (Lamothe, 1989). Bien que toutes les études hydrogéochimiques régionales n’incluent pas nécessairement de données en datation des eaux souterraines (Savard, 2013), ce type d’acquisition n’est pas forcément récente, mais clairement en émergence. On voit apparaître des séries de données assez conséquentes pour tritium et le ¹⁴C dès 1977 pour le bassin de Mirabel (Simard, 1977), ainsi que pour la cartographie hydrogéologique des îles Perrot, près de Montréal (Bériault, 1978). Comme pour les ions majeurs, ces études se sont étoffées au cours du temps, en incluant de plus en plus de paramètres pour décrire la géochimie des eaux souterraines en lien avec leur temps de résidence. Depuis 2008, la réalisation des projets régionaux PACES a été un vecteur majeur à l’acquisition de

données hydrogéochimiques, mais également à un nombre de projets de recherche connexes en hydrogéochimie classique et isotopique, souvent associés à des traitements multivariables pour décrire les systèmes d'écoulement et la qualité de l'eau. On peut citer les publications pour la région de l'Outaouais (Montcoudiol et al., 2014), la région du Saguenay-Lac-Saint-Jean (Walter et al., 2017) la région de Charlevoix (Ghesquière et al., 2015). Dans d'autres régions, une portion des échantillons a également été analysée pour certains traceurs en datation (généralement tritium et carbone 14), soit pour le bassin versant de la rivière Châteauguay (Blanchette et al., 2010), la rivière Chaudière (Benoit et al., 2014) et la région de la Montérégie Est (Beaudry et al., 2018). Les études régionales du bassin versant de la rivière Bécancour, la zone Nicolet/Bas-St-François et à Amos en Abitibi ont mené à des publications en datation comportant de surcroît la collecte et l'interprétation concernant les gaz rares, permettant notamment d'estimer les âges ${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$ en plus d'autres traceurs (Boucher et al., 2015; Vautour et al., 2015; Méjean et al., 2016; Saby et al., 2016). Ces connaissances ont contribué à établir des liens entre des informations de datation et la géochimie des eaux à l'échelle régionale (Saby et al., 2016) ainsi que l'usage des données en datation pour contraindre un modèle numérique d'écoulement régional (Gagné et al., 2017). À noter également l'utilisation de datation ${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$ associée à un modèle d'écoulement numérique dans le cadre de pollution des eaux de la région de la Capitale-Nationale (Murphy et al., 2010). Finalement, des sujets présentés récemment en conférence démontrent l'intérêt accru des travaux en multitraçage de plus en plus exhaustif (c.-à-d. ${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$, SF₆-CFCs, isotopes stables, gaz rares et ${}^{14}\text{C}$) réalisés au Québec, soit en Gaspésie par Raynauld et al. (2014) ou en région nordique par Cochand et al. (2017). En terme « d'âges », les études réalisées pour les aquifères rocheux fracturés rapportent généralement des conditions de mélange marquées pour les masses d'eau investiguées jusqu'à une profondeur de 100 m, des différences étant généralement observées entre les âges apparents pour les traceurs récents (c.-à-d. gammes ${}^3\text{H}$ et ${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$) et plus anciens (c.-à-d. gamme ${}^{14}\text{C}$). Ces intérêts émergents en hydrogéochimie-datation au Québec ont

essentiellement concerné des approches régionales, et sont associés à la collecte d'eau souterraine dans les règles de l'art, par pompage aux puits investigués. Ce type d'échantillonnage décrit ainsi la composition de l'eau souterraine selon l'intervalle de profondeur traversant l'aquifère, et au prorata des différentes zones productives. Un tel échantillonnage permet le multitraçage et une interprétation composition/temps de résidence selon la profondeur du puits, mais la distribution des zones productives (composition et flux) n'est pas investiguée. Des investigations diagraphiques (physiques) dans les aquifères rocheux fracturés ont été réalisées au Québec pendant les projets PACES pour la Montérégie (Crow et al., 2013) et pour la région du Saguenay-Lac-Saint-Jean (Roy et al., 2011). Néanmoins, dans un contexte diagraphique, et à part des observations relatives à la salinité de l'eau, le lien entre la composition de l'eau et la profondeur des zones productives est resté peu étudié.

1.4 Conclusion du chapitre I et objectifs de la thèse

1.4.1 Pertinence des travaux de thèse concernant l'investigation verticale d'aquifères rocheux fracturés

Comme mentionné plus haut, les études hydrogéochimiques n'incluent généralement pas d'investigation verticale détaillée. Même dans le cas d'aquifères rocheux fracturés (implicitement hétérogènes), les reconnaissances hydrogéochimiques (incluant la datation) sont habituellement réalisées à partir du mélange d'eau pompé au puits. Les caractéristiques hydrogéochimiques restent finalement peu investiguées selon la profondeur dans les aquifères rocheux fracturés, bien que la profondeur des puits dans le roc dépasse souvent les 50 mètres au Québec. La question est ainsi de savoir si ces aquifères présentent une stratification verticale tant dans la composition de l'eau que pour des questions relatives au temps de résidence. Ces questions sont importantes car dans l'hypothèse d'une stratification verticale, différents niveaux de qualité et de vulnérabilité de la ressource en eau pourraient dépendre de la profondeur.

Dans ce cadre, la connaissance de quelle proportion de l'eau est potentiellement affectée par des contaminations d'origine anthropique (c.-à-d. les eaux modernes issues de recharge durant l'ère industrielle, post 1960) apparaît pertinente. Ceci revêt un sens particulier dans le cas des pollutions émergentes (c.-à-d. traces de pesticides ou de perturbateurs endocriniens) qui sont très difficiles à caractériser compte tenu du nombre important de molécules actives et de leurs faibles concentrations dans l'eau (Stuart et al., 2012; Saby et al., 2017). Bien que retrouvées à l'état de trace dans l'eau souterraine, la nature active de ces molécules émergentes et le fait qu'elles ne soient pas détruites dans les systèmes de traitement d'eau potable, engendrent un problème complexe de santé publique (Pal et al., 2010; Jurado et al., 2012). Il faut également noter que les procédures actuellement réalisées dans le cadre de la protection des captages ne considèrent pas ou peu les hétérogénéités verticales dans les aquifères. Bien que la notion de temps de résidence de l'eau souterraine est à la base des règlements relatifs aux périmètres de protection dans le monde (et respectivement de 200 et de 550 jours pour les périmètres bactériologique et virologique selon la réglementation, Québec (2014)), « l'âge » de l'eau n'est pas effectivement mesuré, mais déduit de modèles d'écoulement dont les propriétés hydrauliques sont généralement rapportées comme une valeur moyenne du fait de l'utilisation de modèles numériques distribués (écoulement-transport), ou par l'utilisation de solutions analytiques considérant un milieu aquifère homogène.

La datation de l'eau souterraine est généralement associée à la collecte et l'analyse des gaz dissous dans l'eau (par exemple ^3He , SF_6 et CFC_8). À ce jour, ces échantillonnages concernent généralement le mélange d'eaux collectées par pompage, à l'exutoire du puits. Ces échantillonnages comprennent idéalement plusieurs traceurs afin de pouvoir estimer la distribution d'âge du mélange pompé. Or, bien qu'un multitraçage soit entrepris parce que la stratification verticale de l'aquifère est appréhendée, ce type d'échantillonnage ne concerne généralement pas de prélèvements discrets selon la profondeur. Bien que très pertinente, la distribution

d'âge obtenue ne renseigne donc pas sur comment, ou si, elle se distribue selon la profondeur.

La Figure 1.21 illustre un exemple théorique d'âge hydraulique et de concentrations calculées pour trois traceurs environnementaux. Selon les caractéristiques hydrogéologiques choisies dans cet exemple idéalisé (c.-à-d. aquifère libre homogène avec une faible porosité), l'échantillonnage sériel du tritium serait pertinent car il permettrait d'identifier une stratification d'âge (le cas échéant) sur la fenêtre d'observation de 100 m de profondeur. L'³⁹Ar serait pertinent plutôt pour les masses d'eau situées à des profondeurs supérieures à 50 m. L'échantillonnage pour le carbone ¹⁴C n'apparaîtrait pas pertinent dans ce cas idéalisé d'aquifère libre et homogène, car sa décroissance radioactive est trop longue comparé à la distribution d'âge de l'eau souterraine sur les 100 premiers mètres de profondeur.

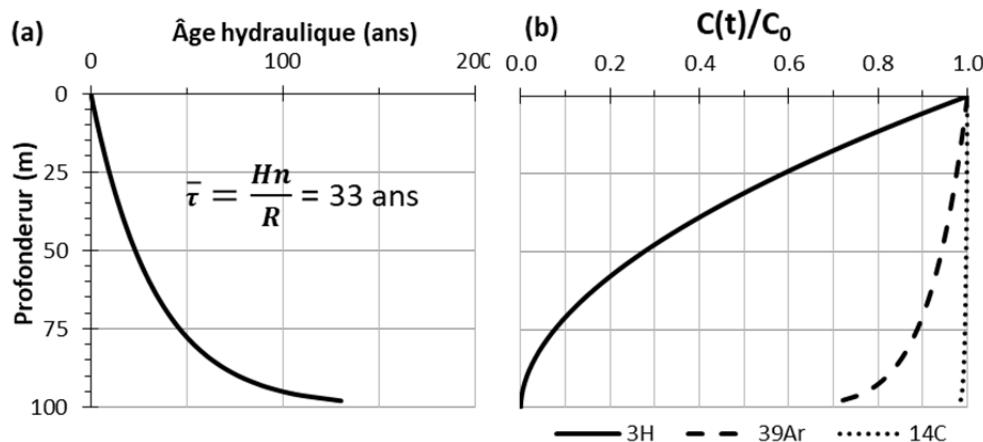


Figure 1.21 : Exemple théorique de (a) l'âge hydraulique de l'eau souterraine selon la profondeur pour un aquifère libre et homogène ($n=5\%$, $R=150$ mm/an et $H=100$ m, équation 1.1) et (b) concentrations correspondantes des traceurs considérant leur décroissance radioactive selon les demi-vies de 12.63 ans pour le ³H, 268 ans pour l'³⁹Ar et 5 730 ans pour le ¹⁴C. C_0 représente la concentration atmosphérique pour ces traceurs, supposée constante dans cet exemple pour fins de simplification.

1.4.2 Hypothèses de la thèse

En contexte d'aquifère plus ou moins homogène, les temps de résidence de l'eau et leur composition seraient stratifiés selon la profondeur (Figures 1.15, 1.16 et 1.17). Cette stratification verticale serait observable pour un aquifère ayant une porosité relativement faible (c.-à-d. aquifère rocheux fracturé), au moins avec des traceurs récents (c.-à-d. ^{3}H , SF₆, CFCs), sur une fenêtre d'observation de 100 m de profondeur (Figure 1.21), correspondant à la gamme de profondeur généralement exploitée pour les aquifères fracturés au Québec (Figure 1.9).

Cependant, bien que le portrait décrit à la Figure 1.21 puisse être informatif en contexte d'aquifère homogène, les âges hydrauliques ne sont a priori pas directement transposables dans le cas des aquifères rocheux fracturés qui sont implicitement hétérogènes (Shapiro, 2001). Comme en aquifère rocheux fracturé les écoulements se produisent via des réseaux de fractures, les temps de résidence de l'eau peuvent être dépendants de l'architecture des réseaux (longueurs, orientations, interconnexions) depuis la (les) zone(s) de recharge. Ces réseaux de fractures peuvent par ailleurs induire des mélanges impliquant des écoulements autres que l'écoulement piston. Pour les aquifères rocheux fracturés, le contexte hydrogéologique (libre /captif) n'est a priori plus seulement dépendant de la nature des dépôts meubles sus-jacents (perméables ou non), mais dépend également de l'architecture spatiale du réseau de fractures. Autrement dit, un réseau de fractures profondes ayant un pendage pseudohorizontal pourrait très bien être considéré comme un système « captif » en matière de temps de résidence et de qualité de l'eau, même si des dépôts meubles perméables sus-jacents suggèrent un contexte d'aquifère libre. Sans information sur l'architecture et les interconnexions entre les fractures, il n'est a priori pas possible d'anticiper l'existence de stratification verticale graduelle selon la profondeur, ni d'anticiper quels systèmes d'écoulement sont présents en amont des zones productives pour un puits interceptant une épaisseur importante (c.-à-d. jusqu'à 100 m) d'aquifère rocheux fracturé.

1.4.3 Objectifs de la thèse

Les investigations verticales visent les 100 premiers mètres de profondeur des aquifères rocheux fracturés sédimentaires dans les basses terres du Saint-Laurent.

Étant donné que la reconnaissance diagraphique en forage est encore assez peu représentée en hydrogéologie et au Québec, un premier objectif concerne l'acquisition de connaissances détaillées sur la nature et la distribution des zones productives pour les puits exploitant des aquifères rocheux fracturés au Québec.

Dans le cadre des investigations diagraphiques, une focalisation particulière est portée sur les mesures en température haute résolution. Le deuxième objectif de recherche vise à explorer la pertinence de telles mesures en se servant de la température comme d'un traceur. Par la modélisation physique, l'objectif est de comprendre la signification des profils thermiques en matière de flux d'eau dans le forage, ainsi que d'anticiper l'origine de l'eau au sein de l'aquifère rocheux fracturé.

Le troisième objectif concerne la reconnaissance ainsi que l'acquisition de connaissances relativement à la qualité de l'eau en lien avec les systèmes d'écoulement d'eau souterraine en amont des zones productives identifiées aux puits. Les remarques précédentes en termes de pertinence et d'hypothèse pour l'investigation verticale suggèrent de caractériser la distribution des zones productives préalablement à tout échantillonnage d'eau. En second lieu, l'investigation hydrogéochimique selon la profondeur (qualité et traçage) implique le développement d'une méthode d'échantillonnage séquentielle. La méthode choisie est le développement d'échantilleurs passifs pour l'eau et les gaz. Compte tenu des problématiques contemporaines les plus pertinentes, comme la qualité de l'eau et sa vulnérabilité aux contaminations anthropiques, la délimitation des aires de protection intermédiaire, il y a un intérêt à porter l'emphase sur les traceurs pour dater les portions d'eaux souterraines « récentes » (c.-à-d. ${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$, SF₆, CFCs). La datation ${}^{14}\text{C}$ doit être également réalisée afin de préciser les contributions les plus anciennes, le cas échéant.

CHAPITRE II

INVESTIGATIONS DE L'HÉTÉROGÉNÉITÉ DES AQUIFÈRES ROCHEUX FRACTURÉS. FOCALISATION SUR L'INTERPRÉTATION ANALYTIQUE DES RELEVÉS THERMIQUES HAUTE RÉSOLUTION

2.1 Introduction au chapitre II

L'ensemble des diographies physiques présentées dans ce chapitre réfère à l'acquisition de connaissances sur la distribution des zones productives selon la profondeur en contexte d'aquifère rocheux fracturé. Ces travaux diagraphiques constituent l'étape préliminaire et essentielle à l'utilisation d'échantillonneurs passifs pour fins d'échantillonnage séquentiel (Chapitre III). Dans le cadre de cette thèse, une focalisation particulière est portée sur le développement de la diagraphie thermique haute résolution. Bien qu'en émergence, l'interprétation des profils thermique reste encore relativement complexe. La littérature scientifique rapporte en effet soit la lecture plutôt qualitative des profils thermiques, soit la quantification relativement ardue et longue par modélisation numérique distribuée (Section 1.2.3). Au début de ces travaux, aucun modèle analytique permettant de quantifier rapidement les flux d'eau selon des données de température n'était disponible. Les développements se sont portés sur les relevés thermique car ces derniers revêtent un intérêt particulier quant à la détermination de l'origine de l'eau souterraine dans l'aquifère. La

température étant un paramètre intrinsèque omniprésent dans l'environnement, toute perturbation due aux écoulements souterrains provoque des modifications du champ de température dans l'aquifère. La température, dont la mesure est simple, rapide et robuste, représente ainsi un traceur efficace et « gratuit ». En ce sens, l'aspect traçage thermique vient compléter avantageusement les travaux connexes de cette thèse relatifs à l'utilisation de traceurs environnementaux (Chapitre III). Le travail d'investigation et de recherche concernant ce chapitre a permis le développement d'un modèle thermique quantitatif par bilan de chaleur, dont la portée et les résultats sont rapportés dans les deux articles présentés aux Sections 2.4 et 2.5.

2.2 Opération des diagraphies physiques

Le choix des méthodes diagraphiques « conventionnelles » s'est porté sur les mesures par micromoulinet et caméra, selon leur efficacité et leur rapidité par rapport à d'autres techniques diagraphiques existantes (Section 1.2). Ces techniques quantitatives ont également été utilisées pour appuyer et valider les développements de la diagraphie en température. Les travaux en diagraphie physique ont donné lieu à un protocole opératoire dédié aux mandats concernant l'implantation et la protection des captages dans le cadre d'une collaboration de recherche et développement entre l'UQAM, et les consultants en hydrogéologie TechnoRem Inc. et Envir'Eau-Puits Inc. (GEOTOP-UQAM et al., 2018). Outre les avantages en recherche mentionnés en introduction, l'utilisation de la diagraphie thermique haute résolution est aussi qu'elle est bien adaptée pour un usage industriel compte tenu de la robustesse d'acquisition des données *in-situ*. À noter qu'au début de ce projet et jusqu'en 2017, les relevés thermiques ont été réalisés avec une thermistance d'une résolution de $\pm 0,01^\circ\text{C}$, dont la description et la calibration sont présentées à l'Annexe A1. À partir de 2017, les relevés thermiques ont été réalisés à l'aide d'une sonde à thermistance d'une résolution accrue et équipée d'une sonde de pression (Seabird-electronics, 2016). Des photographies concernant ces matériels sont présentées à l'Annexe D.

2.3 Zone d'étude et sélection des forages

Les forages diagraphiés pour ce projet ont été sélectionnés dans le but d'obtenir des données selon différentes lithologies rencontrées au Québec, soit les roches sédimentaires des basses Terres du Saint-Laurent (grès, dolomie et calcaire), roches métamorphiques des Appalaches et gneiss du Bouclier canadien (Figure 2.1). Cependant, un accent a été mis sur les forages placés dans les Basses-Terres du Saint-Laurent qui montraient les productivités les plus élevées. Entre 2016 et 2018, 21 forages ont été diagraphiés en température. Les premiers essais comportaient uniquement des relevés thermiques avec une résolution de $\pm 0.01^\circ\text{C}$, réalisés sur un site à Hemmingford, puis principalement sur le site de Saint-Paul d'Abbotsford. À ce dernier endroit, un groupe de 8 puits non productifs en profondeur ont été particulièrement utiles pour déterminer les géogradients en contexte québécois (Annexe A2). Par la suite, les relevés en température ont été réalisés avec une sonde d'une résolution plus précise ($\pm 0.001^\circ\text{C}$), et systématiquement accompagnés de diographies par micromoulinet et relevés optiques. Ce sont donc au final 15 forages qui ont fait l'objet de diographies complètes entre 2017 et 2018 (Figure 2.1).

Les résultats diagraphiques réalisés dans le cadre de cette thèse sont intégralement présentés à l'Annexe A2. Enfin, les puits ayant montré des aspects les plus intéressants en termes de recherche apparaissent également dans les articles publiés (Sections 2.4 et 2.5).

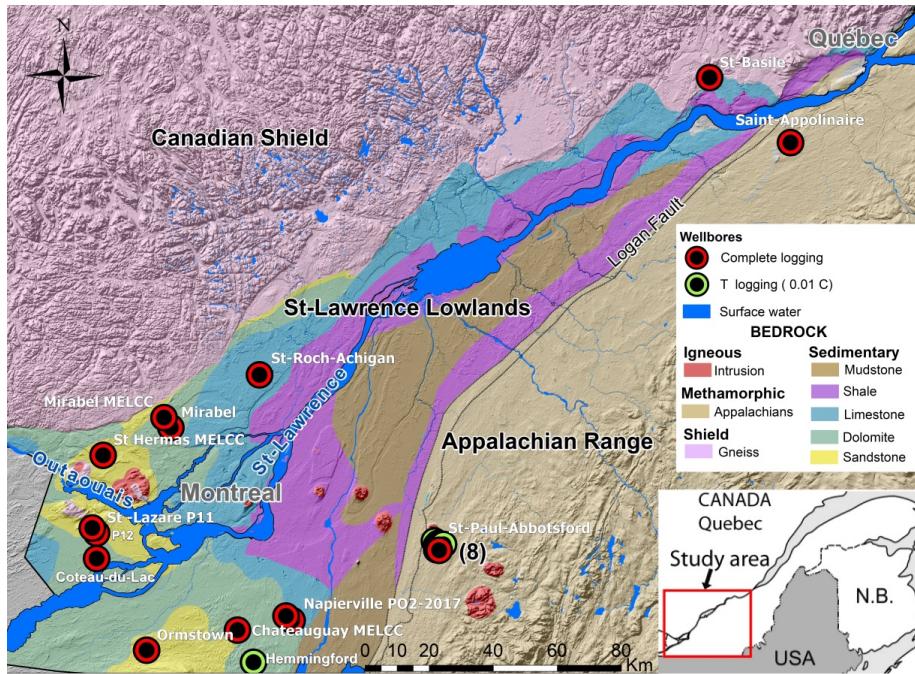


Figure 2.1 : Localisation des forages investigués en diagraphie dans le cadre de la thèse

2.4 Conceptualisation analytique des relevés thermique haute résolution par bilan de chaleur (article 1)

Résumé de l'article 1

Ces travaux visent à décrire les processus thermiques qui déterminent les profils de température des puits en conditions statiques et dynamiques. La compréhension de l'influence respective des flux de chaleur par advection et par conduction est améliorée grâce à l'élaboration d'un bilan thermique. En gardant à l'esprit les processus thermiques impliqués, une interprétation qualitative des profils de température vise à bonifier la lecture de l'occurrence, de la position et de l'origine des eaux souterraines alimentant le forage. Grâce à l'utilisation d'un bilan thermique élaboré à l'échelle du forage, l'efficacité de la diagraphie en température est quantitativement améliorée en permettant de calculer les températures des venues d'eau, selon l'utilisation simultanée avec un micromoulinet. Dans certaines configurations hydrauliques ou de pompage, les flux et les températures des venues

d'eau peuvent être directement modélisés à partir de la mesure des températures et de l'utilisation du bilan thermique. Des exemples appliqués sont présentés à l'aide de diagraphies en température, par mesure de vitesses et acquisition d'imagerie haute résolution pour trois puits installés dans des aquifères rocheux fracturés des Basses-Terres du Saint-Laurent, Québec (Canada). Grâce à des manipulations relativement rapides, les mesures thermiques peuvent être utilisées pour détecter les intervalles ou les positions des fractures hydrauliquement actives dans les puits, ainsi que l'existence de débits passifs avec un haut degré de sensibilité à très faible débit. Les calculs par bilan thermique en conditions dynamiques indiquent que les flux de chaleur par advection dominent rapidement les flux par conduction avec la paroi du forage. La caractérisation des flux entrants, via le bilan de chaleur, fournit des informations sur la distribution des propriétés hydrauliques en fonction de la profondeur. La connaissance des températures des venues d'eaux renseigne sur la profondeur des horizons drainés dans l'aquifère.

High-resolution wellbore temperature logging combined with a borehole-scale heat budget: conceptual and analytical approaches to characterize hydraulically active fractures and groundwater origin

Published in Geofluids journal (April 2018)

Guillaume Meyzonnat¹, Florent Barbicot¹, José A. Corcho-Alavarado², Antoine Tognelli³, Hermann Zeyen⁴, Alexandra Mattei¹⁻⁵, Renald McCormack⁶

¹ *Geotop-UQAM, Department of Earth and Atmospheric Sciences, Quebec, Canada*

² *SpiezLaboratory, Federal Office for Civil Protection, Switzerland*

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

⁴ *Department of Earth Sciences, GEOPS Laboratory, Paris-Saclay University, Paris-Sud University, CNRS, Orsay, France*

⁵ *MINES Paris Tech, France*

⁶ *Envir'Eau-Puits Inc., Canada*

Abstract

This work aims to provide an overview of the thermal processes that shape wellbore temperature profiles under static and dynamic conditions. Understanding of the respective influences of advection and conduction heat fluxes is improved through the use of a new heat budget at the borehole scale. Keeping in mind the thermal processes involved, a qualitative interpretation of the temperature profiles allows the occurrence, the position, and the origin of groundwater flowing into wellbores from hydraulically active fractures to be constrained. With the use of a heat budget developed at the borehole scale, temperature logging efficiency has been quantitatively enhanced, and allows inflow temperatures to be calculated through the simultaneous use of a flowmeter. Under certain hydraulic or pumping conditions, both inflow intensities and associated temperatures can also be directly modeled from temperature data and the use of the heat budget. Theoretical and applied examples of the heat budget application are provided. Applied examples are shown using high-

resolution temperature logging, spinner flow metering, and televIEWING for three wells installed in fractured bedrock aquifers in the St-Lawrence Lowlands, Quebec, Canada. Through relatively rapid manipulations, thermal measurements in such cases can be used to detect the intervals or discrete positions of hydraulically active fractures in wellbores, as well as the existence of ambient flows with a high degree of sensitivity, even at very low flows. Heat budget calculations at the borehole scale during pumping indicate that heat advection fluxes rapidly dominate over heat conduction fluxes with the borehole wall. The full characterization of inflow intensities provides information about the distribution of hydraulic properties with depth. The full knowledge of inflow temperatures indicates horizons that are drained from within the aquifer, providing advantageous information on the depth from which groundwater originates during pumping.

Keywords

Vertical aquifer stratification; high-resolution temperature logging; heat budget; groundwater flow paths; spinner flowmeter; borehole televIEWING; fractured bedrock aquifer; Quebec (Canada)

1. Introduction

Aquifer hydraulic properties are most commonly determined through pumping and slug tests. These techniques provide fast and reliable measurements of mean transmissivity and effective porosity, which often yield sufficient information to manage groundwater resources in terms of productivity. However, for applications where solute transport processes cannot be neglected (i.e., wellhead protection area delineation, contaminated site remediation), the knowledge of mean hydraulic parameters alone is insufficient, and groundwater flow paths need to be assessed. Hydrogeologists always have to deal with a certain degree of spatial heterogeneity, because aquifer architectures originate from complex geological processes (i.e.,

sedimentology, tectonics), which generate heterogeneous (de Marsily et al., 2005) and scale-dependent patterns (Schulze-Makuch et al., 1999). Despite the heterogeneous nature of aquifers, the use of borehole logging techniques to address this heterogeneity remains uncommon. For instance, pumping tests usually carried out for drinking water supply wells do not typically address the vertical variability of the production zones within the boreholes (Raghavan, 2006). Since the most common borehole logging technique, known as the packer test, is more difficult to implement, more time consuming, and thus more expensive than usual pumping tests, the vertical investigation of aquifer heterogeneities is still rare in hydrogeological surveys.

The heterogeneous nature of aquifers has been investigated and highlighted worldwide. In the Canadian context of this study, examples dealing with aquifer heterogeneity have been provided for both granular (Ouellon et al., 2008) and fractured (Perrin et al., 2011) matrices. Nastev et al. (2004) described the lognormal decrease of hydraulic conductivity with depth in post-glacial fractured bedrock in Quebec, Canada. Recent regional groundwater characterizations, also carried out in Quebec, between 2008 and 2015, included the investigation of vertical bedrock fracturing patterns. These generally showed no correlation between well productivity and type of bedrock formation (Carrier et al., 2013; Larocque et al., 2013; Larocque et al., 2015a). Packer tests and acoustic televiewing performed by Carrier et al. (2013) showed that decreasing fracture densities are generally associated with decreasing hydraulic conductivity with depth. However, these results have high standard deviations, revealing strong vertical heterogeneities from one well to another. Indeed, packer tests performed for some wells in the same period (Larocque et al., 2013; Larocque et al., 2015a) did not reveal systematic decreases in bedrock fracturing with depth.

Other borehole logging techniques have garnered the attention of hydrogeologists over the last two decades. For instance, tracer experiments allow fluid velocities

(USGS, 2005) or concentration dilution (Libby & Robbins, 2014) to be measured following the injection of a tracer into boreholes during pumping, or tracer breakthrough in boreholes neighboring the injection well to be measured (Pistre et al., 2002). Spinner (Barahona-Palomo et al., 2011) or electromagnetic (Miyakawa et al., 2000; F.L. Paillet, 2004) flowmeters allow water velocities to be measured very efficiently and directly inside the borehole with high spatial resolution. Such fluid velocity measurements inside boreholes during pumping allow the vertical distribution of the hydraulic properties of the surrounding rocks to be determined (Barahona-Palomo et al., 2011). For the same application, but under low flow conditions, heat pulse flowmeters (Hess, 1985; F.L. Paillet, 2004) are especially useful to measure ambient borehole flow. Temperature logging in boreholes is another type of investigation technique. Applications specifically dedicated to hydrogeology make use of temperature logging in boreholes to estimate recharge rates (Taniguchi et al., 1999b; Anderson, 2005; Ferguson & Woodbury, 2005), to trace local (Keys & Brown, 1978; Renken et al., 2008) or regional (Saar, 2011) groundwater flows, or to infer the lateral heterogeneity of hydraulic properties for a section of an aquifer (Ferguson, 2007). These applications typically address large-scale heat transport processes within the subsurface and/or involve heat transport processes over relatively long time scales.

At the borehole scale, high-resolution temperature profiling is of particular interest in hydrogeology, and its use has become more frequent over the last decade, coinciding with temperature sensor resolution improvement to 0.001°C. Hydrogeological information obtained from recent passive and/or active temperature measurement techniques (D. J. Irvine et al., 2015; M. Klepikova, V. et al., 2016) are now capable of competing with other, more conventional investigation techniques (e.g., involving hydraulic packer tests or solute tracing) to provide valuable information about aquifer hydraulic and fracturing structure, used to infer groundwater flow paths.

Passive temperature measurements consist of logging temperature in a wellbore without introducing a heat source, so that obtained profiles only depend on natural hydrogeological conditions, thermal properties of the rock, and/or aquifer solicitation through pumping. For instance, the vertical distribution and interconnectivity of fractures in wellbores can be well described by coupling flow and passive temperature measurements. Such examples are given by Chatelier et al. (2011) and Le Borgne et al. (2006), who have explicitly pointed out the advantage of combining passive temperature and flowmeter logs, where the passive temperature log gives the precise depth at which inflow occurs, and the flow log gives a precise measurement of the flow rate in the interval between inflow and outflow zones. Discussions of groundwater origin from identified fractures are also found in the literature. One such example is also provided by Chatelier et al. (2011), by coupling passive temperature measurement and flow logs with elaborate *in situ* data. Other recent technical advances make it possible to measure instantaneous temperature profiles using optical fiber. This technology is often implemented with an active measurement of temperature by heating a section or the entire length of the water column. Pehme et al. (2013) used active temperature measurements to detect lateral ambient flow through hydraulically active fractures by measuring the thermal recovery of the water column in the borehole after it was heated. In another example, Bense et al. (2016) used a coaxial system of heating cable and optical fiber, and then used the variation in temperature profiles during pumping to calculate the depth-flow distribution in wellbores.

Although these latter active technologies allow direct quantitative results, their set-up remains rather delicate and time-consuming for *in situ* applications. Moreover, the effectiveness of the method is not guaranteed in all *in situ* cases, because the resolution of optical fiber temperature measurements ($\pm 0.5^\circ\text{C}$, or at best $\pm 0.02^\circ\text{C}$ with the use of the calibration baths) is still low compared with those of the current thermistors ($\pm 0.001^\circ\text{C}$), which are preferentially used for passive measurements.

Thermal numerical modeling has been used by M. V. Klepikova et al. (2011a); M. V. Klepikova et al. (2014) to present the concepts and numerical methods behind the inversion of temperature profiles to flow profiles in wellbores, thus using the temperature probe as a high-resolution flowmeter. Previous work has made use of thermal analytical models, especially in the case of (low) ambient flows in wellbores for fractured media. An explicit thermal analytical solution considering a semi-infinite plane geometry was provided by Drury & Jessop (1982) to model transient temperature shifts within the aquifer with increasing distance from the active fracture intercepting the wellbore. With an application for ambient inflow, which flows through the wellbore, Ge (1998) proposed a theoretical model to estimate both fluid flow velocity and temperature for a given inflow. Previous work has focused on experiments under thermal steady state conditions during pumping, and was generally applied at depth or at locations where the geothermal gradient is linear.

This study investigates the vertical distribution of hydraulic properties in fractured bedrock wells using flow metering and televIEWING, but with a main focus on temperature borehole logging. As cited above, numerous works have already highlighted the pertinence of temperature logging to identify the occurrence and the positions of productive zones in wellbores. Through the introduction of a new heat budget model, this work aims to enhance the qualitative interpretation of depth-temperature profiles against advection and conduction fluxes at the borehole scale, across a range of static and dynamic conditions in fractured aquifers. The second objective is to enhance the potential of passive temperature logging to quantify flow and the temperature of inflows into boreholes with the use of a heat budget. Previous analytical models found in the literature typically allowed calculations for only a limited number of fractures (i.e., one or two fractures at best, in the case of ambient flows), and did not attempt to model the complete depth-temperature profile when several inflows occurred and mixed in the wellbore. The heat budget proposed in this work aims to model depth-temperature profiles for the entire wellbore length, for

several inflows that mix in the borehole, and depending on pumping conditions (duration and discharge intensity). Simultaneous temperature measurement and flow metering are applied within the heat budget to quantify information about the origin of several groundwater inflows based on their temperature. The use of this analytical procedure is also theoretically investigated to test its potential to quantify both flow and temperature of inflows in wellbores through the single logging of depth-temperature profiles.

The following abbreviations are used throughout the text for brevity: the temperature of the water column measured in the borehole under ambient (T_S) and under dynamic (i.e., pumping) (T_D) conditions; the temperature of groundwater discharging into the borehole at depth (T_i), originating from a discrete or distributed interval of hydraulically active fracture(s); and the temperature of the aquifer (T_A), depending on depth as function of geothermal heat flux, seasonal and climatic variation of the soil surface temperature, regional groundwater circulation, and recharge fluxes, but excluding the influence of fluid advection due to the presence of a wellbore or the pumping thereof.

2. Materials and methods

2.1 Site description

The study area is located in southern Quebec, within two geological regions that correspond to the St. Lawrence Platform and the Appalachian Mountains (**Figure 2.2**). The Ordovician geological units of the St. Lawrence Platform are of sedimentary origin and consist of thick sequences of sandstone of the Potsdam Group, dolomite of the Beekmantown Group, limestone of the Chazy, Black River, and Trenton Groups, Utica shales, and mudstones of the Queenston Group. In the eastern part of the study area, the Appalachian range corresponds to complex, imbricated metamorphic thrust sheets produced during the Taconian Orogeny: slates

with a bedded shaly matrix containing chaotic blocks of cherts, sandstone, and dolomitic schists. These geological units are represented in **Figure 2.2** as a simplified version of the detailed mapping by Globensky (1987). The geomorphology of Quebec is marked by glaciation-deglaciation phases, with unconsolidated sediments of glacial and post-glacial origin overlying the fractured bedrock. The complex stratigraphy of the unconsolidated sediment largely controls the hydrogeological context of the underlying fractured bedrock aquifers. In such a glacial geomorphological context, the unconformity between Quaternary unconsolidated sediment and the bedrock is very sharp, and bedrock fracturing would decrease with depth over the first hundred meters (Carrier et al., 2013).

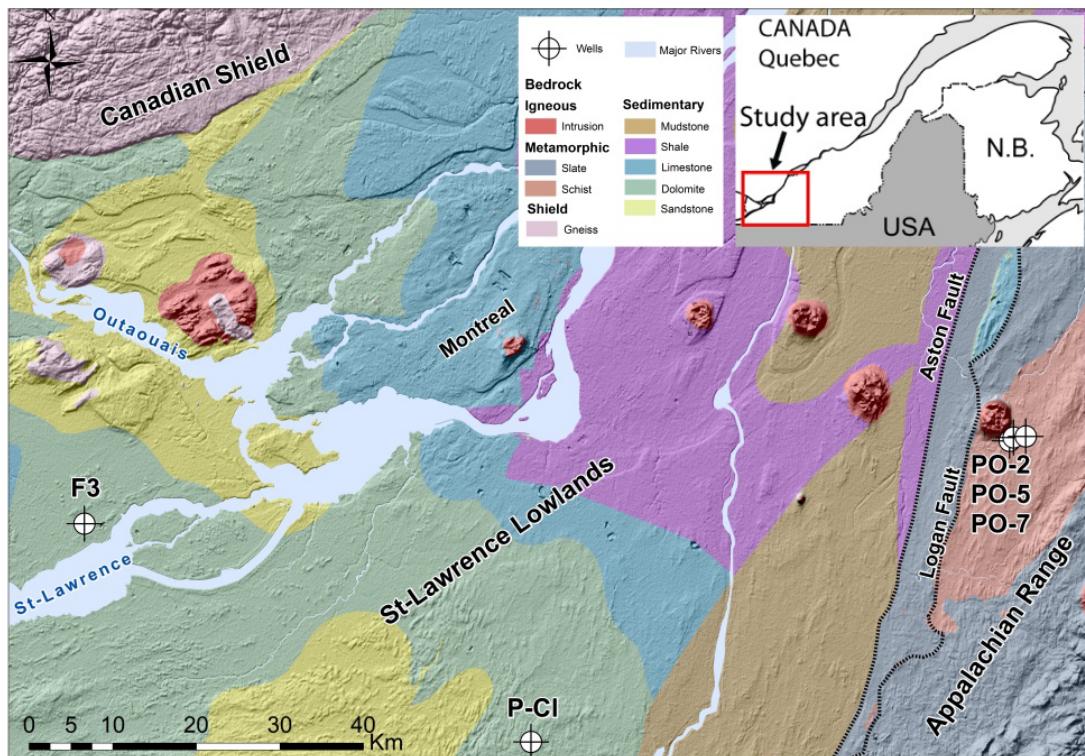


Figure 2.2 : Location of wells investigated in 2016 and geological map

Three (F3, P-Cl, and PO-7) of the five wells presented in **Figure 2.2** have been studied in detail. PO-2 and PO-5 are only used as references for ambient temperature profiles with depth (see section 4.2.1). All investigated wells have a 150 mm

diameter, are steel-cased for the total thickness of unconsolidated sediment, and are anchored one meter into the bedrock. Below the steel tubing, boreholes are uncased. Well F3 has a total depth of 20.4 m and was drilled for a regional hydrogeological mapping study (Larocque et al., 2015b). Sediment at this location consists of 4.3 m of Champlain silty clays and 5.7 m of glacial till covering the bedrock. Sedimentary bedrock is Ordovician calcareous dolomite of the Beekmantown Group, Beauharnois Formation. The bedrock aquifer is confined under impermeable clay and till sediments, and a pumping test provided a transmissivity of $3.7 \times 10^{-3} \text{ m}^2/\text{s}$ and a productivity of approximately 287 L/min. The productivity is defined here as the maximum total discharge rate obtained when the drawdown in the wellbore has stabilized. Wells PO-7, PO-2, PO-5, and P-C1 were drilled for municipal groundwater investigation, and access to these wells was kindly provided by the lead hydrogeologist. Well PO-7 has a total depth of 61 m, a productivity of 340 L/min, and a transmissivity of $4.2 \times 10^{-3} \text{ m}^2/\text{s}$. At this location, 8 m of fine sand, including silty lenses, overlay the bedrock, which consists of red schists of the Cambrian Shefford Group, Mawcook Formation. Well PO-2 (92 m depth; productivity 45 L/min) and PO-5 (91 m depth; productivity 15 L/min) are located 200 m and 1 km from well PO-7 respectively, within the same bedrock formation, with land cover, as well as the nature and thickness of the unconsolidated sediments varying only slightly. Well P-C1 has a total depth of 37 m and a productivity of 80 L/min. Glacial till less than 0.6 m thick overlies the bedrock, which consists of Ordovician dolomitic sandstone of the Beekmantown Group, Theresa Formation.

2.2 Borehole logging with a spinner flowmeter and televIEWING

Water velocities in wells PO-7 and F3 were measured during pumping with a spinner flowmeter (Terraplus, 2014b) operated with a winch controller (Terraplus, 2014d). Pumping rates were set to be as high as possible to maximize water velocities flowing into the borehole, and thus maximizing flowmeter sensitivity. Discharge rates, however, were carefully constrained in order to avoid well dewatering below the base of the steel-casing, allowing measurements within the whole uncased section of the wellbores. The spinner flowmeter was calibrated for each well under static conditions, with winch down speeds varying from 1 to 3 m/min. During pumping tests, the pumps were placed at the top of the well and water velocities were logged with the spinner flowmeter trolled downward, in order to maximize fluid velocities, and thus to maximize the flowmeter sensitivity. Measurements were performed at a resolution of 5 cm and a winch down speed of 2 m/min. Raw, noisy signals measured with the flowmeter were smoothed using a moving average of 10 measurements. Flow velocities were converted into flow rates by dividing the measured flow velocities by the section area of the borehole. Flow rates at depth were converted into a percentage of pumping discharge by dividing them by the total pumping rate. Total water discharged during pumping was measured with a volumetric counter placed at the hose outlet, and with a bucket and a chronometer, and compared with the total discharge measured with the flowmeter within the steel casing. Discrepancies in the total discharge obtained by these two means were less than 5%. Fluid velocity measurements in the borehole during pumping were taken when steady state was reached (i.e., with residual drawdown of less than 1 cm/20 min). Pumping tests performed at different discharge rates for F3 and PO-7 did not reveal any variation in the vertical distribution of water inflows into the borehole measurable by the flowmeter. TelevIEWING with an optical borehole imager (Terraplus, 2014c) was coupled with flowmeter measurements to better constrain the location and the discrete or distributed nature of hydraulically active fractures.

2.3 Passive temperature borehole logging

Temperature profiles in water columns were measured with a 0.01°C resolution thermistor probe (Barbecot et al., 2000). Measurements were always taken facing downward, with a maximum interval of one meter. For all temperature logging under dynamic conditions, the pump was placed at a shallow depth within the casing or just below the bottom of the casing, avoiding temperature disturbance and allowing space for the uncased length of the studied borehole. Static profiles were systematically taken before initiating measurements under pumping conditions. Depths to the water table under static conditions are shown in **Figure 2.10(a)**. Discharge rates, as well as drawdown stabilized during pumping, are shown in **Figure 2.10(b), (c) and (d)** for wells PO-7, P-Cl and F3 respectively. For a given well, all static and dynamic temperature logs were taken on the same day. Wells PO-2, PO-5, and PO-7 were installed in the same red schist formation and were drilled at a 200 m spacing. Wells PO-2 and PO-5 were not accessible for logging under dynamic conditions, but the presentation of their ambient temperature logs together with both the static and dynamic PO-7 logs is useful, because PO-2 and PO-5 reach greater depths (92 m).

2.4 Calculation of hydraulic properties from velocity logs

The distribution of horizontal hydraulic conductivity along the length of the borehole was obtained directly from flowmeter measurements. As described by Barahona-Palomo et al. (2011), the hydraulic conductivity of each fractured zone (K_i) can be calculated using **Equation 2.1**, where T is the total hydraulic transmissivity obtained from a pumping test, Q is the total pumping rate, and q_i is the inflow associated with the fracture zone interval of vertical thickness b_i .

$$k_i = \frac{1}{b_i} \frac{q_i}{Q} T \quad (2.1)$$

3. Background for wellbore temperature profile analysis in fractured aquifers

3.1 Heat fluxes under ambient and dynamic conditions

In hydrogeology, heat fluxes relate to heat advection and heat conduction. Heat advection concerns the flowing and the mixing of groundwater in the aquifer. Heat conduction tends to re-equilibrate the temperature of flowing fluids with the temperature of the aquifer and *vice versa*. T_s and T_d profiles measured in a wellbore are dependent on these two types of heat fluxes, occurring at two scales:

- Strictly at the borehole scale, heat advection occurs within the water column of the borehole. It is determined by the distribution of groundwater inflows with depth, and their respective intensities and temperatures. Free convection due to the variable density of fluids could also drive very slow ambient flows in wells, but this phenomenon is not discussed further in this work. When water flows vertically inside the borehole, its temperature distribution differs from that of T_A . In this case, the vertical temperature profile of the borehole wall is largely controlled by the temperature of the flowing water (T_d). If no flowing water is impacting the wellbore, the temperature of the aquifer surrounding the borehole (T_A) is in equilibrium with the geothermal gradient. If there is a temperature difference between the borehole wall and the aquifer because of flowing fluids, conduction flux occurs between them;
- Within the portion of the aquifer influenced by the presence of the well or the pumping thereof, heat advection occurs, with groundwater flowing and mixing in fractures, from the furthest extent of the fracture until its interception with the borehole itself. If the orientation of the active fractures is not parallel to the aquifer isotherms (T_A), heat transfer will occur between flowing fluid and the surrounding porous or fractured aquifer. Under such conditions, the temperature of the flowing fluid tends to equilibrate with T_A along its flow paths into the

fractured media. Where active fractures intercept the borehole, groundwater finally discharges at a certain temperature (T_i) into the wellbore.

Ambient water flows under static conditions

In crystalline aquifers, flow patterns are defined by various parameters, such as fracture density, orientation, and hydraulic interconnectivity. In such an environment, and even without artesian conditions, water circulation (i.e., ambient flows) may be induced by the presence of a wellbore itself (Corcho Alvarado et al., 2008). The presence of a borehole can actually act as a hydraulic by-pass between fractures that were not connected prior to drilling. For a fractured aquifer without significant porosity, ambient flow inside a borehole has the following main characteristics: 1) it only occurs if two or more hydraulically active discrete fractures or distributed fractured intervals intercept the well, 2) its direction is determined by the head difference between each pair of fractures, 3) its intensity is determined by the combination of hydraulic transmissivity and hydraulic gradients between each pair of fracture zones, 4) it only impacts the length of the interval between hydraulically active fracture(s) that intercept the borehole, 5) its intensity may vary (over the flowing interval) if more than two discrete or distributed fractured intervals are involved, and 6) it can only be unidirectional (the fracture with highest hydraulic head is on one side of the flow interval in the borehole) or bidirectional (discrete or distributed fractures with lower heads are both above and below the fracture with highest hydraulic head).

Water flow under pumping conditions

Under pumping conditions, the discharge of water from the well induces the drawdown of the water column into the borehole. The total resulting drawdown will generally counterbalance ambient flows driven by a small natural head gradient between fractures (e.g., Hess (1985) measured ambient flow only as high as 0.3 L/min). When pumping is initiated, all fractures would be drained into the borehole.

In this case, groundwater discharge rates into the borehole are essentially proportional to the hydraulic transmissivity of the fractures. If ambient flow has been active in the system for quite a long time, the T_s profile may be significantly different from T_A . When pumping is initiated, T_i would be briefly influenced by ambient T_s rather than T_A profiles. However, as pumping time increases, T_i would be determined by the heat advection of groundwater circulating and mixing in the aquifer (depending on the extension and orientation of fractures) and by the conductive re-equilibration of flowing water with the aquifer at T_A .

3.2 Conceptual example of temperature profiles in a fractured aquifer

Figure 2.3 aims to conceptually describe a scenario whereby the hydrogeological context, the bedrock fracture network, and the presence of a well (pumped or not) will drive advection and conduction heat fluxes induced by flowing water. These heat fluxes will modify the temperature field within the system, which could be revealed and described through the measurement of temperatures within the borehole. To simplify, the background geothermal gradient in **Figure 2.3** is considered to be linear (i.e., it does not represent a realistic gradient, which is usually multi-curved in the upper part, because of seasonal and climatic atmospheric temperature variations (Taniguchi et al., 1999b). The bedrock aquifer in **Figure 2.3** has three distinct fractures, not connected with one another except at the location of the borehole. These fractures have different inclinations, hydraulic conductivity ($K_2 \gg K_1 \approx K_3$), original temperatures (according to the linear geothermal gradient $T_3 > T_2 > T_1$), and hydraulic heads ($h_1 > h_2 > h_3$) at their furthest extents from the borehole. In this example, heads arbitrarily decrease with depth.

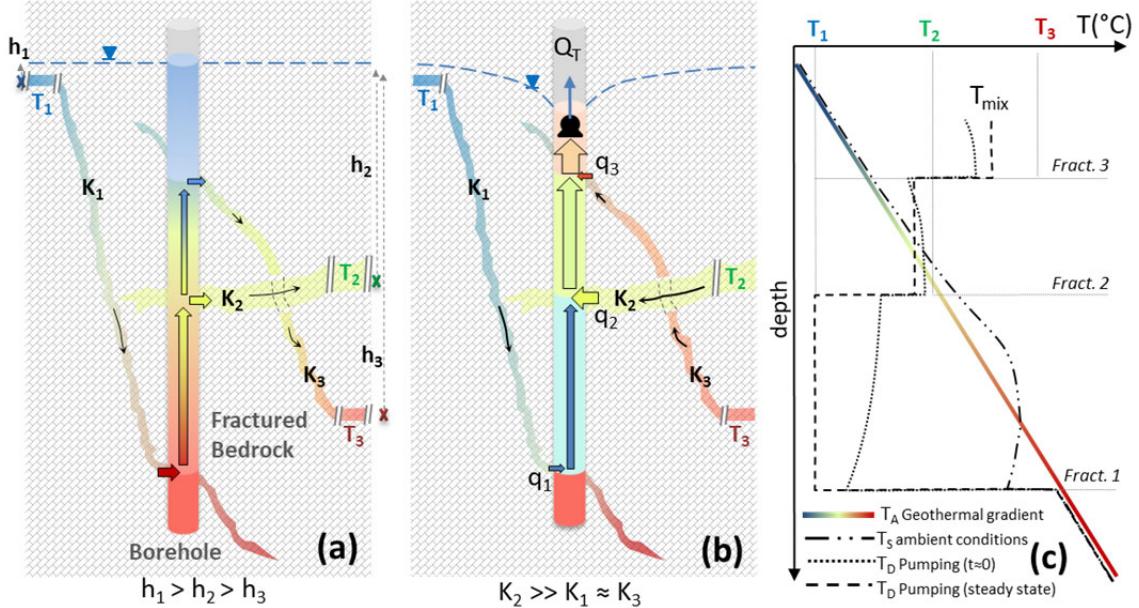


Figure 2.3 : Conceptual schematic of temperature profiles in a fractured aquifer: (a) ambient scenario, (b) pumping scenario, and (c) TS and TD temperature profiles in the borehole

The situation under ambient conditions is presented in **Figure 2.3(a)**. The highest hydraulic head at the outermost extent of fracture 1 induces an ambient flow that is redistributed between fractures 2 and 3. The flow distribution between the fractures is controlled by the hydraulic potential, which combines the hydraulic transmissivity and the hydraulic gradient between the fractures. In this example, even if $K_2 > K_3$, it is possible that fracture 3 drains a larger proportion of the ambient flow. This can occur if the head gradient between fracture 1 and fracture 3 is high enough that the hydraulic potential is higher than that between fracture 1 and fracture 2. This ambient flow induces a specific temperature profile (T_S) in the wellbore (**Figure 2.3(c)**). T_i from fracture 1 is slightly colder than T_A , because the heat advection due to ambient flow along the fracture 1 network is strong enough to avoid its complete re-equilibration with T_A . The water flowing upwards then exchanges heat with the borehole walls by heat conduction, implying that the T_S profile differs from the T_A profile. At fracture 2, part of the flow is drained out, so that the total flow within the borehole is reduced, inducing a relatively greater potential for temperature re-equilibration by conduction with the borehole wall (increasing the slope of the T_S

profile between fracture 2 and fracture 3). Up to fracture 3, T_S is the same as T_A , since no ambient flow influences its profile.

The situation under pumping conditions is presented in **Figure 2.3(b)**. Due to the pumping, water drawdown into the well imposes the drainage of all active fractures into the wellbore, proportionally to the transmissivity of each fracture. As the pump is placed at the top of the well, flow in the borehole is unidirectional and gradually increases from the lowest to the highest active fracture. Flow intensities during pumping depend on hydraulic properties. However, compared to ambient conditions, flow intensities would be much higher during pumping because active fractures are more strongly solicited and the advection heat flux will become greater than the conduction heat flux. Consequently, the temperature of each inflow discharging into the borehole would be much closer to the temperature of the groundwater at the far end origin of its fracture network. T_i at fracture 1 becomes colder under pumping conditions, because advection dominates over conduction. Once inside the borehole, upward flowing water from fracture 1 would still be subject to conduction-driven re-equilibration with the temperature of the borehole wall. However, as its flow rate is much greater during pumping, the relative conductive heat flux is much lower than under ambient conditions. For the short pumping duration ($t \approx 0$) in **Figure 2.3(c)**, the T_D profile can still slightly re-equilibrate with T_S , but as advection will quickly dominate during pumping, the T_D profile is less influenced by conductive re-equilibration with the borehole wall. T_D between fractures 2 and 3 is determined by the advective mixing of inflow from fractures 1 and 2 (flow rates and T_i) at the beginning of pumping. With increasing pumping duration, a thermal steady state would eventually be reached (**Figure 2.3(c)**). Every T_i will be influenced by the orientation of the fracture system. If the fracture network is inclined, thermal re-equilibration within the aquifer could occur, so T_i would range between T_A (at the far end of the fracture network) and T_A (where the fracture intercepts the borehole). T_i resulting from very inclined fractures and high flows would be closer to the

temperature at the far end of the drainage system. Conversely, if the fracture network is horizontal and flow is weak, T_i would be nearly equal to the temperature imposed by the background geothermal gradient, T_A , at the given depth. When advection controls rather than conduction (i.e., at steady state in **Figure 2.3(c)**): $T_{i\text{fracture}2} \approx T_2$, $T_{i\text{fracture}1} > \approx T_1$ and $T_{i\text{fracture}3} < \approx T_3$. The temperature of the total flow discharged at the wellhead (T_{mix} in **Figure 2.3(c)**) would mainly be determined by the mixing of inflows from fractures 1, 2, and 3, in proportion to their respective inflow intensities and temperatures.

3.3 Heat budget at the borehole scale

The heat budget at the scale of a given volume (dV) of the borehole is presented in **Figure 2.4**. dV is defined by the interval separating two passive temperature measurements, $T(z+1)$ and $T(z-1)$. During pumping, water mixing occurs between groundwater inflow, $q(z)$ (being positive if water enters the borehole and negative if water flows outward) at temperature $T_i(z)$, and water flowing upward ($Q(z-1)$) in the borehole at temperature $T_D(z-1)$. The heat budget of mixing these volumes corresponds to the difference in heat transported by the volume of water entering the base ($Q(z-1)$) and flowing through the wall between $z-1$ and $z+1$ (inflow $q(z)$) and that transported by the water leaving dV at $z+1$ ($q(z)+Q(z-1)$).

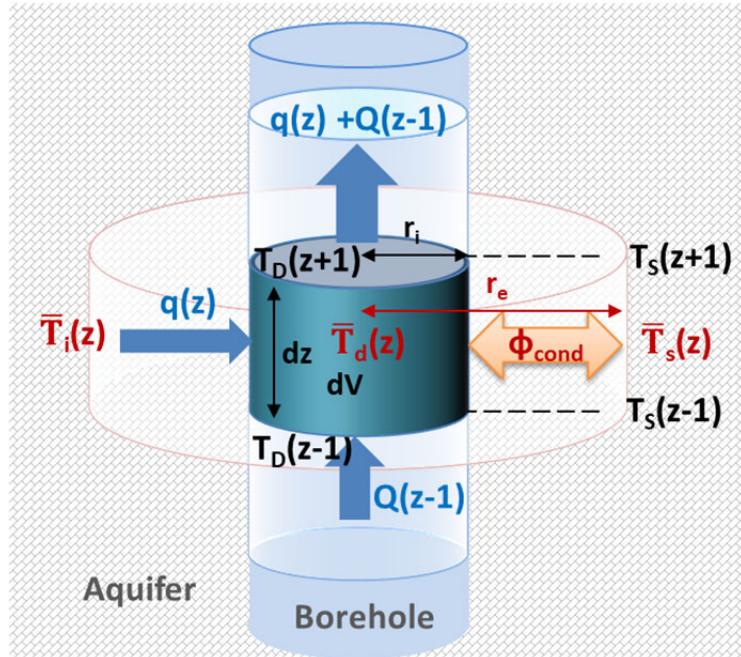


Figure 2.4 : Heat budget at the borehole scale

For a quantity of water that is either heated or cooled, the general expression of advection heat flux, ϕ_{adv} (W), is given by **Equation 2.2** (Faghri, 2010), where Q (m^3/s) is the water flow rate, C ($J m^{-3} \circ K^{-1}$) is the specific volumetric thermal capacity of water, and T_i and T_f are the initial and final temperatures of the water respectively:

$$\phi_{adv} = Q C (T_f - T_i) \quad (2.2)$$

Considering **Equation 2.2** and the adiabatic mixing of two fluids at different temperatures, the heat balance of water fluxes $q(z)$ and $Q(z-1)$ that mix in the borehole is given by **Equation 2.3**:

$$q(z)C[T_D(z) - \bar{T}_i(z)] + Q(z-1)C[T_D(z+1) - T_D(z-1)] = 0 \quad (2.3)$$

Once pumping is initiated, the borehole wall temperature quickly shifts from T_s to T_D . Heat conduction then occurs radially through the surface of the borehole. The general expression of radial conductive heat transfer at steady state through a semi-

infinite solid (Faghri, 2010) is applied. In this case, the finite boundary is the borehole wall, which is subject to a temperature shift due to pumping. The temperature anomaly will propagate within the semi-infinite solid (e.g., the aquifer). Heat conduction flux between the borehole wall and the aquifer is then given by **Equation 2.4**, where dz is the length of the interval, $\bar{T}_S(z)$ and $\bar{T}_D(z)$ are the mean temperatures of the water in the borehole under static conditions and during pumping respectively, averaged for the interval dz , $r_i(m)$ is the radius of the well, $r_e(m)$ is the time-dependent radius of the heat conduction influence around the borehole, and $x = r_e - r_i$ is the annular distance of propagation of the temperature anomaly due to pumping ($T_D - T_S$), which dissipates into the aquifer. With increasing pumping duration, r_e increases in **Equation 2.4**, so that the heat conduction flux fades during pumping. λ ($\text{W m}^{-1}\text{K}^{-1}$) is the bulk thermal conductivity of the aquifer:

$$\Phi_{\text{cond}} = \frac{2\pi\lambda dz[\bar{T}_S(z) - \bar{T}_D(z)]}{\ln\left(\frac{r_e}{r_i}\right)} \quad (2.4)$$

Considering advection and conduction heat fluxes, the heat balance at the borehole scale is given by **Equation 2.5**, which combines **Equation 2.3** and **Equation 2.4**:

$$q(z)C[T_D(z) - \bar{T}_i(z)] + Q(z-1)C[T_D(z+1) - T_D(z-1)] = \frac{2\pi\lambda dz[\bar{T}_S(z) - \bar{T}_D(z)]}{\ln\left(\frac{r_e}{r_i}\right)} \quad (2.5)$$

This equation then links the measured temperature-depth profiles (i.e., $T_S(z)$ and $T_D(z)$) with three variables: $q(z)$, $\bar{T}_i(z)$, and r_e (which increases with pumping duration). $q(z)$ distribution could also be measured independently, for example with a flowmeter.

4. Results

4.1 Depth-temperature profiles modeled with the heat budget

In this section, temperature-depth profiles were modeled for dynamic conditions ($T_D(z)$), considering a conceptual well which intercepts six hydraulically active fractures (**Figure 2.5**). In this example, the percentage of total pumping discharge (% $Q_T(z)$) and temperature ($\bar{T}_i(z)$) associated with each inflow have been randomly and arbitrarily set with depth. In order to simplify the thermal static conditions, a linear geothermal gradient was applied (arbitrarily set to $-1^\circ\text{C}/100 \text{ m}$), with an absence of ambient flows so that $T_S(z)=T_A(z)$. Pumping occurs at the top of the wellbore, inducing upward water flows. Blue arrows in **Figure 2.5 (b)** and **(c)** represent water flow directions in the water column and inflow from the aquifer. The $T_D(z)$ response to pumping was modeled using the heat budget (**Equation 2.5**) implemented in a spreadsheet, with a vertical resolution $dV = 0.5 \text{ m}$. Fixed parameters used for the model are: radius of the well, $r_i = 0.075 \text{ m}$, bulk thermal conductivity of the aquifer, $\lambda_s = \lambda_s^{(1-n)} \lambda_w^n = 1.88 \text{ W m}^{-1} \text{ }^\circ\text{K}^{-1}$, effective porosity, $n = 0.05$, and thermal conductivity of sedimentary bedrock, $\lambda_s = 2.0 \text{ W m}^{-1} \text{ }^\circ\text{K}^{-1}$ and of water, $\lambda_w = 0.6 \text{ W m}^{-1} \text{ }^\circ\text{K}^{-1}$ (Barret L. Kurylyk & Irvine, 2016). Various conditions for heat advection and conduction fluxes were simulated to evaluate their effect on the shapes of the $T_D(z)$ profiles. The effect of heat advection (at the given heat conduction, $r_e = 0.091 \text{ m}$) was investigated by varying the total pumping rate from $Q_T = 1 \text{ L/min}$ to $Q_T = 100 \text{ L/min}$ (**Figure 2.5 (b)**), and the effect of heat conduction (at the given heat advection, $Q_T = 40 \text{ L/min}$) was investigated by varying r_e from 0.076 to 0.101 m (**Figure 2.5 (c)**). In both simulations, $T_D(z)$ profiles are also provided by considering only heat advection. Conduction is neglected by setting $\phi_{\text{cond}} = 0$ in equation **Equation 2.5**. This is theoretical, because in reality conduction always occurs, but the latter $T_D(z) \phi_{\text{cond}} = 0$ profiles are helpful to **Figure 2.5** for visually distinguishing when heat advection becomes dominant over heat conduction.

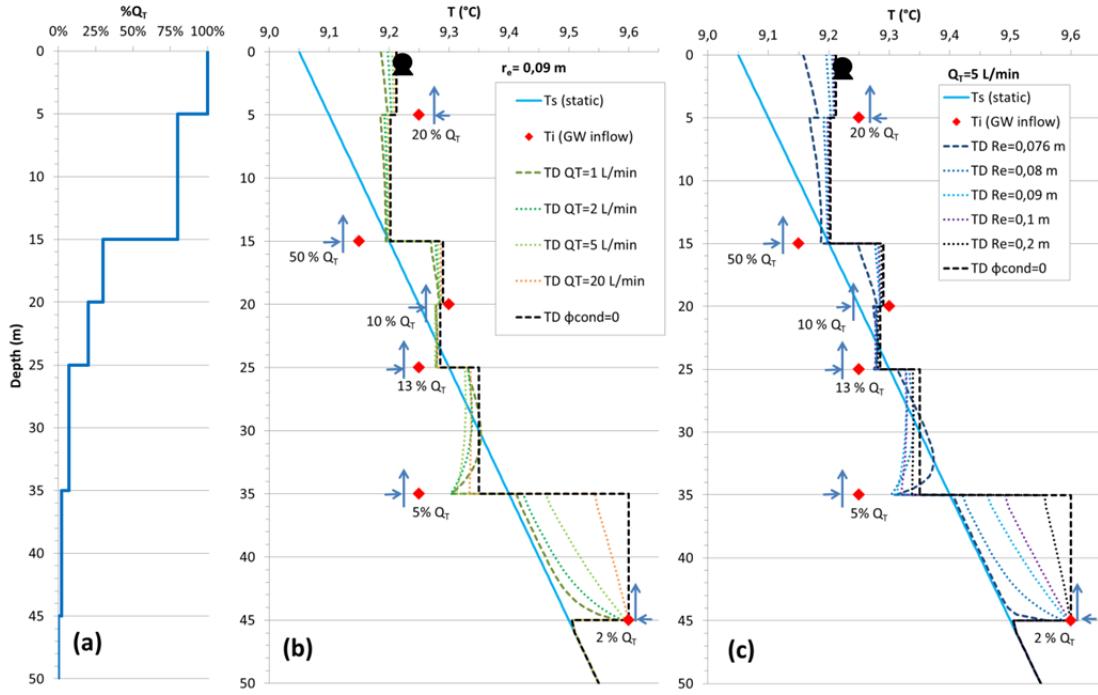


Figure 2.5 : Dynamic depth-temperature profiles modeled with the heat budget

4.1.1 General patterns and processes controlling modeled depth-temperature profiles

The positions of water inflows into the wellbore are easily identifiable in the dynamic temperature profiles in **Figure 2.5**. However, even if $q(5 \text{ m}) = 20\% Q_T$ and $q(20 \text{ m}) = 10\% Q_T$ (**Figure 2.5 (b)** and (**c**)), the occurrence of these large inflows is not very well revealed from the T_D profile, because $T_i(5 \text{ m}) \approx T_D(5 \text{ m})$ and $T_i(20 \text{ m}) \approx T_D(20 \text{ m})$. These slight T_D shifts are thus enhanced when pumping conditions favor heat conduction (i.e., lower total discharge in **Figure 2.5 (b)**, or lower r_e values in **Figure 2.5 (c)**).

As T_D profiles are derived from both advection and conduction heat fluxes, the shape of the temperature profiles does not directly (graphically) reflect the water flow distribution in the wellbore. In **Figure 2.5 (b)** and (**c**), temperature profiles do not mimic the shape of water flow distribution in the wellbore. Even when conduction is neglected ($T_D \phi_{cond} = 0$ in **Figure 2.5 (b)** and (**c**)), the resulting T_D profiles still do not

directly reflect water flow distribution in the wellbore. Another important characteristic to note is that when conduction is (or becomes) negligible in this case, $T_D(z)$ profiles are entirely controlled by the distribution of inflows into the wellbore, independently of the total discharge rate.

T_D profiles appear to be extremely sensitive to very low groundwater inflows into the wellbore, especially at the bottom intervals for this example, where the total flow of water remains low. In this example, the bottom inflow, q (45 m), would be detectable for flows as low as 0.02 L/min (e.g., in **Figure 2.5 (b)**, where q (45 m) = 2% of Q_T = 1 L/min, with medium conduction, r_e = 0.091 m) or as low as 0.1 L/min (e.g., in **Figure 2.5 (c)**, where q (45 m) = 2% of Q_T = 5 L/min, with intense conduction, r_e = 0.076 m).

As $T_D(z)$ profiles depend on the temperature of each inflow, the range for each $T_i(z)$ could be qualitatively estimated by visualizing the cooling (e.g., $T_i(z) < T_D(z)$) or warming (e.g., $T_i(z) > T_D(z)$) of the water column where steps in the profile occur.

The influence of heat conduction fluxes could become less important than heat advection with increasing pumping time and/or with increasing water flow rates in the borehole. In **Figure 2.5 (b)** (representing increasing pumping rates), T_D profiles become dominated by heat advection for $Q_T(35\text{ m}) > 1.4$ L/min (e.g., 7% of Q_T = 20 L/min at depths shallower than 35 m). In **Figure 2.5 (c)** (representing increasing pumping time; e.g., increasing r_e , with Q_T = 5 L/min), T_D profiles become dominated by heat advection as soon as $r_e > 0.081$ m for $Q_T(35\text{ m}) > 0.35$ L/min (e.g., 7% of Q_T = 5 L/min at depths shallower than 35 m). It is important to note that a radius of influence of $r_e = 0.081$ m represents a temperature front due to pumping that radially penetrates only 6 mm into the aquifer ($r_i = 0.075$ m in this case).

Another way to look at the respective influences of advection and conduction fluxes at the borehole scale is given in **Figure 2.6**, which provides a comparison of

advection and conduction fluxes calculated at the borehole scale using **Equation 2.2** and **Equation 2.4**. Advection heat flux in the wellbore is related to flow and to the cooling or warming of the water (ΔT) due to inflowing groundwater. Conduction heat flux between the borehole wall (at T_D) and the aquifer (at $T_S = T_A$) varies logarithmically with the propagation distance ($x = r_e - r_i$) of the temperature offset ($T_D - T_S$) into the aquifer. Conduction flux is therefore intense at the beginning of the pumping ($r_e \approx r_i$) and fades with pumping duration (i.e., with increasing r_e). Interpretation of **Figure 2.6** indicates that conduction flux is higher than advection flux when flow rates are less than 1 L/min and when temperature propagation is less than approximately 1.5 cm into the aquifer ($r_e = 0.09$ m, $r_i = 0.075$ m). Conversely, if water flow is greater than 1 L/min in the borehole, with increasing pumping duration (i.e., $x > 1.5$ cm), advection fluxes become higher than conduction.

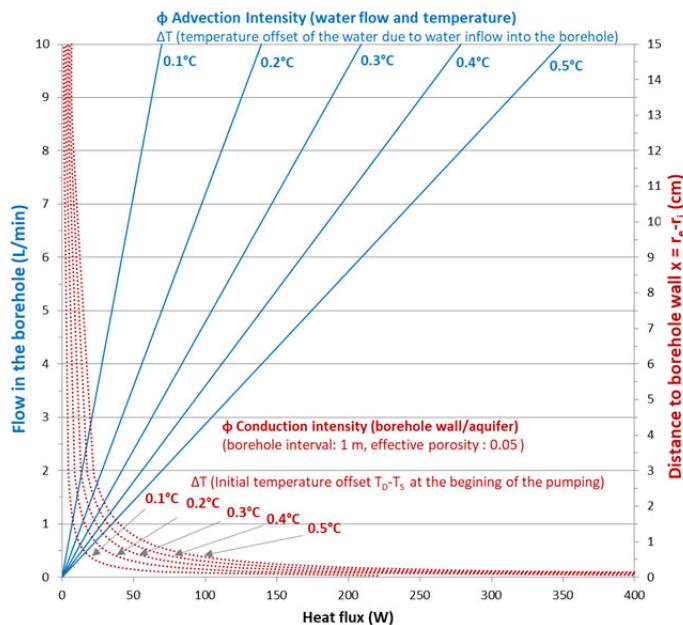


Figure 2.6 : Comparison of advection and conduction heat fluxes at the borehole scale. Φ advection = $f(\text{total flow rate, temperature offset due to groundwater inflow})$, Φ conduction = $f(\text{distance of radial temperature propagation into the aquifer, } T_D - T_S \text{ offset})$

4.1.2 Potential of a high-resolution temperature probe to be used as a flowmeter

A relevant question is whether passive temperature measurements could directly reflect the water flow distribution in the wellbore. This question is investigated in this section by modeling depth-temperature dynamic profiles with the heat budget, with $T_i(z)$, $q_i(z)$, and r_e as variables. The fitting procedure consists of minimizing the root mean square error (RMSE) of T_D (**Equation 2.6**), where $T_{D\text{ reference}}(z)$ represents the observed temperature-depth profiles, $T_{D\text{ model}}(z)$ represents the modeled temperature-depth profiles, D_{total} is the total depth of the wellbore, and dz is the vertical resolution of the heat budget. D_{total}/dz represents the number of $T_{D\text{ model}}(z)$ calculated with the heat budget.

$$RMSE T_D = \sqrt{\frac{\sum(T_{D\text{model}}(z) - T_{D\text{reference}}(z))^2}{\frac{D_{\text{total}}}{dz}}} \quad (2.6)$$

In this example, the fitting procedure has 13 variables (6 $T_i(z)$, 6 $q_i(z)$, and r_e) and is constrained by 100 $T_D(z)$ observations (well depth of 50 m, with a vertical resolution of $dz = 0.5$ m). To avoid divergence of the iterative procedure, $T_i(z)$ variables were initialized and constrained for each water inflow. Inflow temperatures $T_i(z)$ were initialized at $T_{D\text{ reference}}(z)$ ($T_{i\text{ initial}}$ in **Figure 2.7**) and constrained within the range of $T_i(z) = T_{D\text{ reference}}(z) \pm \Delta T$ ($T_{i\text{ range}}$ in **Figure 2.7**). The temperature range is logically anchored depending on the cooling or warming of the T_D profile resulting from inflows. For the situation wherein the water column is cooling (because of cold inflow), the range is set to $T_{D\text{ reference}}(z) - \Delta T < T_{i\text{ range}} < T_{D\text{ reference}}(z)$, and *vice versa* for a warming situation ($T_{D\text{ reference}}(z) < T_{i\text{ range}} < T_{D\text{ reference}}(z) + \Delta T$). In this example, ΔT was arbitrarily set to 0.4°C , but a large possible range over which $T_i(z)$ may vary is permitted before the fitting procedure converges. Water inflow intensities were all initialized at very low flows ($q_i(z) = 0.0001 \text{ L/min}$) and constrained so that the total modeled discharge must be equal to the total reference discharge. Finally, conduction

in the borehole is initialized as being intense ($r_e = 0.076$ m) and constrained within the possible range (i.e., $r_e > r_i$).

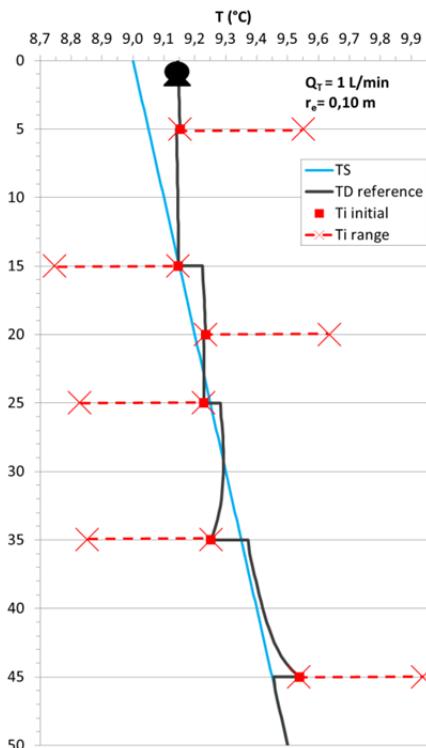


Figure 2.7 : Example of $T_i(z)$ initialisation prior to $TD(z)$ modeling with the heat budget

For modeling, two reference T_D reference profiles were generated using the conceptual model (as described at the beginning of section 4.1), with conduction set to $r_e = 0.10$ m and total pumping rates of 1 L/min (**Figure 2.8**) and 20 L/min (**Figure 2.9**).

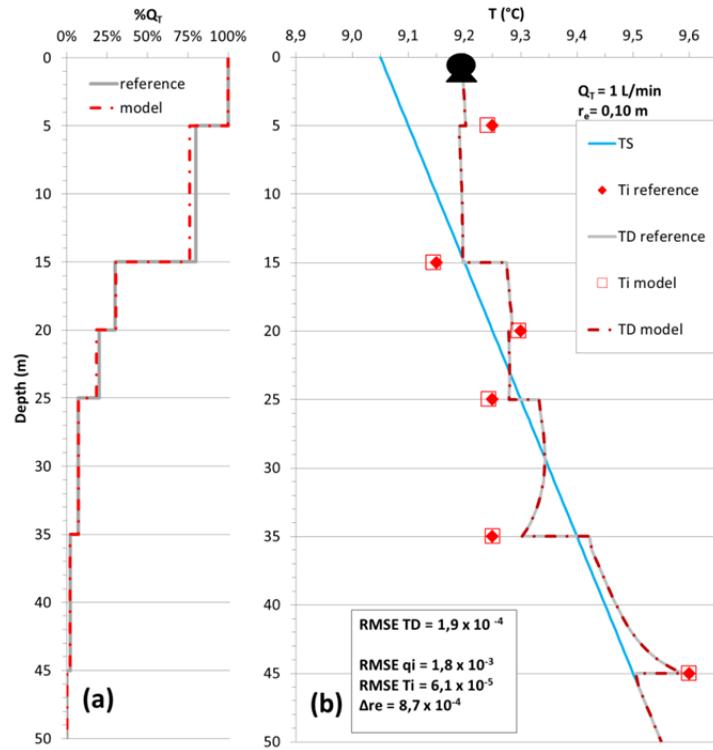


Figure 2.8 : Results of TD(z) modeling with the heat budget at QT=1 L/min. (a) Flow-depth distribution; (b) dynamic temperature profiles (TD(z)) and temperatures of inflows (Ti(z))

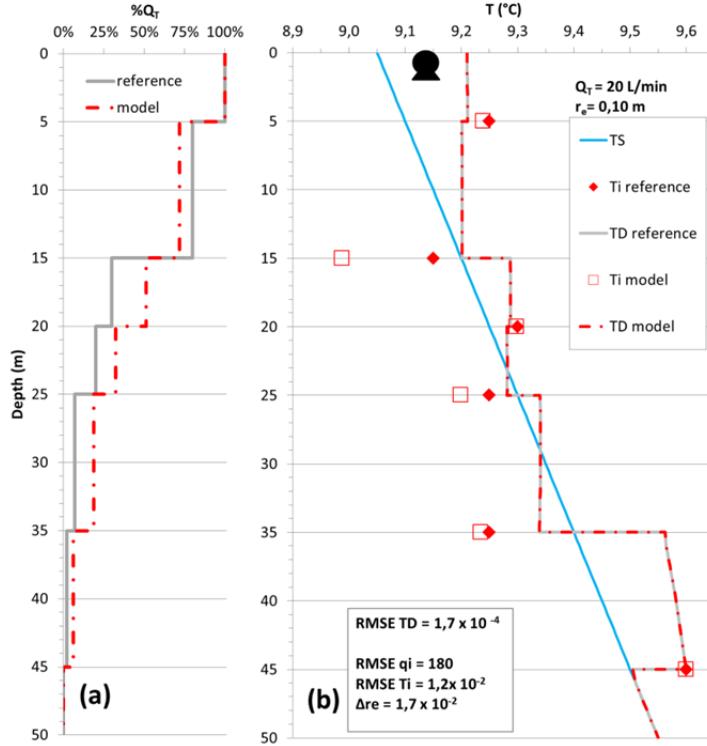


Figure 2.9 : Results of TD(z) modeling with the heat budget at QT=20 L/min. (a) Flow-depth distribution; (b) dynamic temperature profiles (TD(z)) and temperatures of inflows (Ti(z))

The fitting procedure very efficiently models T_D(z) in both cases. As shown in **Figure 2.8** and **Figure 2.9**, T_D reference and T_D model appear graphically superimposed. Numerically, some discrepancies remain, but the RMSE remains low in both cases (RMSE T_D ≈ 10⁻⁴). The fitting procedure adequately models the whole system at a low discharge rate (Q_T= 1 L/min, **Figure 2.8**), associated with low error for each variable; T_i(z) (RMSE T_i = 1.2x10⁻⁵°C), q_i(z) (RMSE q_i = 1.8x10⁻³ L/min), and $\Delta r_e = 8.7 \times 10^{-4}$ m ($\Delta r_e = r_{e\text{ model}} - r_{e\text{ reference}}$). At a higher discharge rate (Q_T = 20 L/min, **Figure 2.9**), errors for modeled variables increase, with RMSE T_i = 1.2x10⁻²°C, RMSE q_i = 180 L/min, and $\Delta r_e = 1.7 \times 10^{-2}$ m. The ability of the model to converge to accurate variable values depends on the degree of curving for the T_D(z) profiles. The more the profile is curved along the entire profile due to the dominant influence of conduction over advection, the easier the fitting procedure can converge within a narrow, accurate range for the variables T_i, q_i, and r_e. Even a very slight influence of

conduction would theoretically induce a slight curvature in $T_D(z)$, so that the model can theoretically always be solved. However, with the diminishing influence of conduction, the preciseness (and complexity) of the fitting procedure has to proportionally increase to still obtain the narrowest and most accurate range of solutions for the variables. At the other extreme, if there is no conduction at all, the model can still perfectly converge to fit the $T_D(z)$ profiles, but an infinity of solutions is possible for each pair of $T_i(z)$ and $q_i(z)$ associated with the inflows. This is because, without conduction, any variation in $T_i(z)$ could be numerically compensated by $q(z)$ to give the same perfectly square $T_D(z)$ profiles that are observed after mixing.

4.2 Field applications

4.2.1 Qualitative interpretation of field depth-temperature profiles

PO-2, PO-5, and PO-7 temperature logs under static conditions (**Figure 2.10(a)**) were taken on the same day and represent typical static temperature profiles not influenced by ambient flows. Heat pulse flowmeter tests (Terraplus, 2014a) were performed for well PO-7 under static conditions, and did not allow the detection of water circulation in the borehole (the minimum velocity resolution of the device is 0.113 L/min). As PO-2, PO-5, and PO-7 temperature profiles have the same symmetrical curving, it is inferred that ambient flows are so low, if there are any at all, that they do not significantly impact the temperature profiles of these three wells. The corresponding T_s profiles of the three wells differ by 0.1-0.5°C, which may be explained by different local recharge rates, the nature and thickness of the unconsolidated sediments, or differences in land cover. These discrepancies are not considered further in this work, which focuses rather on borehole logging to characterize active hydraulic fractures. T_s profiles for wells PO-2, PO-5, and PO-7 are therefore considered to be representative of typical T_A profiles of southern Québec: 1) the seasonal variation in soil temperature (from the atmospheric signal) propagates from the land surface down to 15 m depth. The minimum temperature, near 5 m depth,

corresponds to the cold temperature signal of winter 2015-2016, which has propagated into the subsurface; 2) from 15 m to 50-60 m, temperatures decrease with depth. This inverse gradient can be explained by the climatic warming in Canada over the last 150-200 years (Gosselin & Mareschal, 2003); and 3) deeper than 50-60 m, which corresponds to the transition zone to the normal geothermal gradient, temperatures increase with depth.

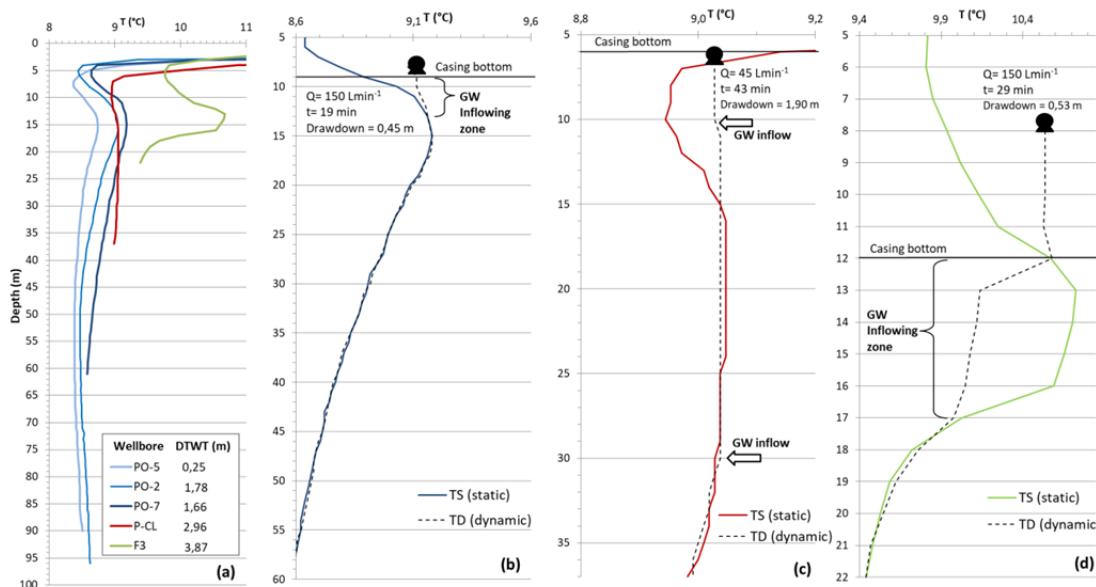


Figure 2.10 : Temperature profiles in June 2016 for all wells under static conditions (a), and under static and dynamic conditions for wells PO-7 (b), P-Cl (c), and F3 (d)

Static and dynamic temperature logs of the three pumped wells are superimposed in **Figure 2.10**. The PO-7 temperature log under dynamic conditions (**Figure 2.10(b)**) was taken after 19 min of pumping with a discharge rate of 150 L/min. Static and dynamic temperature profiles differ near the surface, down to 13 m depth, and are nearly identical below this depth (i.e., $T_S=T_D$). This indicates that the productivity of this 52 m screened well essentially originates from an only 4 m-long productive interval in the upper part of the well.

For well P-Cl, the static temperature log (**Figure 2.10(a)**) already suggests the presence of ambient flow between 15 and 30 m, because the constant temperature

within this interval differs from the expected curved T_A profile. Although the direction and intensity of ambient flows could not be determined at this stage, the T_S profile already reveals that an ambient flow of water at 9.04°C is circulating between one or more fractured intervals located in the 15-30 m depth range. The P-Cl dynamic T_D profile, taken after 40 min of pumping with a discharge rate of 45 L/min, confirms the information revealed by the T_S profile, but also indicates that the main productive zone must be located near 30 m depth, because its inflow temperature (9.04°C) completely resets the temperature of the water circulating upward along the entire length of the borehole. Other small water inflows from 10 m to 30 m depth may be possible, but as no temperature variation is distinguishable in this interval, the main inflow must be located at approximately 30 m depth.

The T_S profile for well F3 (**Figure 2.10(d)**) also suggests the presence of ambient flows, because between 12 and 17 m the profile is over-curved compared to what would be expected from the influence of T_A alone. This suggests that more than two active fracture zones are likely located within the interval between 12 and 17 m, thus creating a complicated temperature pattern. Ambient flows between these active fractures create this anomalous temperature interval. In F3, the T_D profile (**Figure 2.10(d)**) was taken after 29 min of pumping with a discharge rate of 150 L/min. As T_S and T_D coincide below 17 m, no active fracture is expected to be present below this depth. Joint analysis of passive and dynamic logs qualitatively reveals the following: 1) the first active fracture zone is located between 16 and 17 m depth and initiates water flow into the borehole, with a bottom inflow temperature of 10.00°C ; 2) between 16 and 13 m depth, one single qualitative interpretation is not possible. The temperature gradient retains the same orientation and intensity between each measurement. This could either indicate that warmer water is inflowing ($T_i > T_D$), or that temperature re-equilibration by conduction occurs between the borehole and a warmer aquifer neighboring the borehole ($T_S > T_D$), or a combination of these two scenarios. And, finally, 3) between 12 and 13 m, the slope of the dynamic log

increases strongly, which can only be explained by warmer water inflow ($T_i > T_D$), which increases substantially.

4.2.2 Quantitative borehole investigation: temperature logging, flow metering, and televiewing

Flowmeter logging in boreholes PO-7 and F3 was performed with pumping rates as high as possible, depending on the productivity of the given well, in order to maximize water velocities in the boreholes. Different pumping rates were tested on each of the wells (results not shown in this article), with no measurable variation in well inflow distribution found to result with depth. The PO-7 televiewing results are presented in **Figure 2.11(a)** and **(b)**, and the flowmeter log is presented in **Figure 2.11(c)**. The flowmeter log revealed that 10% of total inflows originate from a low-fractured interval, located between 12 and 13 m. A discrete fracture is visible at 10.5 m and alone accounts for 74% of the total productivity of the well. The remaining 16% of the inflow originates from a joint or fracture located at 9.6 m depth, and from other small fractures located above this and down to the base of the casing. For well F3 (televiewing in **Figure 2.12(a)** and **(b)**; flowmeter log in **Figure 2.12(c)**), small conduits are identifiable through televiewing at 16.5 m depth. Flowmeter measurements show that these conduits account for approximately 7% of the total well productivity. No other water inflow is identifiable through the flowmeter results until above 14 m depth. Televiewing also revealed information about the thickness of strongly fractured banks that alternate with unfractured dolomite intervals. Based on flowmeter results where flow increases, fractured zones from 14 to 13.7 m, 13.4 to 12.8 m, and 12.6 to 12.3 m account for approximately 3, 31, and 46% of the total transmissivity of well F3 respectively. The remaining 13% of the transmissivity likely originates from fractures located near the base of the casing. For wells PO-7 and F3, the distribution of hydraulic conductivity for each productive fractured interval are given in **Figure 2.11(d)** and **Figure 2.12(d)** respectively, and

have been calculated using **Equation 2.1**. It should be noted that the spinner flowmeter provided highly valuable hydrogeological information here, with a high vertical resolution (5 cm in this work), and were obtained relatively quickly (i.e., less than half an hour to log a 60 m-deep well).

Temperature logs under static and dynamic conditions are presented in **Figure 2.11(e)** and **Figure 2.12(e)** for well PO-7 and F3, with close-ups of depth intervals where water inflow occurs and influences $T_D(z)$ profiles. The full-depth scale temperature logs are presented in **Figure 2.10**. The heat budget (**Equation 2.5**) was partially used in this applied case, because the measurement resolution ($dz = 1\text{m}$) for the available data is insufficient to perform the full fitting procedure presented in section 4.1.2. Also, at the time of measurement, high discharge rates were set to maximize the sensitivity of the flowmeter, while the thermal fitting procedure would instead require low discharge rates to favor conduction (section 4.1.2). Nevertheless, the heat budget was applied for wellbore PO-7, to calculate mean inflow temperatures (**Figure 2.11(e)**), with flow distribution intervals known from flow metering. Given high flow rates and pumping times, conduction was set to low intensity ($r_e = 1\text{ m}$). For PO-7, calculated $T_i(z)$ were all warmer than $T_S(z)$ at a 13 m depth, indicating that pumping-induced drainage might all originate from very surficial and warmer horizons, above 5 m depth ($T_S(z)$ profile in **Figure 2.10(a)**), influenced by the previous summer's signal propagation within the subsurface. For well F3, $T_i(z)$ can be calculated for very high inflow intervals (12 to 13 m, 13 to 14 m, and 16 to 17 m), with respective $q_i(z)$ measured with the flowmeter (model 1 in **Figure 2.12(e)**). For two other intervals (14 to 15 m and 15 to 16 m), flow metering did not reveal any increase in flow, resulting in the non-detection of inflows within these intervals. However, $T_D(z)$ profiles between 14 and 16 m show significant temperature increases. As total advection flow in the water column is already high above 16 m depth (10.5 L/min), increasing temperature between 16 and 14 m cannot be explained by conduction re-equilibration towards $T_S(z)$. Examples are given in

Figure 2.12(e) (model 1), representing modeled $T_D(z)$ for various conduction intensities, but with no inflows between 14 and 16 m depth. In this case, $T_D(z)$ modeled between 14 and 16 m could not fit the observed $T_D(z)$ at any conduction intensity without introducing inflows at this interval. The heat budget fitting procedure was then applied to all intervals, including inflows to the 14 to 15 m and 15 to 16 m intervals (model 2 in **Figure 2.12(e)**). Conduction intensity in the latter model (2) was arbitrarily set to $r_e = 1$ m, a value that lowers the influence of conduction, given that the pumping time of the experiment is 29 min. With model 2 (**Figure 2.12(e)**), warm inflows, $T_i(14-15\text{ m}) = 10.70^\circ\text{C}$ and $T_i(16-17\text{ m}) = 10.51^\circ\text{C}$, were estimated, corresponding with $q(14-15\text{ m}) = 0.69 \text{ L/min}$ and $q(15-16\text{ m}) = 0.75 \text{ L/min}$. These calculated values are not very accurate, because the fitting procedure is poorly constrained, with a limited temperature observation (resolution of only $dz = 1$ m). In this case, warmer $T_i(z)$ could lead to even lower $q_i(z)$ while still perfectly fitting $T_D(z)$. Nevertheless, the most relevant information here is that the combination of temperature measurements (even at a resolution of 0.01°C) and heat budget analysis allows the occurrence of very low inflows to be inferred among the much higher productive intervals characterizing wellbore F3. Discussion linking the $T_i(z)$ values of well F3 to the depth at which groundwater is drained during pumping is provided in the following section (4.2.3) through more detailed experiments and analysis.

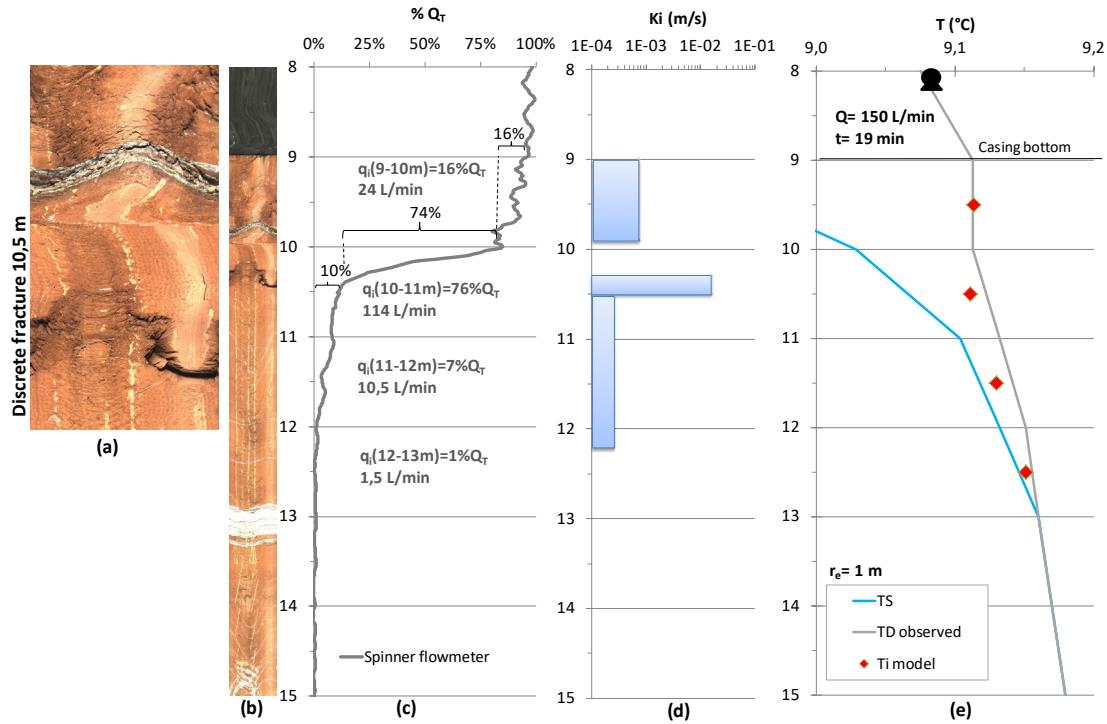


Figure 2.11 : Borehole PO-7 logging results: (a) televiwing close-up of the most productive fracture, (b) televiwing log, (c) flow distribution obtained by flowmeter, (d) vertical distribution of hydraulic conductivity obtained by flowmeter, and (e) temperature profiles under static and dynamic conditions and temperature of groundwater inflows calculated with the heat budget

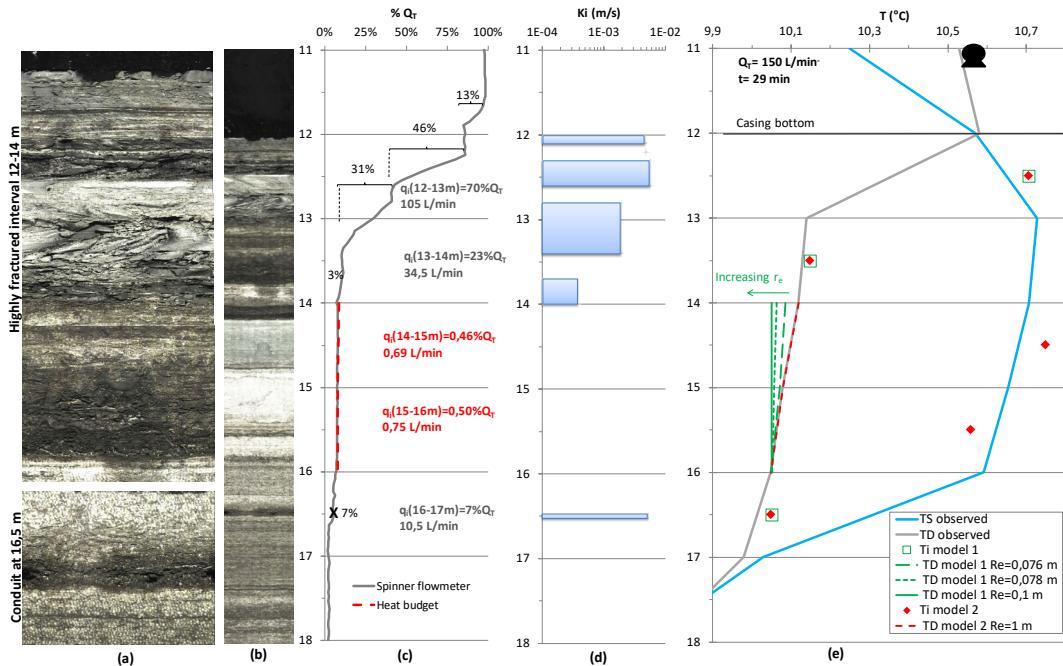


Figure 2.12 : Borehole F3 logging results: (a) televiewing close-up of productive intervals, (b) televiewing log, (c) flow distribution obtained by flowmeter and flow calculated with the heat budget between 14 and 16 m depth, (d) vertical distribution of hydraulic conductivity obtained by flowmeter, and (e) temperature profiles under static and dynamic conditions and temperature of groundwater inflows calculated with the heat budget

4.2.3 Inference of groundwater origin from transient temperature logging and heat budget application

Two temperature logs were obtained for well F3, in June and November 2016. In **Figure 2.13(a)**, T_s measured in June 2016 showed a colder water interval from 5 to 11 m depth (influenced by cold air temperature at the ground surface for winter 2015-2016), followed by a warmer zone from 11 to 17 m (influenced by warm air temperature at the ground surface for summer 2015). T_s measured in November 2016 showed the influence of summer 2016 from the top of the water table until 12 to 13 m depth, and likely a smoothed downward propagation of the summer 2015 signal below 17 m. **Figure 2.13(b)** and **(c)** present T_s and T_D for June and November 2016 respectively, along with T_i for each pumping time and discharge rate. T_i values were calculated using the heat budget at the borehole scale (**Equation 2.5**) for the most

productive intervals identified by flow metering (section 4.2.2) to be 70, 23, and 7% of the total transmissivity of well F3 for the 12 to 13 m, 13 to 14 m, and 16 to 17 m depth intervals respectively.

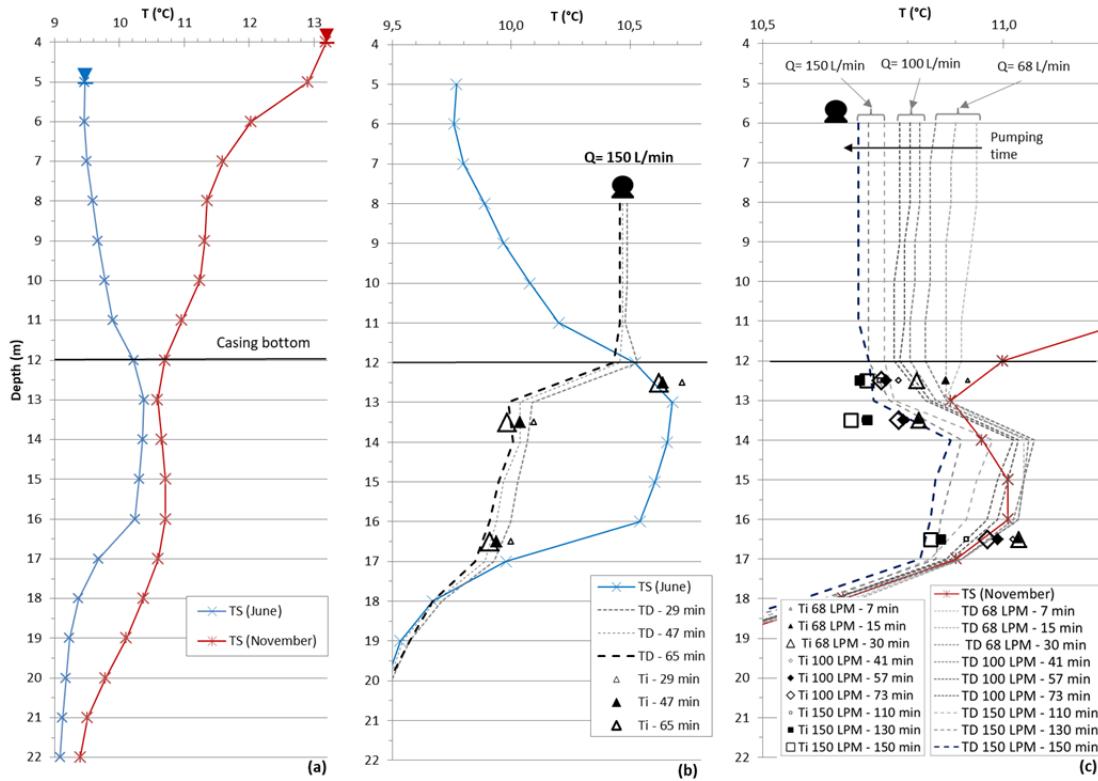


Figure 2.13 : Temperature profiles in well F3: static conditions for June and November 2016 (a); static and dynamic conditions with several discharge rates and pumping durations for June (b) and November (c). T_i are the mean inflow temperatures calculated using the borehole-scale heat budget

For both June and November logs, T_i profiles already differ from T_s shortly after the beginning of pumping. These discrepancies suggest that soon after pumping began, T_i patterns are influenced by inflows originating from active fracture networks in equilibrium with T_A . This also indicates that ambient flows (between 12 and 17 m depth) imposing the T_s profiles around the borehole mask the T_A profile. T_i temperatures then appear to be very rapidly controlled by the temperatures within drained horizons, the temperatures of which depend on the seasonal T_A signal. In June (Figure 2.13(b)), T_i is warmest in the 12 to 13 m interval, and must drain the

warmer horizon influenced by summer 2015 (13 to 16 m depth), because temperatures for over- and underlying intervals are colder. T_i for the two lower inflow intervals (13 to 14 and 16 to 17 m depth) are colder, and, with respect to the T_s profiles for June, could drain colder horizons either above 11 m depth or below 17 m depth. However, analysis together with the November profiles (**Figure 2.13(c)**) shows that T_i from 13 to 14 and 16 to 17 m depth must drain cold water originating from below 17 m, because intervals above 11 m depth are warmer and cannot explain such cold temperatures. Although the interpretation of temperature inflow patterns in **Figure 2.13(b)** and **(c)** remains difficult, one key piece of information provided is that all T_i values become cooler as pumping duration increases, independently of the season. This suggests that cold water originates from horizons deeper than 17 m depth.

The evolution of inflow temperatures, $T_i(z)$, in well F3 during pumping in November is presented in **Figure 2.14**. The temperature range from the beginning to the end of pumping is comparable for every depth interval. This common cooling of all inflows with time suggests that all inflows drain stratified fractured horizons, and have comparable orientations. It can be noted that even after 150 min of pumping at high discharge rates (150 L/min at the final stage), none of the inflow temperatures reach a plateau. This means that temperature equilibration by conduction between flowing groundwater and the aquifer has not yet reached a thermal steady state along the flow path from the origin of aquifer drainage to the wellbore. Even if it is not quantified here, this suggests rather long conduits or channelized flow paths. In such a case, the re-equilibration of the water temperature by heat conduction would take longer, because surface exchange with the aquifer is low. Conversely, thermal conduction equilibration occurring in a highly homogeneously fractured aquifer (or even a porous medium) would reach a steady state much faster, as the water/aquifer surface exchange is much higher. Compared to the two other fractured intervals, the increasing cooling rate of the lower interval (16 to 17 m depth) appears to coincide

slightly better with the increase in pumping rate. Such a proportional thermal response may also indicate that the bottom inflow (16.5 m depth) would be the most channelized of all inflows, responding faster to advection changes, because of the lesser influence of conduction.

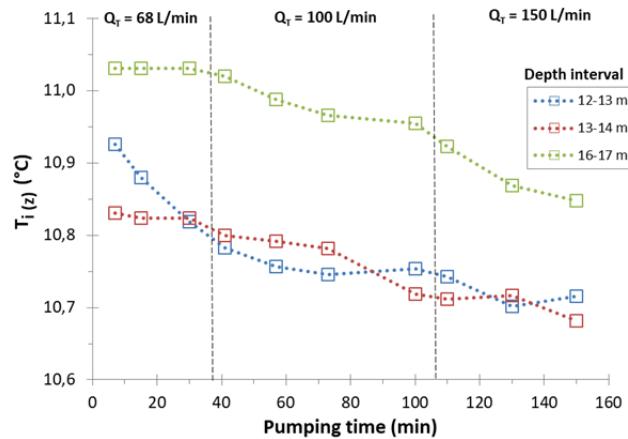


Figure 2.14 : Evolution of main inflow temperatures ($T_i(z)$) in well F3 during November 2016 pumping

5. Discussion

5.1 Qualitative interpretation of depth-temperature profiles

Utility of temperature profiles to infer the occurrence and position of water inflows into the wellbore:

Under static conditions, temperature profiles are rather complex close to the surface. In the typical Quebec context shown in **Figure 2.10(a)**, T_A profiles are characterised by two inflection points, and temperature in the top 15 m varies quite substantially and rapidly with the seasons. However, ambient water flows into the borehole may be detected using passive temperature logging by the interruption of the smoothed shape of these profiles. Temperature logs for the three wells studied here under static conditions allowed the presence or absence of ambient water circulation in the borehole to be inferred, and, if detected (for wells P-Cl and F3), allowed the intervals

where active fractures are present to be rapidly determined. In general, if two or more hydraulically active fractures intercept a borehole at different depths, even a small hydraulic gradient between them would induce ambient flows into the borehole. As even small ambient flows are detectable by anomalous temperatures, logging under static conditions is a very efficient technique with which to identify productive fractured intervals in boreholes. Even if fractured zones are only identified qualitatively with static temperature logs, this remains very efficient, because the information on productive intervals could only otherwise be obtained by using more costly or sophisticated measurements (e.g., flow metering, packer testing, tracers).

Under pumping conditions, temperature logging allows information obtained under static conditions to be either reinforced or clarified. Dynamic temperature profiling presents a portrait of water inflow solicited from hydraulically active fractures by pumping. In general, as shown theoretically in **Figure 2.5** and in applied cases in **Figure 2.10**, the position of water inflows due to pumping should be easily identifiable in a first reading of high-resolution temperature profiles. However, if the temperature of a water inflow is very similar to the temperature of water flowing in the wellbore, the occurrence of the inflow cannot easily be detected by a single temperature log, even if the inflow intensity is high. Nevertheless, even a slight temperature shift would still be detectable through the use of high-resolution temperature probes ($0.001\text{ }^{\circ}\text{C}$). Such a high sensitivity may be further enhanced with the implementation of pumping procedures that favor heat conduction (i.e. low total discharge, temperature logging from the beginning of pumping). Theoretical examples of this are given in **Figure 2.5** for inflows at 5 and 20 m depths, and applied examples for well F3 are given in **Figure 2.12**, where interpretation of T_D profiles between 14 and 16 m suggests the occurrence of very low inflows, which are not detectable by flow metering.

Utility of temperature logging to reveal the occurrence of low flows in the wellbore:

High-resolution temperature profiling appears to be extremely sensitive and to reveal very low groundwater inflows into boreholes. Even low pumping flow rates present a great advection potential, such that even a slight change in inflow temperature with pumping time would induce a detectable variation in the slope of the temperature profile, thus making low rates of inflow detectable. Such sensitive detection could even be applied to the low flows associated with the lowest productivity zone in a well during pumping (theoretical example in **Figure 2.5** and applied examples in **Figures 2.10, 2.11, and 2.12**). However, in such cases, the detection of low inflows is enhanced within intervals of the borehole where the total flow of water remains low. If the pump is placed at the top of the borehole, the location of the lowermost active fracture could be more clearly defined, because it is located at the beginning of the divergence between static and dynamic temperature logs. However, the position of the pump can be adapted to allow low-flow detection for different inflow distributions with the depth. If the pump is placed at the top of the well, small inflows located in the lower part of the borehole become much harder to detect if high inflow is present higher in the borehole. This issue could be addressed by performing two pumping tests, one with the pump placed at the bottom of the borehole and one with the pump placed at the top of the borehole. As mentioned in the previous paragraph, low flow, ultimately associated with only a slight T_D shift, should become visible even at low pumping rates by using a temperature sensor that has a high enough resolution, or by adapting pumping conditions so as to reveal them. The high sensitivity of temperature to low flows is of particular interest to reveal ambient (very low) flows when they occur in wells (i.e., **Figure 2.10(c) and (d)**). Ambient flows are usually not easily detectable without sophisticated instrumentation and delicate device operation, for instance in the case of heat pulse flow meters.

Interpretability of temperature profiles against water flow distributions in the wellbore:

Inferring flow distribution from temperature profiles is not straightforward. Processes that shape temperature profiles are complex, and temperature profiles will therefore not directly (graphically) reflect the water flow distribution in the wellbore. In the context of fractured aquifers, fractures can be oriented in a complex manner, so that the temperature of water discharging into the borehole can be quite randomly distributed with depth. None of the theoretical (**Figure 2.5**) or applied (**Figures 2.10, 2.11 and 2.12**) examples allow the water flow distribution in the wellbore to be directly inferred just from a simple reading of passive temperature logs. Temperature profiles do not mimic the water flow distribution in the wellbore, because implied heat fluxes are defined by both heat advection and conduction fluxes. Even when heat advection dominates over heat conduction ($\phi_{\text{adv.}} >> \phi_{\text{cond.}}$), heat advection fluxes rely on both flow intensity and the associated temperature (**Equation 2.3**), so that the resulting temperature profiles will not directly reflect the water flow distribution in the wellbore. Therefore, without using a heat budget, the interpretation of temperature profiles does not allow inflow intensities into the wellbore to be quantified.

Inferring the temperature range of water flowing into the wellbore:

As depth-temperature profile shifts depend on the temperature of inflows, the temperature range for each inflow could at least be estimated by visualizing the cooling (e.g., $T_i(z) < T_D(z)$) or the warming (e.g., $T_i(z) > T_D(z)$) of the water column where steps are seen in the profile. An example of a theoretical T_i range is given in **Figure 2.7**, which served to initiate $T_D(z)$ modeling in section 4.1.2. This logical interpretation provides a valid range in applied cases (**Figures 2.10, 2.11 and 2.12**), without performing a heat budget calculation.

5.2 Potential of and limitations to quantitative interpretation using the heat budget at the borehole scale

Numerical models are able to assess the thermal response of hydrogeological systems extremely well (M. V. Klepikova et al., 2014). However, these sophisticated models are generally very time consuming to generate. At the borehole scale, the use of an analytical heat budget may complement numerical modeling or could even represent a very good and fast alternative for different types of quantitative investigation, as discussed below.

Temperature probes to infer the origin of groundwater drained from the aquifer:

If a wellbore is logged for both passive high-resolution temperature and flow metering, the temperature of inflows can easily be calculated using the heat budget (section 3.3). The determination of the inflow temperatures during pumping provides precious information regarding the origin of the groundwater drained from the fractured aquifer. Inflow temperatures are controlled by heat conduction occurring between groundwater flowing along flows paths, and the aquifer neighboring the water-channeling fractures. Except for large conduits, such as in karsts, flow velocities and fracture apertures are generally rather small, such that the large specific surface allows for large conductive fluxes. As water flow converges toward a well, advection fluxes become denser. This implies that, with increasing distance from the well, conductive heat flux between the aquifer and flowing water would eventually dominate over heat advection, while closer to the well, advection should eventually dominate over conduction. Therefore, with increasing distance from the well, the temperature of circulating water tends to be in equilibrium with T_A . With sufficient pumping duration and intensity, the temperature of water discharging into the borehole (T_i) will approach the temperature in the region of the aquifer where water enters the fractured network (T_A). If fractures are discrete conduits, the extent from their origin to the borehole may represent relatively long distances. However, if a

fracture network is distributed, with small apertures, its thermal advection and conduction behavior would be equivalent to a porous medium. In this latter case, it is inferred that T_i would be in equilibrium with T_A within few meters of the borehole.

Potential of temperature probes as integrated quantitative tools for wellbore investigation:

The simultaneous use of temperature measurements and heat budget fitting procedures may, in certain conditions, provide quantitative information about both the temperature and the intensity of inflows. Theoretical examples presented in this work (section 4.1.2) suggest that if highly curved depth-temperature dynamic profiles are obtained, a fitting procedure using the heat budget would be capable of quantifying both temperature and intensity of inflows. From a measurement perspective, the success of such a fitting procedure is dependent on the resolution the temperature probe ($^{\circ}\text{C}$) and on the vertical interval (dz) between temperature measurements. For fractured aquifers, the number and the distribution of temperature measurements must exceed those of the hydraulically active fractures. Only a few fractures would be adequately constrained by just a few temperature measurements, whereas if numerous fractures are involved, the number of temperature measurements required would consequently increase. From a field work perspective, such temperature modeling would more successfully characterize wellbores presenting discrete active fractures, or active fractured intervals that are at least clearly separated by non-productive intervals. In these contexts, low discharge pumping rates should be preferred over high rates, in order to favor curved depth-temperature profiles. It is, however, assumed that in many applied cases, the complexity of inflow distribution in wellbores would not allow a complete inflow characterization with only high-resolution temperature measurements and a heat budget. Nevertheless, even in such cases, the use of passive temperature logging and a heat budget would still be highly

complementary to flow metering for characterizing very low inflows that would not otherwise be detected, or to calculate the temperature of inflows.

6. Conclusions

A difficult and often incompletely resolved task for hydrogeologists is to assess the origin and directions of groundwater flow paths in heterogeneous media. Far from being systematically used, some borehole logging techniques allow the distribution of aquifer hydraulic properties to be described with depth. High-resolution temperature logging has great potential to contribute to such assessments. In some cases, the temperature probe could act as a very sensitive flowmeter in fractured aquifers. Temperature logging is done very quickly, and temperature profiles efficiently identify productive sections in boreholes, so as to infer where they originate from within the aquifer. With measurements made under pumping conditions, and using some simple analytical heat budgets, temperature logs are among the rare techniques that permit inference on the origin of groundwater that is drained into the borehole. Furthermore, this information is collected without injecting and/or monitoring any anthropogenic tracer into the aquifer. Data acquired from temperature logging concurrent with other borehole logging techniques remains of great interest for improving the quality of hydrogeological applications. Such information would help to constrain flow and transport numerical models during both their construction and calibration, to then delineate wellhead protection areas, identify subsurface flow paths of contaminated sites, and inform other water management issues where vertical aquifer stratification needs to be considered, in terms either of hydrogeochemistry and groundwater age distribution.

2.5 Généralisation du bilan de chaleur dans les puits : l'outil « BHB Calculator » (article 2)

Résumé de l'article 2

Les relevés en températures haute résolution sont reconnus pour fournir des signaux précis et très efficaces pour cartographier les fractures hydrauliquement actives dans les puits. Ces sondages en température ont spécifiquement démontré leur capacité à caractériser les très faibles débits dans les puits de forage. Mais aussi nets qu'ils puissent être, ces derniers sont souvent difficiles à déchiffrer. L'objectif de ces travaux est de fournir et de tester l'outil "Borehole Heat Budget Calculator" (BHB Calculator), qui est mis en œuvre pour permettre l'analyse quantitative rapide et facile de profils en température selon la profondeur. Le calculateur convient à la plupart des configurations en pompage, car le bilan thermique est généralisé pour la modélisation des systèmes de flux multidirectionnels dans un même forage. L'outil est formaté pour permettre l'exploitation rapide des diagraphies de température dans les puits à longs intervalles crépinés. Les objectifs de la modélisation thermique sont d'améliorer la lisibilité des données profondeur-température, ainsi que de quantifier la distribution en intensités et en températures des zones productives en fonction de la profondeur. L'utilisation du bilan thermique permet d'estimer comment les contributions de flux de chaleur par conduction et par advection interviennent selon la profondeur dans les puits. Le calcul des températures des zones productives et de leur évolution en fonction de la durée de pompage est une condition préalable pour identifier la nature des propriétés de l'aquifère (c'est-à-dire les conduits, les fractures distribuées ou discrètes, les milieux poreux) ainsi que pour fournir des informations sur l'architecture des réseaux de fractures. L'efficacité et les limites du calculateur sont testées avec des mesures complémentaires de débit par microvélocimétrie et des relevés optiques dans des aquifères rocheux fracturés des Basses-Terres du Saint-Laurent, Québec (Canada).

Borehole Heat Budget Calculator : A new tool for the quick exploitation of high-resolution temperature profiles by hydrogeologists

Published in Journal of Water Resource and Protection (January 2019)

G. Meyzonnat¹, F. Barbecot¹, J.A. Corcho-Alvarado², J-M. Lauzon³, R. McCormack⁴, A. Tognelli⁵, H. Zeyen⁶, M. Alazard¹

¹Geotop-UQAM, Department of Earth and Atmospheric Sciences, Montréal, QC, Canada

²Spiez Laboratory, Federal Office for Civil Protection, Spiez, Switzerland

³TechnoRem Inc., Laval, QC, Canada

⁴Envir'Eau-Puits Inc., Lévis, QC, Canada

⁵CEA, DAM, DIF, F-91297 Arpajon, France

⁶Department of Earth Sciences, GEOPS Laboratory, Paris-Saclay University, Paris-Sud University, CNRS, Orsay, France

Email: meyzonnat.guillaume@uqam.ca

Abstract

Distributed temperature sensing is known to provide sharp signals which are very efficient for mapping hydraulically active fractures in wellbores. High-resolution temperature sensing has specifically demonstrated its capacity to characterize very low flows in wellbores. But as sharp as they can be, temperature profiles are often difficult to decipher. The aim of the present work is to provide and to test the “Borehole Heat Budget Calculator” (BHB Calculator), which is implemented as a fast and easy-to-use tool for the quantitative analysis of depth-temperature profiles. The Calculator is suitable for most pumping and draining configurations, as the heat budget is generalized for modeling multidirectional flow systems within the same wellbore. The formatted worksheet allows the quick exploitation of temperature logs,

and is applicable for the characterization of distributed fractures in long screened wellbores. Objectives of the heat modeling are to enhance the readability of complex depth-temperature data, as well as to quantify distribution of inflow intensities and temperatures with depth. The use of heat budget helps to clearly visualize how heat conduction and heat advection contributions are distributed along wellbores profiles. Calculations of inflow temperatures and their evolution through pumping duration is a prerequisite to infer about the nature of aquifer properties (i.e. conduits, distributed or discrete fractures, porous media), as well as to give insight information about the mapping of effective flow paths draining the aquifer. The efficiency and limitations of the BHB Calculator are being tested through high-resolution temperature logging, along with complementary flowmetering and televiewing logging in fractured aquifers located in the St-Lawrence Lowlands, Quebec, Canada.

Keywords

Fractured Bedrock Aquifer, High-Resolution Temperature Logging, Heat Budget Modeling, Long Screened Wellbores

1. Introduction

As an omnipresent parameter, temperature can be seen as a “free tracer” in the hydrosphere. Heat flux mechanisms are indeed showing similarities with solute transport (D. J. Irvine et al., 2015). The acquisition of temperature data has been amazingly useful since decades for numerous and various applications in Earth sciences, to generally infer about complex fluid-flow patterns within geological environments. For example, temperature sensing has been widely used in hydrology for characterizing groundwater-surface water exchange fluxes in streambeds, from temperature sensors (D.J. Irvine et al., 2015), or with optical fiber distributed temperature sensing (Hare et al., 2015) installed within the hyporheic zone. Shallow groundwater temperature profiles were also investigated to infer recharge conditions, climate and land use changes with use of high-resolution thermistors (Taniguchi et al.,

1999a; Gosselin & Mareschal, 2003; Anderson, 2005), level and temperature loggers (Colombani et al., 2016), thermal analytical modeling (Barret L. Kurylyk & Irvine, 2016), as well as thermal numerical modeling (Barret L Kurylyk et al., 2014). Depth-temperature logging has extensively been used in hydrogeology, especially for characterizing complex fracture architecture within bedrock aquifers. For that matter, passive measurement with high-resolution thermistors show great efficiency for mapping hydraulically active fracture distribution and interconnectivity (Pehme et al., 2010; M. V. Klepikova et al., 2011b), even by coupling temperature and flow metering surveys together (Le Borgne et al., 2006; Chatelier et al., 2011). Advances in groundwater flow characterization in a fractured bedrock aquifer appear to be particularly active using optical fiber DTS, efficiency of which is at its best with an “active temperature sensing” mode, involving the use of a heating device in wellbores (Read et al., 2014; Coleman et al., 2015; Bense et al., 2016). The development of techniques focusing on thermal logging is also remarkable in the field of geological CO₂ storage, where one of the largest concerns is the potential leak of the injected CO₂ from the storage reservoir (Y. Zhang et al., 2018). Most recent technical developments in this field include permanent monitoring systems installed in injection and monitoring wells, like optical fiber DTS, Fiber Bragg Grating sensors and coaxial cable temperature sensors (Li et al., 2016). Analytical models for inferring CO₂ leakage from temperature logging data have also been recently published (Mao et al., 2017).

Among other borehole logging techniques, depth temperature profiling presents the advantages of being a very robust and quick measurement collected with no costly equipment (Bense et al., 2016). High resolution temperature logging specifically appears to be extremely sensitive at very low flow (G. Meyzonnat et al., 2018), which makes this technique one of the most efficient to sharply characterize very low transmissivity fractures, hydraulic properties distribution in wellbore even at low pumping rate, or to identify very low flow (i.e. passive flows). However, depth-

temperature profiles might often appear complex and difficult to decipher for fluid-flow distribution in the wellbore. During pumping, the complexity of depth-temperature signals in wellbore is generally caused by the superimposition of conduction heat flux (i.e. between the aquifer and the borehole wall) with advection heat fluxes (i.e. related to the water inflows distribution). Furthermore, advection heat fluxes relate to the combination of both intensity and temperature of the inflows. This latter characteristic could mislead the direct reading of depth-temperature profiles because temperature shifts measured in the wellbore are then not proportional to the inflow rate. For example, a high inflow rate having quite the same temperature than the one in the water column will produce a small temperature shifts in it. Depth-temperature data are providing sharp and useful information, but the handling of temperature data might be difficult for quantitative interpretation without complementary measurements like flowmetering (Chatelier et al., 2011), or other sophisticated -but time consuming numerical modeling (M. V. Klepikova et al., 2014).

To deal with these limitations, the objective of this article is to provide a quantitative analytical software that allows the quick interpretation and exploitation of these usually complex distributed depth-temperature profiles in wellbores. Principles implemented in the software calculation rely on a heat budget applied at the scale of the borehole (G. Meyzonnat et al., 2018), which is dedicated to the quantification of water fluxes within long screened wellbores. The heat budget is very significantly enhanced in the present work as it is generalized to multidirectional flows in wellbores, allowing to model dynamic depth-temperature data with all possible pumping configurations and fracture distribution with depth. To demonstrate the efficiency of the software, modeling is performed with field data acquired with the best thermistor resolution available ($\pm 0,001^\circ\text{C}$), and supported by complementary flowmetering and televiwing surveys.

The following abbreviations are used throughout the text for brevity purpose: (STP)

static depth-temperature profile of the water column measured in the borehole under “static” condition, i.e. without pumping within the investigated wellbore; (**DTP**) dynamic depth-temperature profile of the water column measured during the pumping of the investigated wellbore.

2. Materials and methods

2.1. Study area

The study area is located in southern Quebec, within the geological region of the St. Lawrence Lowlands (**Figure 2.15**). The Ordovician geological units of the St. Lawrence Platform are of sedimentary origin and consist of thick sequences of sandstone of the Potsdam Group, dolomite of the Beekmantown Group, limestone of the Chazy, Black River, and Trenton Groups, Utica shales, and mudstones of the Queenston Group. These geological units are represented in **Figure 2.15** as a simplified version of the detailed mapping by Globensky (1987). The geomorphology of Quebec is marked by glaciation-deglaciation phases, with unconsolidated sediments of glacial and post-glacial origin overlying the fractured bedrock. The complex stratigraphy of the unconsolidated sediment largely controls the hydrogeological context of the underlying fractured bedrock aquifers. In such a glacial geomorphological context, the unconformity between Quaternary unconsolidated sediment and the bedrock is very sharp, and bedrock fracturing generally decreases strongly with depth over the first hundred meters (Carrier et al., 2013).

Borehole loggings were realized during summer 2018 in four long screened wellbores (**Figure 2.15**), all drilled in sedimentary bedrocks of the St. Lawrence Plateform, namely in sandstone (wellbore #1), dolomite (wellbores #2 and #4) and limestone (wellbore #3). These wells were accessed in partnership with hydrogeologist consultants who are performing groundwater resource investigation for municipal

water supply purpose, as well as access to observation wells of the Ministry of the Environment of Quebec (MDDELCC, 2018). Positions of the wellbores in **Figure 2.15** are not accurate for confidentiality reasons. All investigated wells have a diameter of 150 mm, are steel-cased within unconsolidated sediments, with casing anchored at least one meter into the bedrock. Boreholes are uncased below the steel tubing. Characteristics of the wellbores are depicted in the synthetic logging figures presented in section 3.1 including: lithology, unconsolidated sediments thickness, steel casing position and length, total borehole depth and depth to the water table (DTWT) measured in static conditions.

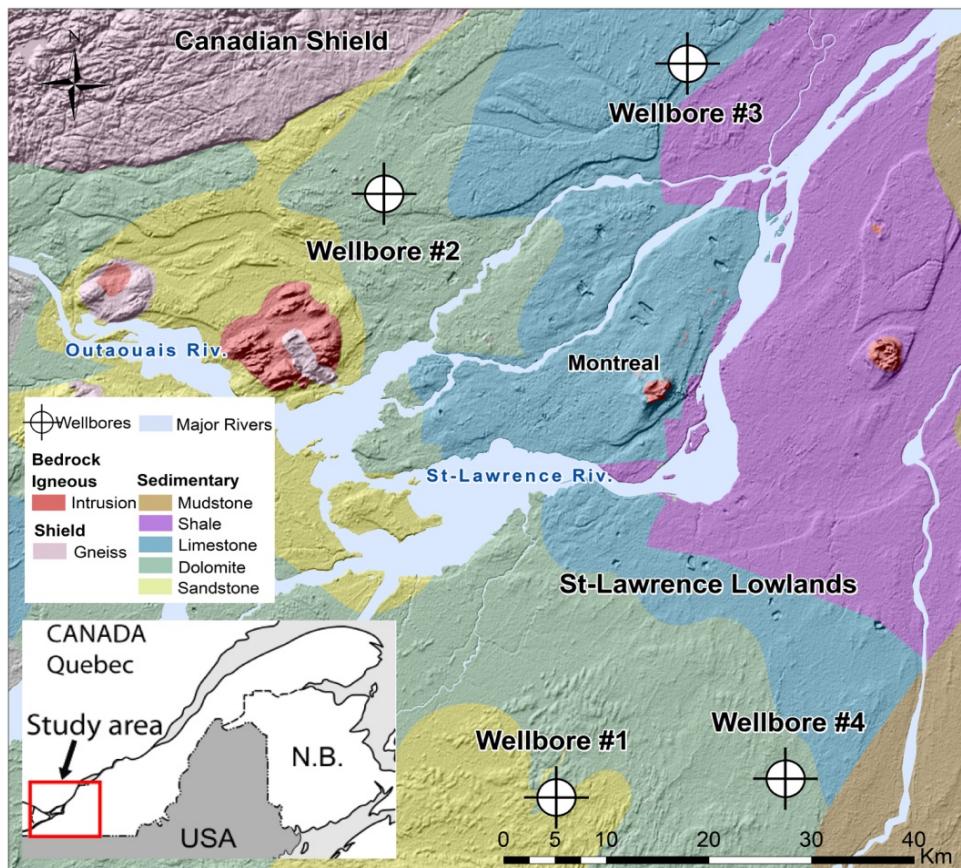


Figure 2.15 : Localization of boreholes investigated in 2017-2018 and geological map

2.2. Borehole logging materials

"Conventional" logging consisted of measuring water velocities using a spinner flowmeter (Terraplus, 2014b) and performing a camera surveys (Terraplus, 2014c) as a support to confirm the nature of active water inflows (**Figure 2.16**). Both instruments are trolled into the wellbore using variable size brass centerpieces, and operated with a winch controller connected to a PC (Terraplus, 2014d). The PC interface allows to know and to adjust the position of the instruments at depth with a resolution of 1 cm, and to control the descent or ascent velocities of the devices into the wellbore in a range of 0.1 to 5.5 m/min. Depth-temperature profiles were measured with a high-resolution thermistor (± 0.001 °C) logger equipped with a pressure sensor (Seabird-electronics, 2016).



Figure 2.16 : Camera snapshots (Saint-Lawrence Lowlands) of features providing groundwater inflows: (a) dissolution conduit-dolomite; (b) discrete fracture-red shale; (c) fractured interval-dolomite

The borehole logging surveys were conducted with the same sequence for each investigation, starting with the temperature logging in static conditions, followed by loggings with pumping, including spinner flow metering and transient DTPs measurements. Camera surveys were preferably operated after pumping to ensure the flush of turbid water. Maximum discharge rates were constrained to avoid well dewatering below the base of the steel-casing, allowing temperature, velocity and optical measurements within the whole uncased section of the wellbores. The spinner flowmeter was calibrated for each well under static conditions, with winch down and up speeds varying from 1 to 3 m/min. During pumping tests, the pumps were preferably placed at the top of the wellbore for keeping space for the moving of

logging devices through the whole uncased interval of the borehole. Water velocities were logged with the spinner flowmeter trolled downward for upwards flows and vice versa, in order to maximize the flowmeter sensitivity. Flowmeter measurements were performed at a resolution of 5 cm and with a winch down speed of 2 m/min. Raw, noisy signals measured with the flowmeter were smoothed using a moving average of 10 measurements. Flow velocities were converted into flow rates by dividing the measured flow velocities by the section area of the borehole. Total water discharged during pumping was measured with a volumetric counter placed at the hose outlet, and with bucket and chronometer, and compared with the total discharge measured with the flowmeter within the steel casing. Fluid velocity measurements in the borehole during pumping were taken when steady state was reached (i.e., with residual drawdown of less than 1 cm/20 min). Pumping tests performed at different discharge rates did not reveal any variation in the vertical distribution of water inflows into the borehole measurable by the flowmeter. The position of the thermistor at depth during loggings was calculated with the water level measured in static conditions or when water level was stabilized in the wellbore during pumping. When water table was not stabilized during transient temperature loggings, the depth of the thermistor was calculated with data from a pressure logger installed at fixed depth in the wellbore. Sampling frequencies for temperature and hydrostatic pressure were set to one measure per second for all loggings. The thermistor logger was fixed along the cable used for the other devices (spinner flowmeter and camera) allowing it to be centered within the wellbore. Different trolling velocities were tested with the thermistor in stagnant water to ensure that trolling velocities for temperature loggings were not too high, so that the thermistor had sufficient time to equilibrate with its environment when trolled up or down. In stagnant water, trolled velocities up to 4 m/min did not show re-equilibration issues.

2.3. Borehole Heat Budget Calculator

2.3.1. Heat budget principles

When a wellbore is pumped, DTP measured in the water column depends on advection and conduction heat fluxes that are in competition. Advection heat fluxes relate to the thermal capacity of groundwater that flows and mixes into the wellbore from hydraulically active fractures. Once pumping is initiated, the borehole wall temperature quickly shifts from the temperature of the geogradient to the temperature of the water flowing in the borehole. Due to this temperature anomaly, conductive heat flux propagates radially from the borehole wall to the surrounding aquifer. A detailed description of principles and heat flux equations involved at the scale of the borehole are given in Meyzonnat et al. (2018). These principles are implemented and generalized in the present development of the present Borehole Heat Budget Calculator (BHB Calculator). The heat budget can be performed in a section of the borehole delimited by a couple of temperature measurements with depth, as shown in **Figure 2.17**. The general expression of the heat budget provided in this previous work can be rearranged to **Equation 2.7**, which provides an explicit incremental expression to model DTPs.

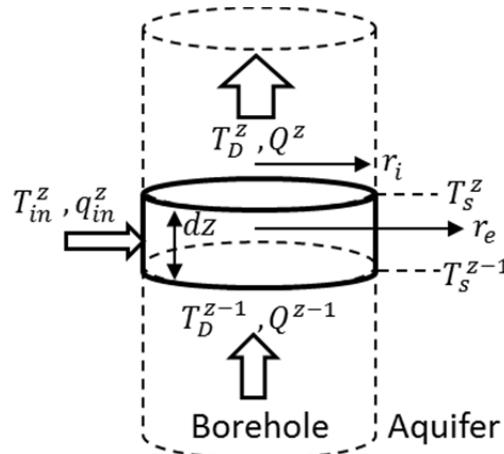


Figure 2.17 : Diagram of the heat budget in a section of borehole

$$T_D^z = \frac{q_{in}^z C T_{in}^z + Q^{z-1} C T_D^{z-1} + 2 dz \frac{\pi \lambda}{\ln(\frac{r_e}{r_i})} \left(\bar{T}_S^{(z;z-1)} - \frac{T_D^{z-1}}{2} \right)}{(q_{in}^z + Q^{z-1}) C + \frac{\pi \lambda}{\ln(\frac{r_e}{r_i})} dz} \quad (2.7)$$

With:

- dz : vertical distance between two temperature measurements in static conditions in the wellbore;
- $\bar{T}_S^{(z;z-1)}$ ($^{\circ}\text{C}$): temperature average of water in the wellbore under static conditions for depth interval ($z;z-1$);
- T_D^z ($^{\circ}\text{C}$): the temperature of water in the wellbore at depth under dynamic conditions;
- T_{in}^z ($^{\circ}\text{C}$): the temperature of groundwater inflowing into the wellbore from a fracture at given depth;
- q_{in}^z (m^3/s): the rate of groundwater inflowing into the wellbore from a fracture at given depth;
- Q^z (m^3/s): the water flow rate in the borehole at given depth;
- C ($\text{J m}^{-3} ^{\circ}\text{C}^{-1}$): specific volumetric thermal capacity of water;
- r_i (m): the radius of the well;
- r_e (m): the annular distance of propagation of the temperature anomaly due to pumping into the aquifer;
- λ ($\text{W m}^{-1} ^{\circ}\text{C}^{-1}$): the bulk thermal conductivity of the aquifer.

In **Equation 2.7**, the bulk aquifer thermal conductivity (λ) is calculated with $\lambda = \lambda_s^{(1-n)} \lambda_w^n$ (Barret L. Kurylyk & Irvine, 2016), with aquifer porosity (n), thermal conductivity of bedrock ($\lambda_s \text{ W m}^{-1} ^{\circ}\text{C}^{-1}$) and thermal conductivity of water ($\lambda_w \text{ W m}^{-1} ^{\circ}\text{C}^{-1}$). r_e (m) is the time-dependent radius of the heat conduction influence around the borehole. The annular distance of propagation ($x = r_e - r_i$) of the temperature anomaly ($T_D - T_S$) in the aquifer occurs as soon as with the beginning of pumping, and is increasing through pumping duration. Given the logarithmic expression for the

conduction (**Equation 2.7**), the intensity of conduction fades out with pumping duration (as r_e increases).

In practice, T_S^z are field data measured in static conditions, q_{in}^z , T_{in}^z , and r_e are variables of **Equation 2.7** allowing to model the DTSs measured during pumping. If the flow rates in the water column (Q^z) are measured with a flowmeter, water inflows from fractures (q_{in}^z) can be calculated, and the heat budget allows to calculate the evolution of the temperatures of water inflows (T_{in}^z) during pumping. Such modeling with only temperature logs can provide flow estimation under certain conditions: 1) for extremity flows, the temperature of the first water inflow is known ($T_{in}^z \approx T_S^z$) or when 2) flow rates of the water column (Q^z) remain low, so that the dynamic temperature profile provides a unique curvature as advection and conduction remain in competition (see section 2.3.4). For the second case, iterative processing of the heat balance theoretically allows to converge to a single solution for characterizing each inflowing water and to know their respective intensity (q_{in}^z) and temperature (T_{in}^z) (G. Meyzonnat et al., 2018).

2.3.2. Generalization of heat budget to any flow and pumping configuration

The modeling of DTPs with the heat budget is incremental and allows to calculate a dynamic temperature at given depth (T_D^z), from the previous (T_D^{z-1}) using a given direction of water flowing in the wellbore (**Equation 2.7**). **Figure 2.18(a)** suggests a configuration with upward flows only. This would be the most common configuration, as in practice it is more convenient to perform pumping tests with a pump placed at the top of the wellbore, so that the whole length of the uncased wellbore is free to be logged for temperature, optical viewing or flowmetering. In this case, heat budget modeling is performed in a context of unidirectional upward flow. However, there are other cases where flow in a wellbore could be oriented downwards, or be even multidirectional within the same well, as represented in **Figure 2.18(b) to (e)**.

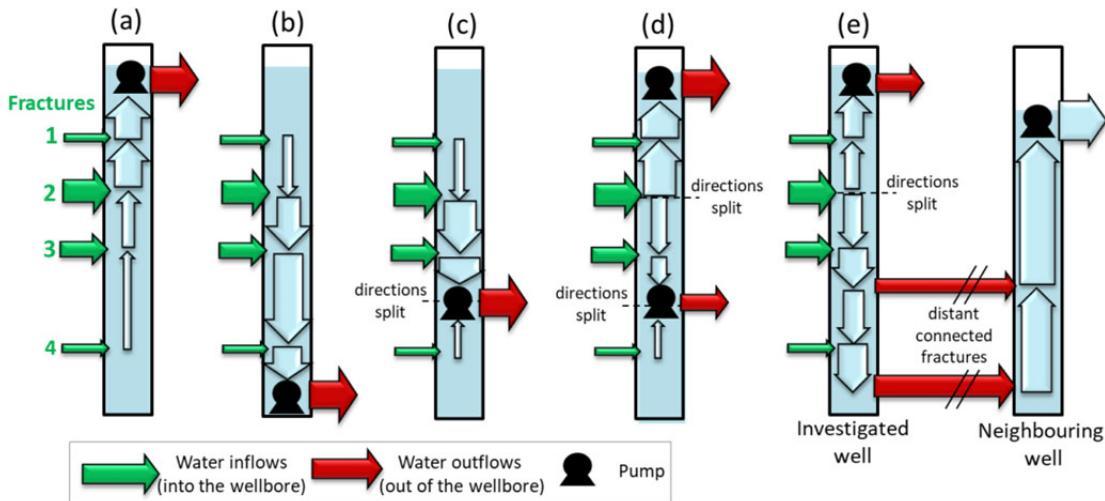


Figure 2.18 : Different flowing systems resulting from various pump placement in the wellbore: (a) pump placed at the top; (b) pump placed at the bottom; (c) pump placed at intermediate position; (d) several pump placed at different depths; (e) pumping in wellbore influenced by a neighbouring pumping

In **Figure 2.18(a)**, flows in the wellbore are all going upwards because the pump is placed at the top of the well. In this context, high-resolution temperature logging should clearly reveal the low inflow from fracture 4, but might not highlight very well the low inflow from fracture 1 because its contribution to the total flow in the upper part of the wellbore is minor. At the opposite, temperature logging in the context of **Figure 2.18(b)** (pump placed at the bottom for the same wellbore), should now clearly record the low inflow from fracture 1 but not reveal very well the inflow from fracture 4. In order to reveal both of these low inflows with the same logging, pump could be even placed in an intermediate position (**Figure 2.18(c)**), avoiding both of low flows from fractures 1 or 4 to be masked by higher cumulating flows. Some other configuration might also include several pumps placed at different depths of the wellbore (**Figure 2.18(d)**). Such a pumping configuration could be motivated by specific pumping and water treatment operations or because of specific water sampling objectives (i.e. sampling groundwater from fracture 2 only). Several outflows drained out of the investigated wellbore could also be effective through fractures interconnected with a neighbouring pumped well (**Figure 2.18(e)**).

The BHB Calculator is implemented in a workbook. In order to generalize the heat budget equation (**Equation 2.7**) towards any possible flow configurations (**Figure 2.7**), a series of constraints and logical operations are implemented in the program so that incremental calculations of **Equation 2.7** are automatically applied for a given depth interval with the correct scenario.

2.3.3 BHB Calculator user guide

The BHB Calculator includes six worksheets. The environment is simplified with editable input data fields colored in blue. All other cells containing calculations are protected and are not visible by users. Results are presented synthetically as spreadsheets and clickable graphics. The first worksheet "INSTRUCTIONS" recalls the information provided in this section as well as the most important concepts regarding the Calculator.

In the "FIELD DATA" worksheet, users need to fill out:

- Properties regarding the wellbore (well radius) and the aquifer (porosity), as well as thermal properties of water and bedrock as defined in section 2.3.1. Typical thermal bedrock properties are suggested at the bottom of the worksheet;
- STP and DTPs acquired in the field. Each data series may contain up to a maximum of 1 200 values. Three different DTP loggings may be input, with specified total discharge rate and time elapsed since the beginning of pumping;
- Depth-flow profiles measured with doppler or spinner flowmeter devices for each of the pumping tests (three). Each of these flow data series may also contain up to 1 200 values.

Control buttons "Clear data" reports to macros that quickly erase long series of data.

The three worksheets "MODEL" allow to model three DTPs corresponding to three measured profiles filled out in the worksheet "FIELD DATA". The calculator can model

any kind of situation regarding positions, intensities of groundwater inflows or outflows (see section 2.3.2). A maximum of 40 different water inflows and outflows can be set for each model. In this worksheet, input data are:

- Properties of inflows (q_{in}^z, T_i^z) and outflows (q_{out}^z) and their depth. The depth of each inflow or outflow must be chosen from the available list. The values listed correspond to the depth intervals measured during the STP, which intervals are used for modeling DTPs with the heat budget. Measured DTPs can have different depth intervals than the STP as the model fitting is graphical. Users must enter only one value of inflow or outflow per depth (one per line).
- Heat conduction settings. These concern depth intervals associated to one value of r_e (see **Equation 2.7**). A maximum of 10 intervals with specific heat conduction can be set. For neglecting the effect of conduction, user may use a high value of r_e (i.e. $r_e = 10$ m). Conduction intensity is a logarithmic function, so intense conduction is set for r_e very close to r_i , and strongly fades out with increasing r_e .

Warnings to users are programmed to appear and to remain when: 1) the sum of outflows is different from the sum of inflows; 2) r_e input is lower than r_i (provoking a calculation error because of negative parameter for the logarithm); 3) when depth for inflow or outflow is not chosen from one depth interval measured in static conditions; 4) one line contains both inflow and outflow values. Graphics presenting field data (STP, DTPs, and flowmetering data) as well as modeled data (DTPs, flow distribution in the water column) are presented side by side with the spreadsheet containing the model variables, so the effects of variable adjustments on modeled results can directly be visualized.

The fitting procedure (**Figure 2.19**) performed by the user consists of adjusting the model variables so that modeled DTPs fits with field data. The fitting procedure must be performed sequentially from the lowest flow (i.e. from extremity inflows) to the highest flows in the water column (i.e. corresponding to the location of the pump).

Calculations are incremental as they sequentially follow the flow direction and their increase with depth. Proceeding this way is also an advantage because the temperature of extremity flows can be directly read on field DTP, so it gives solid starting information for the incremental modeling. DTPs usually show unique curvature when both advection and conduction heat flux are in competition (G. Meyzonnat et al., 2018), i.e. as long as flow in the water column (Q^z) remains low. Under these conditions, DTPs can be modeled with sharp sets of heat budget variables ($q_{in}^z, T_{in}^z, r_e^{[z;z+1]}$).

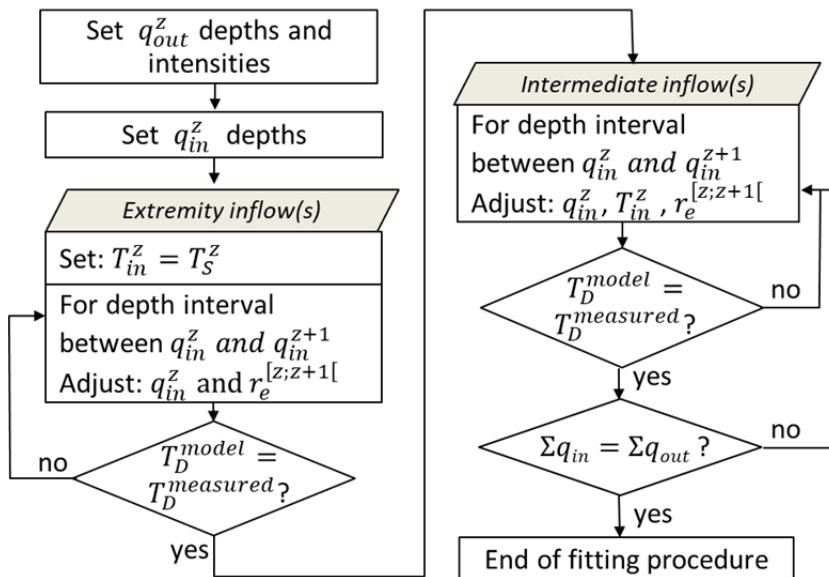


Figure 2.19 : Borehole Heat Budget Calculator fitting procedure

If flowmetering data are available, the settings for q_{in}^z , and q_{out}^z directly allow to set the flow distribution (Q^z), so that it corresponds with field data. For some specific flow conditions or logging operation, the heat budget could self-model DTPs and as such, provide an estimation for both q_{in}^z and T_{in}^z within intervals of the wellbore, or for the whole length of it. See discussion in section 4 and in G. Meyzonnat et al. (2018).

The worksheet "SUMMARY" gives a graphical snapshot of all field and modeled data

series. As seen together, results of three measured and modeled profiles might motivate further modeling fitting by adjusting parameters, number and position of inflows, etc. The spreadsheet with modeled data is also provided in this worksheet. Results in the spreadsheet can be selected and copy-pasted. All graphics are editable as users might want to adjust scales for temperatures, depth, or display color and shapes to better represents their data.

3. Results

3.1. Conceptual modeling example

The calculator can be used for a wide range of pumping configurations (section 2.3.2). **Figure 2.20** shows the theoretical modeling for three different pumping configurations In this example, sedimentary bedrock is considered, with thermal conductivity of $\lambda_s = 2,5 \text{ Wm}^{-1}\text{C}^{-1}$ and aquifer porosity $n=0.05$. The conceptual example considers a well with five fractures inflows (at depths of 25, 35, 55, 65 and 85 m), a pumping discharge rate of 20 L/min, and a geogradient that is linear as a purpose of simplification. Inflow temperatures are set to the geogradient temperatures, and the intensity of conduction is set at negligible conduction intensity ($r_e=1 \text{ m}$) for flows in the wellbore higher than 2 L/min, and at high intensity ($r_e=0,077 \text{ m}$) for flows lower than that 2 L/min. Values for r_e and for the geogradient slope are arbitrarily and only serves the purpose to provide a simple representation of how the BHB Calculator works. More (complex) cases are presented in sections 3.2 and 3.3 with in-situ data. The three modeling results in **Figure 2.20** were simply obtained by changing the location of the outflow (the position of the pump) in the BHB Calculator.

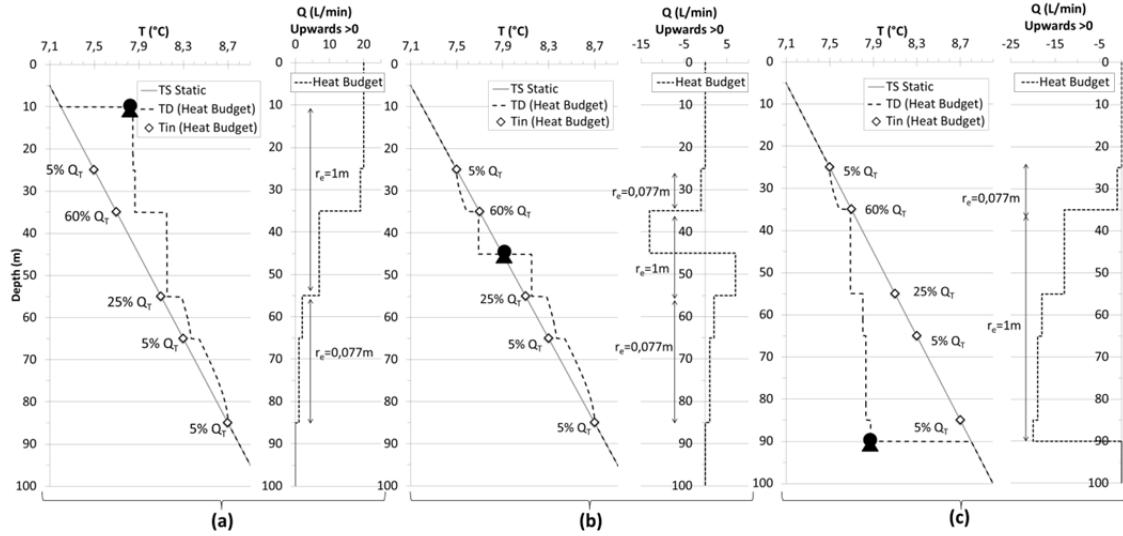


Figure 2.20 : Conceptual heat budgeting using the BHB Calculator with pump placed: (a) on top; (b) in the middle; (c) at the bottom

Water in the wellbore is flowing upward when pump is placed on top (**Figure 2.20(a)**), downwards when the pump is placed at the bottom (**Figure 2.20(c)**), and has multidirectional flow directions (with a water direction split) when the pump is placed in the middle (**Figure 2.20(b)**). The heat budget Calculator is automatically adapting flows intensities and their directions in the wellbore depending of the position of each inflow and outflow entered by the user. Dynamic temperature profiles are consequently calculated according to each flowing configuration. It is important to notice the curved profiles characterizing lowest flows zones for which conduction is influent (**Figure 2.20**). In these theoretical examples, low inflows at the bottom of the wellbore would be better characterized by temperature logging (curved shapes) with pump placed on top, and the low inflow at the top would be better characterized by temperature logging with pump placed on top. The placement of the pump in the intermediate position (between the two higher inflows) would be the most efficient setup for the characterization of the whole inflowing system with only one survey.

3.2. Borehole logging results

The STP for borehole #1 (**Figure 2.21**) shows a curved shape typical of stagnant water in the wellbore, not disturbed by passive flows in the borehole. The seasonal variation of the temperature at the surface of the soil propagates until 15 m depth and is followed by a reverse geogradient to the bottom of the well. More detailed information about the shape of the geogradient in the context of Canada is provided in Gosselin & Mareschal (2003) and G. Meyzonnat et al. (2018). In pumping, the DTPs are very clear and each sudden temperature shift corresponds to the location of a productive fracture. The DTP signal is especially sharp after 55 min since the beginning of the pumping, and highlight water inflows located at 54 m, 44 m, at least two fractures between 35 and 32 m and one weaker but significant inflow at 21 m depth. The spinner flowmeter survey provides the cumulative flow from all active fractures, each flow increment also representing inflow from an active fracture. The spinner flowmeter signal is however affected by noisy signal due to cavity wall effects induced by the variation of the section of the borehole (photos in **Figure 2.21(d)**), or when the propeller is disturbed by the (transversal) water inflowing from a fracture. As such, the noisy signal show apparent decreases of the flow before increasing again, which is impossible since in the case of pumping, the water in the wellbore is strictly flowing upwards and flow can only increase with decreasing depth.

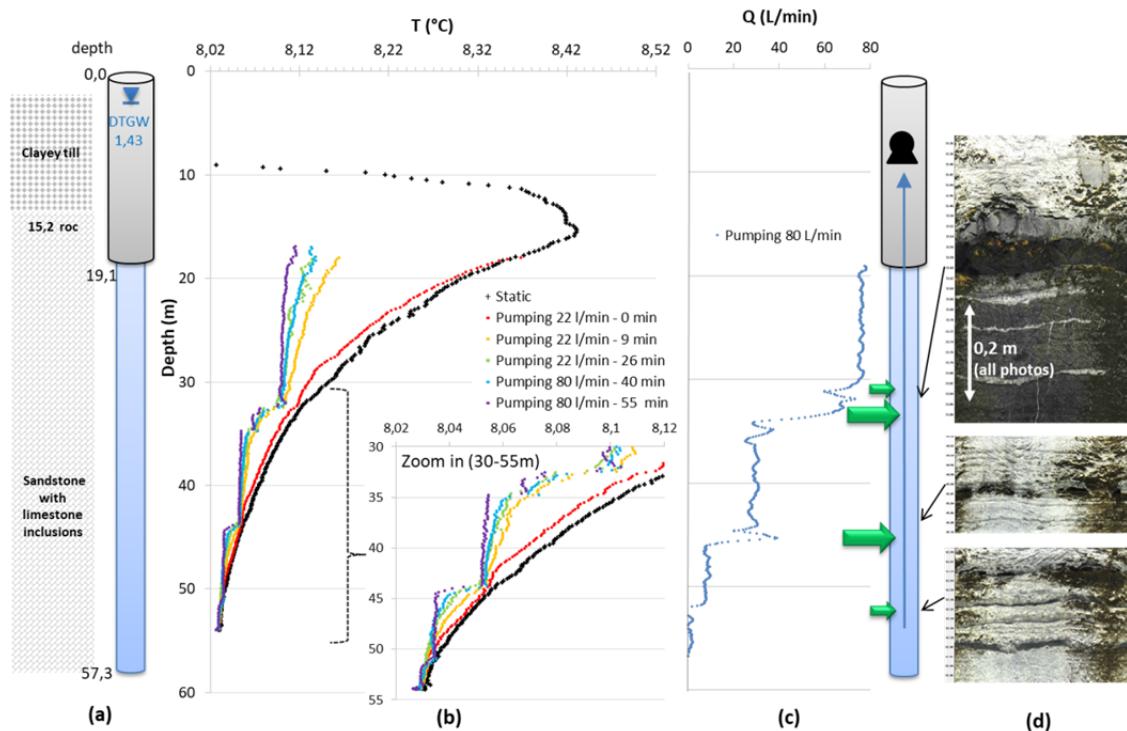


Figure 2.21 : Wellbore #1 logging: (a) wellbore characteristics, (b) temperature profiles, (c) flowmeter profile, (d) televideoing

As for wellbore #1, the STP for wellbore #2 (**Figure 2.22**) shows curved signal characteristic of stagnant water column. However, the seasonal soil temperature variation propagates deeper (i.e. 25 m) than for the previous example, suggesting higher recharge rates. DTPs clearly reveal temperature shifts at 9,1 and 10,9 m indicating major water inflows. These most important water inflows correspond to the location of small conduits in the bedrock (photos in **Figure 2.22(d)**). The DTP measured after 108 min of pumping is most clearly enhancing advection heat fluxes as conduction fades out with pumping duration. On this latter profile (purple color on **Figure 2.22**), a small temperature disturbance is distinguishable at 27 m depth facing an impressive cavity. Also, DTPs are not coinciding with the STP for greater depths, indicating the existence a rather low water inflow at 44 m. The measurement with the flowmeter does not highlight any water inflows for depths larger than 11 m. With the latter device, all measurable flows only appear for depth shallower than 11 m. At 27

m, an artefact of apparent drop in flow clearly corresponds to a cavity effect. However, no flow contribution from this cavity is measurable with the flowmeter.

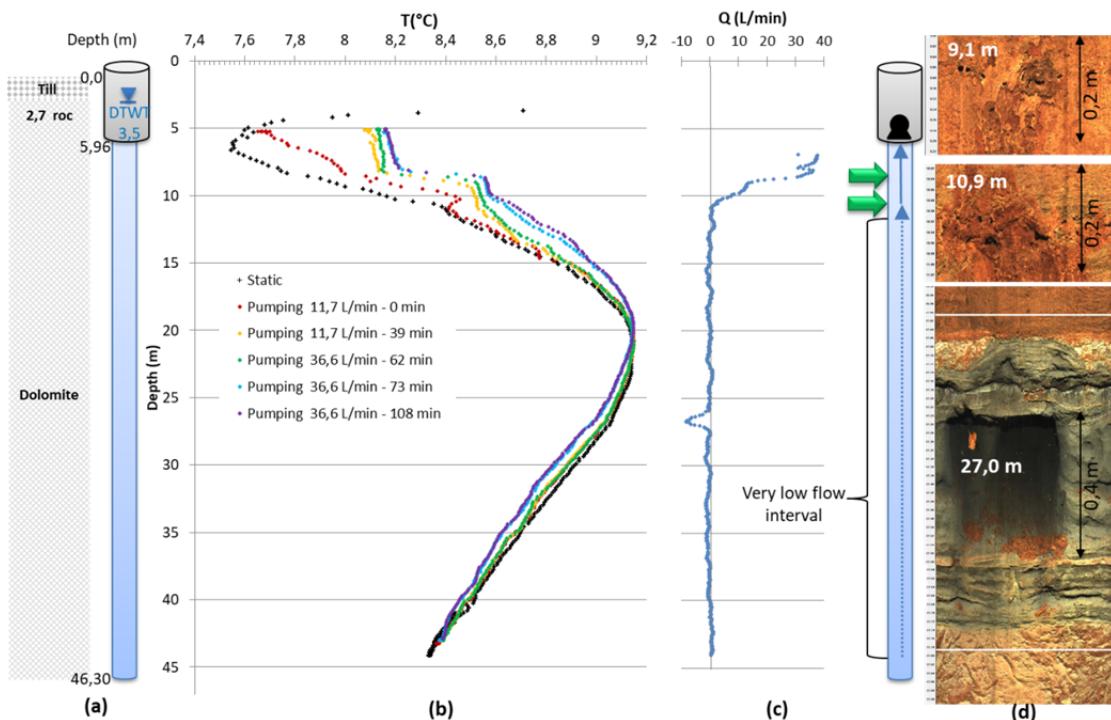


Figure 2.22 : Wellbore #2 logging: (a) wellbore characteristics, (b) temperature profiles, (c) flowmeter profile, (d) televiwing

For the wellbore#3 (**Figure 2.23**), the STP clearly shows the presence of "induced" flows in the wellbore. At this site, an active municipal well is present at a distance of 200 m from the investigated well and its pumping rates were reported to be as high as 1 000 L/min at the time of the field work. From 47 to 70 m, the static profile has a gradient too strong to be natural as for the Quebec context (a gain of nearly 0,6°C in 20 m instead of being near zero at this depth). The STP shape suggests the presence of water flowing upwards between two (or more) fractures located between 47 and 70 m. With the pumping of the investigated wellbore (pump on top, with flow rates between 25 and 75 L/min), upward flows induced by the neighbouring municipal pumping are further increased. DTPs confirm upward flows in the wellbore, with rather low flows from 70 to 47 m and a major water inflow at 47 m. The major water

inflow at 47 m thus controls the DTPs (vertical profile) until reaching another less productive fracture at 15 m. The flowmeter measurement reports effectively that most of the well's productivity comes from the cavity present at 47 m depth, as well as the smaller water inflow from cavity at 15 m (photos in **Figure 2.23(d)**), but it is inefficient to reveal any flow below 47 m depth.

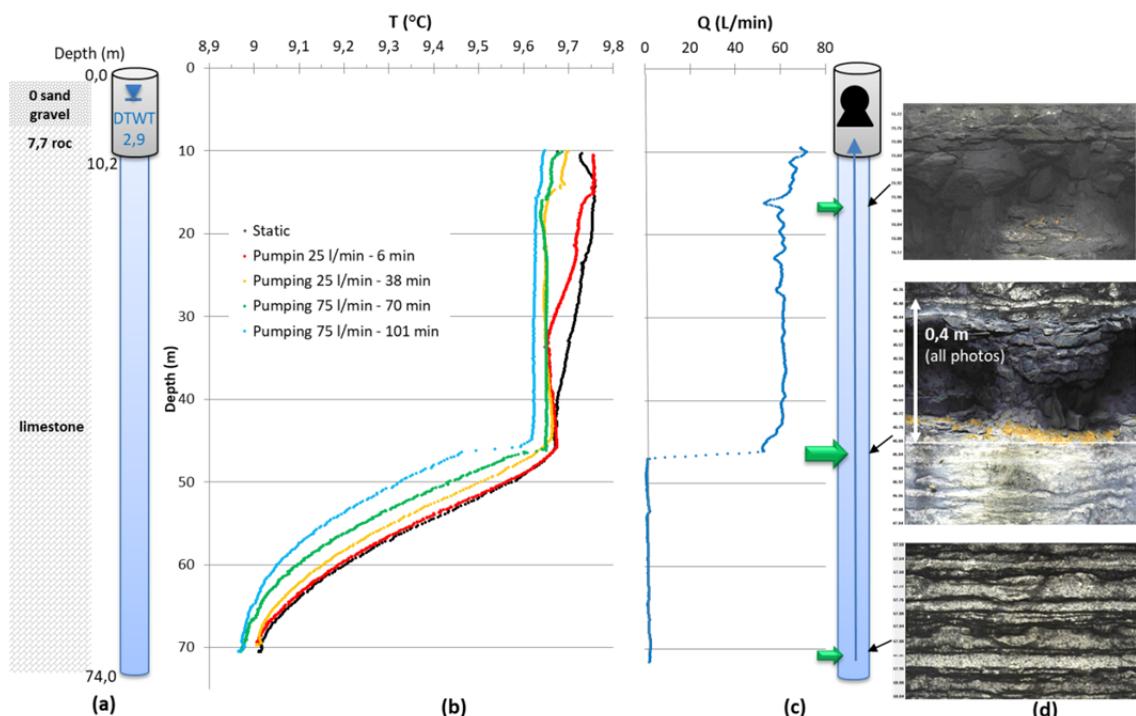


Figure 2.23 : Wellbore #3 logging: (a) wellbore characteristics, (b) temperature profiles, (c) flowmeter profile, (d) televiwing

The STP for wellbore #4 (**Figure 2.24**) shows a totally "stepped" signal that instantly indicates the presence of very important flows induced in the wellbore. As for the precedent case, a municipal pumping station is present in the neighbourhood of the investigated wellbore, at a distance of 100 m and water withdrawal reported to be as high as 2 000 L/min. The position of hydraulically active fractures at 21, 29, 64, 65, 78 and 88 m of depth are clearly indicated by steps on the STP. Under these conditions, the flowmeter data indicate that the fracture at 88 m (photo at the bottom of the wellbore in **Figure 2.24**) is draining out all the water flowing downwards in the

wellbore. This bypassed drainage induced by the neighbouring municipal pumping station reaches a total flow of 150 L/min. In pumping conditions (63 L/min, pump placed at the top of the borehole), flowmeter data shows that the water withdrawn at top of the wellbore causes a split of water flow directions at 29,5 m. Above it, upward flow is discharged by the pump, and below it, downward flows are drained out by the fracture at 88 m. The water split occurs within a major fractured interval between 28,5 and 30 m (top photo in **Figure 2.24(d)**). The upper part of the fractured zone drains a mix of water at 9,1°C, while the lower part of the fractured zone drains a mix of water at near 8,5°C. The deeper water inflows at 65 and 78 m are cooler and contribute to the cooling of the down flow which is ultimately drained out by the active fracture at the bottom of the borehole.

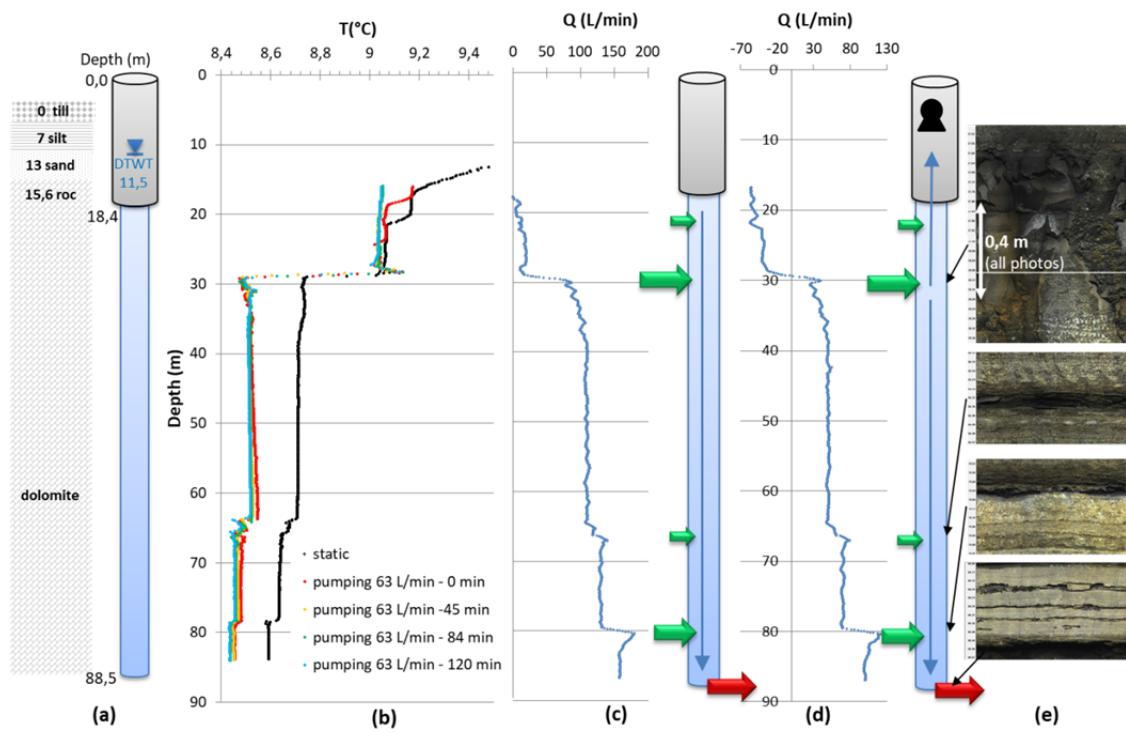


Figure 2.24 : Wellbore #4 logging: (a) wellbore characteristics, (b) temperature profiles, (c) “static” flowmeter profile, (d) flowmeter profile with pumping, (e) televiewing

3.3. Heat budget modeling

Heat budget modeling with the BHB Calculator was conducted by following the fitting procedure described in section 2.3.4. If detectable by the spinner flowmeter, water inflow intensities were fixed using these data. Otherwise (for low to very low flow intervals), water inflow intensities were modeled with the heat budget, starting from extremities inflows and subsequently following increasing total flow in the borehole. Such settings were primarily realized for lowest pumping rates having unique DTP allowing to set both inflow temperature and intensity as well as intensity of conduction. The distribution of flow intensities measured with the flowmeter (generally at high pumping rates) were used in heat budgets for lowest pumping rates (changing the total discharge, but keeping the same distribution). For the examples below considering sedimentary bedrock, thermal conductivity of bedrock is set at $\lambda_s = 2,5 \text{ Wm}^{-1}\text{°C}^{-1}$ and aquifer porosity set at $n=0.05$.

The thermal modeling for wellbore #1 (**Figure 2.25**) was carried out primarily for the smallest flow (22 L/min), 9 min after the beginning of the pumping. Water inflow temperatures at depth were adjusted to the STP ($T_{in}^z = T_S^z$). Then, the conduction was adjusted to fit modeled DTP with those measured in the field ($r_e=0,0754 \text{ m}$). Even for a relatively large flow in the water column above 37 m (10 to 22 L/min), the effect of the conduction towards the geogradient appears not to be negligible. This is due to the high temperature offset due to pumping ($T_S^z - T_D^z$) that drives the intensity of conduction. For the most elevated pumping rate (78 L/min) and long pumping time (55 min) it is assumed that conduction intensity had faded out. The DTP that was measured at this pumping rate and duration effectively shows a typical "stepped" signal. For this latter, the conduction was then set to "very low" ($r_e = 1 \text{ m}$) and inflow temperatures was set accordingly to match field data. The modeling indicates significant warming of water inflows at 35, 34 and 21 m. and 35 m during the pumping, while the temperatures for the other deeper inflows remained unchanged.

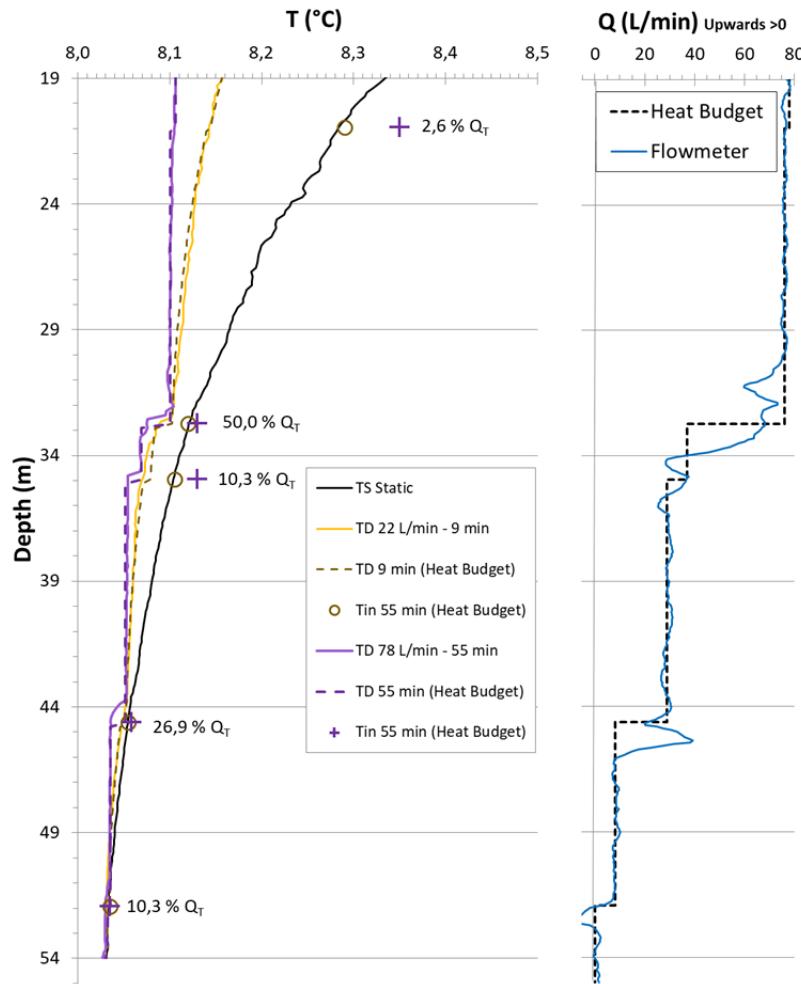


Figure 2.25 : Heat budget modeling for wellbore #1

For wellbore #2 (**Figure 2.26**), DTPs below 15 m differ from the measured STP. This indicates that there are necessarily water inflows for depths deeper than 15 m, which are however not measurable with the flowmeter. For heat budget modeling, four "deep" fractures (i.e. 44, 40, 35 and 27 m) are placed at the position of slight thermal anomalies visible on DTPs. For shallower depths, the position of three uppermost water inflows (i.e. 12, 13 and 14,9 m) are located at steps identified with the flowmeter data as well as with DTPs. Heat modeling began with data obtained during the lowest pumping rate (11.7 L/min, duration 39 min). For depths deeper than 15 m, the temperatures of the four water inflows were set equal to the temperature of STP.

Then, the intensity of conduction ($r_e = 0,0756$) and the water inflow rates were adjusted so that the modeled DTPs fit with the in-situ data. For depths shallower than 11 m, it is assumed that higher flows in the water column favours advection, so the heat conduction was set to be weak ($r_e = 1m$). With the observed range of flow (i.e. ≥ 5 L/min for depth ≤ 11 m), even using "high" intensity for conduction has anyway barely no effect on the modeled DTPs. The flow rates of the three upper inflows were adjusted with flowmeter data, and at last, inflow temperatures were adjusted to fit the model. For higher pumping rate and longest pumping duration (39 L/min, duration 108 min), inflow distribution was kept from the first modeling as well as the intensity of conduction. Just by doing so, this second model almost fitted measured data for depths below 11 m. Adjustment was just made setting a slight warming of the inflow at 27 m. Keeping high intensity for conduction even after relatively long pumping time deepest interval is plausible here because for these depths, flow in the water column remains very weak (i.e. maximum of 1,2 L/min until 15 m depth), so heat advection remains limited. From 15 m depth to the top, the setting of three upper water inflow temperatures was just efficient to fit the model to the data.

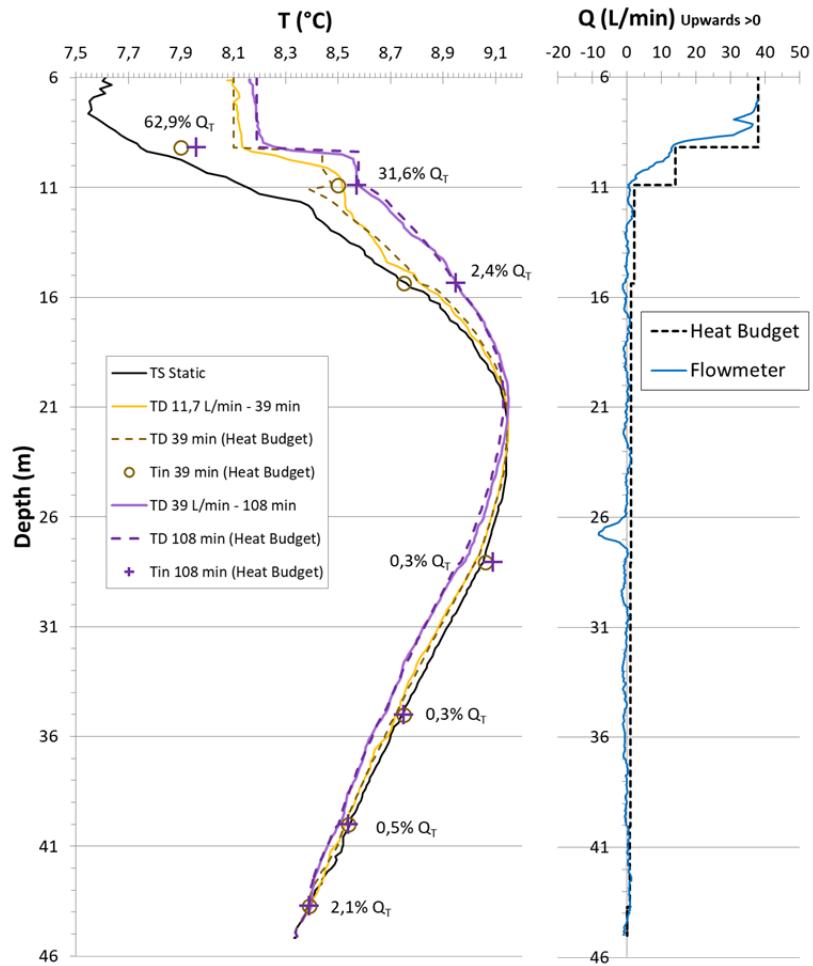


Figure 2.26 : Heat budget modeling for wellbore #2

For the wellbore #3 (**Figure 2.27**), DTPs could be modeled by setting only three water inflows. The shape of the DTP from 10 to 46 m depth is easily interpreted as the consequence of two discrete water inflows at 16 and 46 m. But from 46 to 71 m, the DTP would be either induced by a discrete inflow at 71 m or by a series of very weak distributed inflows. But as there is a temperature shift at 71 m during pumping, the hypothesis of single inflow at 71 m was retained for modeling. Following the same fitting procedure, the first modeling was performed with lowest flow rate (25 L/min) and sufficient pumping time (38 min) so that DTP is sufficiently distinguishable from the STP. The modeling from 71 to 46 m started by setting the temperature of the bottom inflow (T_{in}^z) as the temperature at the bottom of the T_D^z log

(extremity flow). Then, both conduction intensity ($r_e=0,0755$ m) and inflow rate ($q_{in}^z=0,35$ L/min) were set to fit field DTP. For 46 m to the top of the wellbore, two water inflows were set to correspond to the flowmeter data. Conduction was set to be minor against advection ($r_e = 1$ m) because of high flow rates (≥ 20 L/min) for the upper interval. At last, inflow temperatures were adjusted to complete the DTP model fitting. For higher discharge rate (75 L/min, duration 108 min), inflow distribution was kept the same as from the first modeling. Fitting of lower interval required direct setting of the temperature of the extremity inflow, conduction setting corresponds to slightly less intense value ($r_e = 0,0773$ m), which makes sense because with increased pumping rate, even the lower inflow is high enough ($q_{in}^z=1,0$ L/min) to transport heat by advection, participating rather efficiently at the conduction fade out with pumping time. For the upper interval (depth ≤ 46 m), the only changes from modeling at lower pumping rate were to set new inflow temperatures.

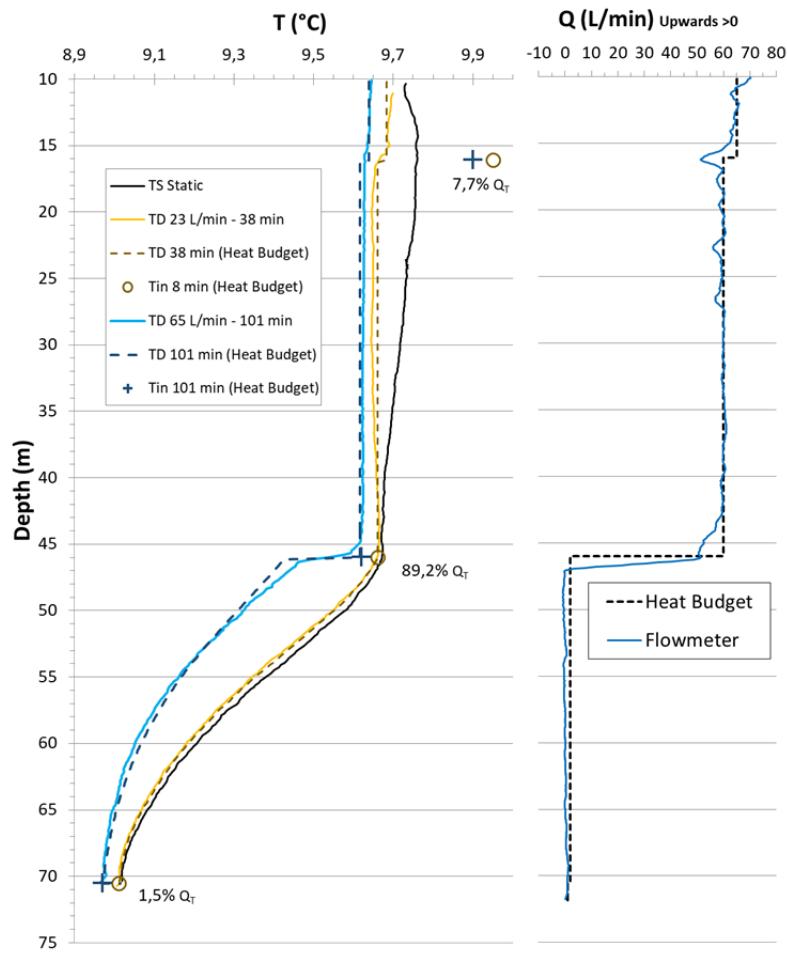


Figure 2.27 : Heat budget modeling for wellbore #3

For the wellbore #4 (Figure 2.28), neighbouring municipal pumping induces very high downward flows which are partially compensated by pumping at the top of the wellbore. Since flow rates are high, it is assumed that heat advection dominates against heat conduction in the wellbore, even in the STP. Thus, thermal regime is simple for this example and the main advantage of the modeling is to show the capacity of the calculator to treat multidirectional flows within the same wellbore. Heat modeling consisted of setting inflow and outflow rates from flowmeter measurements, set conduction to be weak ($r_e = 1$ m) and to adjust inflow temperature to model this "stepped" advection dominated signal. The flow rates set create a split of water flow direction at 29,5 m. Using the heat budget calculator, it becomes

obvious that the fractured interval between 28,5 and 30 m actually drains water that does not have the same temperature. Upper water inflows appear warmer and lower water inflows appear colder. Water inflows at depths of 65 and 88 meters finally bring cold contributions to downward flow at the bottom of the wellbore.

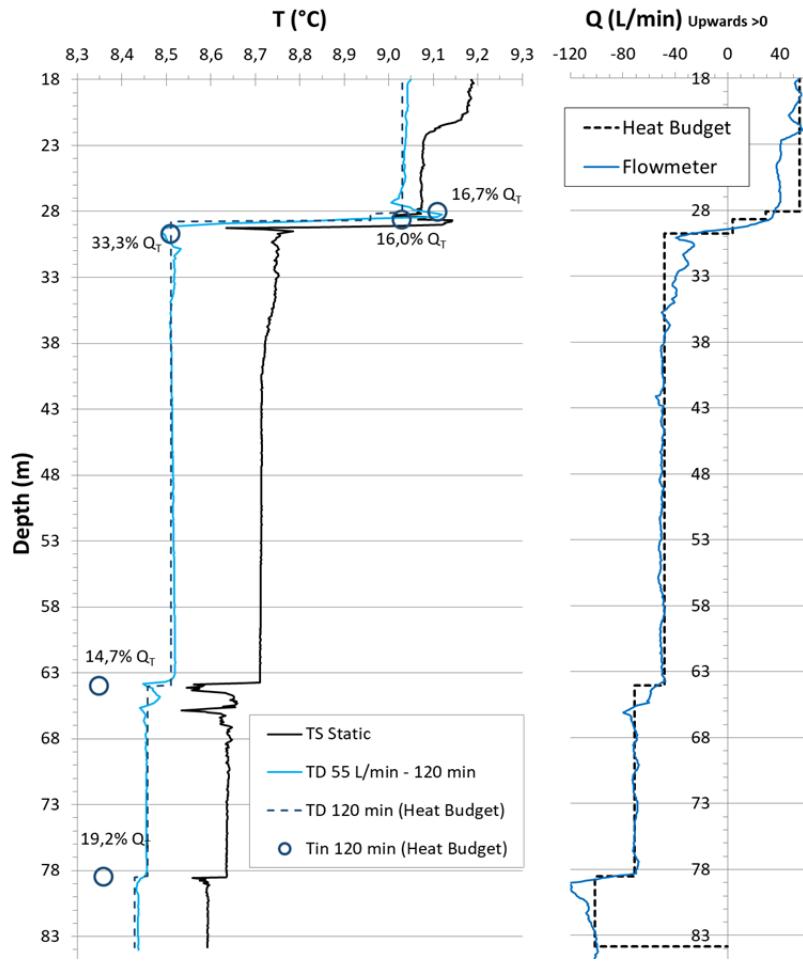


Figure 2.28 : Heat budget modeling for wellbore #4

4. Discussions

All temperature profiles surveyed demonstrated the ability of high-resolution DTP to provide sharp information for the localization of water inflows with the flowmeter. The benefit of temperature data quality compared to flowmeter data is visible in DTP for wellbore #1 (depth interval 32-35 m and for the inflow at 44 m); wellbore #2 (all

signal above 11 m and for the cavity at 27 m), wellbore #3 (inflow at 16 m) and for wellbore #4 (signal around the water split at 29,5 m). Spinner flowmeter is often subject to cavity walls effects (apparent velocity drop within larger irregular section of boreholes), as well as spinner artefacts due to transversal water velocities (rather than vertical) facing water inflow positions. High resolution DTP thus better reports sharp sequences of discrete inflows, even close to each other, where flowmetering signal might be interpreted as “distributed inflows” within one interval. High-resolution DTP surveys also demonstrated very impressive capacity to reveal low inflows. For wellbore #2 (below 11 m depth) and for wellbore #3 (below 47 m), DTPs revealed interesting low-flow patterns which were not detectable with the spinner flowmeter.

Although the BHB Calculator is specifically designed to be used with any possible pump placement, all the DTP in this study were surveyed with the pump placed at the top of the wellbore. This is because the trolling of the thermistor through the wellbore is complicated, or impossible, if cables, tubing and pump(s) are cluttering the section of the borehole. However, depending of fracture distribution in the wellbore, the placement of the pump at depths (i.e. **Figure 2.20 (b)** and **(c)**) other than at the top of the wellbore (i.e. **Figure 2.20 (a)**) can certainly improve the pertinence of DTP measurements and their efficiency for quantitative exploitation. For that matter, the use of the BHB Calculator coupled with optical fiber DTS measurements would be better suited for surveys involving pump(s) placed at any intermediate depths in the wellbore. Optical fiber distributed temperature sensing (not used for this study) also certainly provides data with better spatial and temporal resolution compared to thermistors, as it records instantaneous depth-temperature snapshots. But the paradox is that the current temperature resolution of optical fiber might not be still good enough to decipher temperature ranges in all contexts, especially when collecting temperature data in passive mode and in the context of transitory, near zero geogradient. As a matter of fact, DTPs surveyed in this study with high resolution

thermistor clearly showed pertinent temperature patterns (i.e. loggings for wellbores #1 and #2) within a resolution of at least $0,01^{\circ}\text{C}$, which would have certainly not been revealed with optical fiber DTS.

As sharp as they can be, temperature profiles remain difficult to read without the use of the heat budget. Performing quick heat modeling really enhances the understanding of the temperature logs by clearly visualizing how heat conduction and heat advection can compete depending of flow patterns distributed with the depth. Heat budgeting also removes situations that can lead to confusion, especially when low temperature shifts observed in the wellbore are actually the consequence of high inflow rate, and vice versa. For example, the high inflow at 33 m in wellbore #1 induces a weak temperature shift in the water column because $T_{\text{in}}^{33\text{m}} \approx T_{\text{D}}^{33\text{m}}$. And oppositely, the low inflow at 16 m in wellbore #3 induces a still significant temperature shift in the water column because $T_{\text{in}}^{16} \gg T_{\text{D}}^{16}$.

The fitting procedure of the heat budget with solely temperature data is possible at low flow regime, as long as both heat conduction and advection contributions remain distinguishable in the DTS. For such thermal regime, DTS show curvatures that are best suitable for model fitting. In this situation, the sequential fitting procedure (i.e. starting for extremity flow towards increasing total flow in the wellbore), allows the modeling with constrained values for the parameters ($T_{\text{in}}^z, q_{\text{in}}^z, r_e$). Better fitting would be likely obtained with a pumping at low flow rate. Authors demonstrated this latter possibility theoretically with an iterative procedure (G. Meyzonnat et al., 2018). When flows into the wellbore become too high, typical stepped temperature profiles indicate that advection dominates. In this case, the heat model cannot be fitted only with temperature data, as one temperature shift in the water column could be modeled by a large range of combinations between temperature or flow rate of each water inflow. High inflow must then be measured with a flowmetering device. There is however a special case for the wellbore #1 survey, since the water inflow temperature

corresponds to the temperature measured in static conditions. Temperature of inflows could have been consequently set as values for static temperatures in the heat balance. In doing so, the flows could have been deduced solely by means of the temperature measurement in the wellbore combined with heat modeling.

Another insight provided by heat budget modeling is that temperature of inflows can be calculated. This is where temperature "as a free tracer" might reveal its strongest pertinence among other techniques. The inflow warming or cooling rate during pumping is indicating the orientation of fractures in the aquifer, as well as porosity type (conduit or rather discrete or distributed fracturing). For example, the three upper fractures in wellbore #1 (21, 34 and 35 m) are warming during pumping. This indicates that these fractures are oriented because they necessarily drain water from shallower (warmer) horizons. Such warming of inflows is also suggesting that heat advection is important for these flows within the aquifer, so they could constitute a "conduit" type, more than a dense fractured network. In contrast, deeper inflows in wellbore #1 remain at constant temperature suggesting either drained horizons that have a near-horizontal orientation and/or flows are drained through dense networks of distributed fractures that favor conductive equilibration with the temperature of the bedrock. The same interpretation may be valid for the three upper fractures of wellbore #2 that are warming up during pumping (while those at the bottom do not change). For wellbore #3, all active fractures are cooling down, thus suggesting rather a "conduit" fracturing type, draining deep horizons. For wellbore #4, heat budget modeling makes evident that the fractured interval between 28,5 and 30,0 m does not drain water having the same temperature over the whole interval. Upper water inflow appears warmer and lower water inflow appears colder. This suggests that this less than 2 m thick fractured zone must drain different water reservoirs (a warmer superficial reservoir and a colder one at depth). At last, water inflows for wellbore #4 at depths of 65 and 88 meters finally bring cold contributions that would be associated with deeper reservoirs.

5. Conclusions

Depth-temperature data collected in this study recalled the capacity of the technique to sharply localize water inflows in wellbores. Such profiles collected with a high-resolution thermistor specifically demonstrated tremendous capacity to reveal low flows which remained undetectable with a spinner flowmeter. The Borehole Heat Budget Calculator (BHB Calculator) provided along with this work is dedicated for hydrogeologists who want to enhance the readability and to perform quick quantitative analysis of complex depth-temperature profiles acquired in the context of heterogeneous aquifers. The calculator is easy to use, versatile for heat modeling given any pumping configuration and from any temperature data acquired with optical fiber or thermistor. Optical fiber DTS may provide better spatial and temporal resolution and might be advantageously used for any pump position into the well compared to thermistors. However, thermistors have nowadays much greater temperature resolution than the optical fiber, which makes them much more efficient for the characterization of low flows. Explicit modeling of the whole heat system with the BHB Calculator is enhanced in low flow conditions that favor intricate competition between advection and conduction heat fluxes, thus providing unique and explicit curved depth-temperature signals that can be easily deconvoluted. Another insight provided by the use of the BHB Calculator is that the temperature of groundwater inflows can be calculated. This is where temperature “as a free tracer” might reveal its strongest pertinence as it provides information about the origin (i.e. shallower or deeper) of groundwater inflowing into the wellbore. The use the BHB Calculator as an easy tool, combined with the acquisition of temperature profiles using new materials, represents an exciting prospect for the better understanding of flow paths and groundwater origin in complex aquifers.

2.6 Conclusions sur le Chapitre II

2.6.1 Compilation des propriétés hydrauliques et de leur distribution selon la profondeur

La profondeur moyenne des quinze puits investigués est de 82 m (min. 22 m, max. 128 m, écart type 30 m), les longueurs moyennes des intervalles traversant le roc sont de 59 m (min. 10 m, max. 115 m, écart type 31 m). La synthèse des propriétés hydrauliques est reportée à la Figure 2.29, soit pour les transmissivités (t_i), conductivités hydrauliques (k_i) et l'ouverture apparente des fractures (b_i) en fonction de la profondeur. Les coefficients de corrélation entre transmissivités, conductivités hydrauliques et la profondeur restent faibles ($r^2 < 0.2$). De même pour l'ouverture apparente des fractures qui n'apparaît pas corrélée avec la profondeur dans l'aquifère ($r^2 = 0.03$). Même si l'on considère la conductivité hydraulique totale avec la profondeur totale des 15 puits investigués, la relation avec la profondeur n'apparaît également pas significative ($r^2 = 0.28$, non représenté sur la Figure 2.29). Selon ces résultats, la distribution des zones productives, ainsi que leurs propriétés hydrauliques apparaissent donc réparties de manière très hétérogène selon la profondeur. Or, on retrouve tout de même les conductivités hydrauliques les plus élevées proches de la surface, ainsi que les plus faibles en profondeur. Bien que le nombre de puits représenté ici soit faible pour tenir des statistiques, ces résultats sont globalement en accord avec les investigations réalisées au Québec, basées sur la profondeur totale et la conductivité hydraulique moyenne par puits (voir section 1.2). Ces dernières études suggéraient une diminution de la productivité des aquifères rocheux fracturés avec la profondeur, mais avec un écart type extrêmement important. Ceci signifie que bien qu'une tendance à très grande échelle soit significative, la distribution des propriétés hydrauliques selon la profondeur doit être étudiée au cas par cas lorsque l'utilisation d'un puits engendre des enjeux importants (puits de captage, site contaminé).

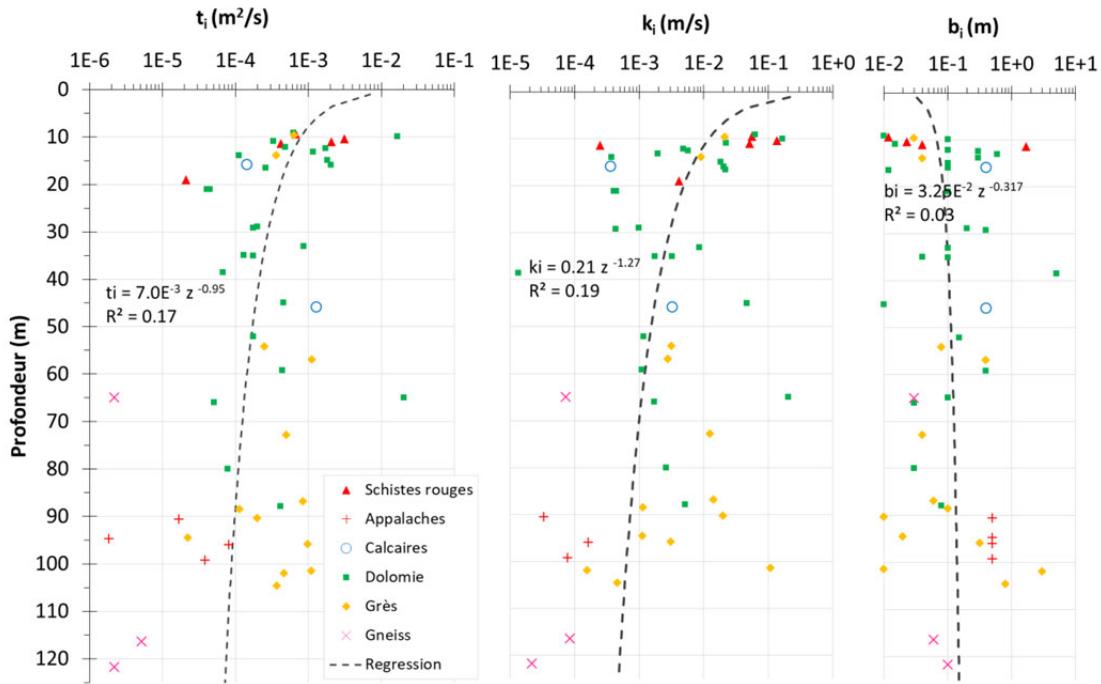


Figure 2.29 : Compilation de la distribution des transmissivités (t_i), des conductivités hydrauliques (k_i) et de l'ouverture apparente des fractures (b_i) en fonction de la profondeur pour les 15 puits investigués

Pour les quinze puits investigués, un total de 52 zones productives ont été identifiées, allant de 1 à 6 zones productives distinctes par puits (moyenne 3.5). 60% des zones productives identifiées sont discrètes, soit représentées par des conduits (entre 10 et 40 cm d'ouverture apparente) ou des fractures discrètes n'excédant généralement pas 3 cm. Les 40% des zones productives restantes apparaissent plutôt comme des intervalles de roc fracturés dépassant les 10 cm d'épaisseur et n'excédant généralement pas le mètre. L'intervalle productif moyen par puits est de 0.3 m (min. 1 cm, max. 5 m, écart type 0.8 m). Selon ces dimensions observées par diagraphie (optique, thermique et vélocimétrique), et en considérant une porosité arbitraire de 0.25 pour les intervalles fracturés distribués, la porosité apparente moyenne du roc pour les quinze puits est de 1.1 % (min. 3 %, max. 4 %, écart type 1%). La moyenne harmonique des conductivités hydrauliques pour toutes les zones productives

identifiées est de $1.0 \cdot 10^{-4}$ m/s (min. $3.7 \cdot 10^{-6}$ m/s, max. $2.0 \cdot 10^{-1}$ m/s, écart type $4.3 \cdot 10^{-2}$ m/s). Le tableau de synthèse sur les résultats diagraphiques est présenté à l'Annexe A3. L'ensemble de ces relevés témoignent de l'hétérogénéité de la position et de la productivité associés à chaque zone productive dans les lithologies investiguées. Il est également notable que les intervalles productifs dans le roc sont finalement très localisés, en accord avec les faibles porosités secondaires (quelques pour cent), généralement admises pour le roc fracturé au Québec et dans la littérature. On peut noter également que les données diagraphiques montrent bien que même des fractures centimétriques permettent d'obtenir des niveaux de productivité très élevés. Ainsi, même des puits présentant peu de fractures apparentes peuvent être très productifs quand ces dernières sont bien connectées à un réseau de fractures dans l'aquifère rocheux.

Les investigations diagraphiques réalisées lors de la thèse concernent des puits de captage. De tels puits sont d'emblée productifs, et représentent ainsi un échantillon particulier parmi ceux pouvant être généralement rencontrés pour les aquifères au Québec. À titre de comparaison, lorsque des puits sont forés exclusivement pour fins d'étude diagraphique, leur productivité est souvent bien plus faible (i.e. Crow, 2013). L'étude des puits productifs reste cependant entièrement pertinente, car ce sont depuis ces derniers que l'eau souterraine est exploitée.

2.6.2 Avantages et limitations des techniques diagraphiques utilisées

Les avantages et les inconvénients des différents types de diagraphie sont rapportées au Tableau 2.1. La plupart de ces informations sont tirées d'un rapport protocolaire détaillé sur les diographies physiques, réalisées dans le cadre de la thèse, en partenariat avec les partenaires industriels (GEOTOP-UQAM, TechnoRem inc., Envir'eau-Puits inc., 2018).

Tableau 2.1 : Avantages et inconvénients des méthodes diagraphiques utilisées²

Thème	Température haute résolution	Micro-moulinet	Caméra
Robustesse de l'appareillage	+++	+ pièces mécaniques (moulinet) sensible aux réglages	++ Fragile, mais quasiment sans entretien
Rapidité de la mesure	+++ Acquisition (1-8 m/min) selon flux d'eau dans la colonne (limitation du temps de rééquilibration de la sonde)	+++ Acquisition 5 m/min max.	+ Acquisition 1-2 m/min max.
Fréquence d'échantillonnage	Une mesure par 0.5 seconde	Une mesure par 5 cm	NA
Cout de l'équipement	- - -	++ (ordre de prix comparable aux essais par obturateur)	+++
Repérage de la position des fractures actives	+++	++ Signal plus bruité par rapport à la thermique	Précise la nature de fractures (discrettes, conduits, distribués)
Quantification des flux d'eau	Possible avec bilan thermique, mais potentiellement complexe	+++	NA
Résolution en débit	0.01 L/min ³	1.9 à 3.2 L/min ⁴	NA
Identification de très faibles débits (passifs)	+++	- - -	NA
Bruit associé à la mesure	- - - Faible bruit-Très reproductible en statique	+ Sensible aux effets de cavité et aux arrivées d'eau transversales (emplacement des fractures actives)	NA
Détermination de l'origine de l'eau (profonde ou superficielle)	+++	NA	NA

² Tiré du rapport de Protocole diagraphique détaillé (GEOTOP-UQAM, TechnoRem, Envir'eau-Puits, 2018).³ Selon les travaux réalisés (Article #1, section 2.4), la réponse thermique en pompage peut théoriquement permettre d'identifier des débits d'eau de l'ordre du 0,01 L/min (puits Ø 150 mm). Mais pour se faire, la différence entre température statique et dynamique doit être suffisamment importante, soit de l'ordre de 0,01°C.⁴ Tiré du rapport de protocole diagraphiques de novembre 2018. Pour des vitesses élevées de descente du treuil (i.e. 5 m/min), la dispersion (2σ) des impulsions par secondes (CPS) est de l'ordre de 25, ce qui correspond à une résolution de l'ordre de 0,18 m/min selon la calibration, soit pour un puits de 150 mm de diamètre, à une résolution du micromoulinet en débit d'eau de 3,2 L/min. Pour des vitesses de treuil plus faibles (i.e. 1 m/min), la dispersion est de l'ordre de 15 CPS, ce qui correspond à une résolution de l'ordre de 0,11 m/min, soit pour un puits de 150 mm de diamètre, une résolution du micromoulinet de 1,9 L/min.

L'utilisation combinée du microvélodimètre et de la caméra reste très efficace pour obtenir la distribution verticale des zones productives pour les puits à longs intervalles dans les aquifères rocheux fracturés. L'utilisation du microvélodimètre permet une mesure relativement rapide pour les puits profonds, tout en fournissant des mesures dont la résolution verticale est élevée par rapport aux essais par obturateur. Les relevés par caméra sont toujours très utiles pour compléter les mesures microcolorimétriques et permettent de connaître ou de confirmer la nature des zones productives (fracture discrète, zone de fractures distribuées, conduits). La résolution à bas débit du micromoulinet est appréciable, mais pourrait être limitante pour les puits peu productifs pour lesquels le débit de pompage est limité (c.-à-d. nécessite un débit minimal de l'ordre de 20 L/min pour un puits de 150 mm de diamètre pour avoir des mesures fiables). La mesure au micromoulinet est également associée à un bruit de fond, et des artefacts peuvent être associés à des effets de cavité dans les forages dont les parois sont irrégulières.

En complément ou comme une alternative aux autres techniques, les travaux d'analyse sur la diagraphie thermique haute résolution apportent les réflexions et constatations ci-dessous :

- les réponses thermiques en pompage sont complexes en ce sens qu'elles dépendent du flux de chaleur advectif (combinant intensités et températures d'eau), et des flux de chaleur par conduction dans le puits et autour de ce dernier. Ces processus combinés sont cependant mieux perçus et rendus explicites par l'utilisation du bilan de chaleur ;
- la rééquilibration thermique par conduction avec la surface du forage devient négligeable par rapport aux flux de chaleur par advection quand le temps de pompage augmente, et surtout dès que les flux d'eau deviennent thermiquement dominants dans la colonne d'eau, c'est-à-dire pour des débits dépassant seulement 1 L/min;

- la réponse thermique est très avantageuse pour estimer l'origine (superficielle ou profonde) des arrivées d'eau depuis l'aquifère en requérant finalement assez peu de moyens comparé à d'autres techniques utilisées pour obtenir le même type d'information (c.-à-d. traçages avec traceurs environnementaux ou traçages artificiels) ;
- la mesure de la température haute résolution est sensible à très faible débit. En ce sens, cette technique est très avantageuse pour mettre en évidence des débits passifs qui sont habituellement très difficiles à déceler. En outre, comme ces débits passifs sont très faibles, mais permanents, ils peuvent contrôler totalement la stratification géochimique de la colonne d'eau dans les puits, masquant ainsi la stratification verticale naturelle de l'aquifère.

CHAPITRE III

INVESTIGATION HYDROGÉOCHIMIQUE DES MASSES D'EAU SELON LA PROFONDEUR DANS LES AQUIFÈRES ROCHEUX FRACTURÉS DES BASSES-TERRES DU SAINT-LAURENT, QUÉBEC

3.1 Introduction au chapitre III

L'ensemble des échantillonnages présentés dans ce chapitre réfère à l'acquisition de connaissances concernant l'hydrogéochimie de l'eau souterraine selon la profondeur pour des puits à longs intervalles en contexte d'aquifère rocheux fracturé des Basses-Terres du Saint-Laurent. La mise en place ainsi que la représentativité des échantillons collectés séquentiellement s'appuient largement sur les résultats des diagrapiques réalisées dans les forages (Chapitre II). Les échantillonnages séquentiels visent à compléter les informations découlant des études régionales réalisées au Québec depuis 2008, lors desquelles les échantillonnages d'eau ont concerné la collecte de l'eau pompée aux puits, représentant ainsi la composition moyenne des solutés présents selon l'épaisseur de l'aquifère interceptée par le forage. L'approche proposée a pour objectif de mettre en lumière, ou d'infirmer, la stratification verticale d'un point de vue hydrogéochimique. La question de la stratification verticale est importante car elle peut engendrer des enjeux liés à la qualité et la vulnérabilité des masses d'eau. Des masses d'eau stratifiées en termes minéralogiques pourraient être de meilleure qualité en surface plutôt qu'en profondeur. Une stratification d'âge, éventuellement à relier à la minéralisation croissante selon la profondeur, impliquerait une vulnérabilité accrue pour les eaux superficielles. Le travail d'investigation et de recherche concernant ce chapitre est présenté sous la forme

d'un manuscrit en cours d'élaboration en vue de publication scientifique (Section 3.3). Les sections théoriques de ce manuscrit concernant notamment les équilibres calcocarboniques, la datation radiocarbone ainsi que les modèles d'excès d'air sont présentées en détail dans le cadre de cette thèse, mais visent à être raccourcies pour publication scientifique.

3.2 Précautions aux investigations hydrogéochimiques en contexte d'aquifère rocheux fracturé

3.2.1 Échantillonnage de la colonne d'eau en « régime permanent »

Lors de l'échantillonnage conventionnel du mélange pompé au puits, les paramètres physico-chimiques (pH, conductivité électrique, oxygène dissous) sont habituellement suivis jusqu'à leur stabilisation, afin de s'assurer de prélever les échantillons une fois que l'eau stagnante dans le puits a bien été purgée. Pour les puits traversant de longs intervalles installés dans une matrice aquifère hétérogène (surtout en milieu fracturé), il est important de connaître la distribution des zones productives selon la profondeur, peu importe qu'on échantillonne le mélange pompé ou que l'on réalise un échantillonnage sériel. Ceci peut être déterminé par des mesures diagraphiques préalables. Ces mesures préliminaires permettent de calculer le temps de pompage nécessaire pour que la distribution des concentrations dans la colonne d'eau reflète effectivement la distribution des zones productrices dans le puits pompé. Le Tableau 3.1 montre un exemple théorique des vitesses de fluide dans un forage ayant des zones productives réparties de manière hétérogène selon la profondeur. Dans cet exemple, le pompage est réalisé en haut du puits à un débit de 20 L/min. L'existence des zones peu productives et profondes augmente considérablement le temps nécessaire pour atteindre le régime permanent. Il faudrait par exemple attendre près de 1.3 h pour pouvoir échantillonner le mélange représentatif des zones productives jusqu'à 45 m, et 5,8 heures pour inclure la venue d'eau la plus faible située à 60 m de profondeur.

Tableau 3.1 : Exemple du temps nécessaire à l'homogénéisation de la colonne d'eau dans un puits en contexte d'aquifère hétérogène

Débit pompage (L/min)	20	5.3 UGSM			
Diamètre puits (mm)	152	6.0 Pouces			
Section puits m ²	0.018				
Prof. (m)	Zones productives	Débit fracture (L/min)	Débit cummulé Qt (L/min)	Vitesse fluide (m/min)	Temps de remontée intervalle (min)
Prof. (m)	% Transmissivité	Débit fracture (L/min)	Débit cummulé Qt (L/min)	Vitesse fluide (m/min)	Temps de remontée depuis le bas du puits (heures)
5		0	20	1.1	4.5
10		0	20	1.1	4.5
15		0	20	1.1	4.5
20		0	20	1.1	4.5
25	10%	2	20	1.1	4.5
30	5%	1	18	1.0	5.0
35	50%	10	17	0.9	5.3
40	20%	4	7	0.4	13.0
45	10%	2	3	0.2	30.2
50		0	1	0.1	90.7
55		0	1	0.1	90.7
60	5%	1	1	0.1	90.7
Σ	100%				

$$V(\Delta z) = \frac{Q}{\Delta z \pi R^2} \quad t(\Delta z) = \frac{\Delta z}{V(\Delta z)}$$

1.3
5.8
4.5

3.2.2 Influence des débits « passifs » sur la composition de la colonne d'eau des puits

Pour les puits profonds à longs intervalles en milieu fracturé, il est possible que des « débits passifs » soient induits par la présence même du forage. Si le forage met en connexion hydraulique au moins deux zones productives, le puits constitue un court-circuit à conductivité hydraulique quasi infinie entre ces dernières, depuis celle ayant la charge hydraulique la plus élevée vers celle ayant la charge hydraulique la moins élevée (c.-à-d. Figure 2.3, chapitre II). Les gradients de charge naturels sont en général faibles et induisent donc des débits faibles. Mais même s'ils sont faibles, ces débits sont a priori permanents, et peuvent ainsi contrôler l'intégralité de la composition de la colonne d'eau. La composition de l'eau dans le puits devient donc entièrement dépendante de la profondeur des fractures alimentant le(s) débit(s) passif(s), et la stratification naturelle de l'aquifère, si existante, n'est plus apparente. Cet aspect est important à considérer pour l'échantillonnage séquentiel selon la profondeur, mais peut aussi impacter l'échantillonnage du mélange, quelle que soit la profondeur à laquelle la pompe est

placée. À titre d'exemple, un débit passif de seulement 0.1 L/min représente un volume journalier de 144 L. Pour un puits de 150 mm de diamètre, un tel débit passif permet de renouveler l'équivalent de 8,5 m de colonne d'eau en une seule journée. Dans cet exemple, la vitesse apparente dans le forage est de seulement 5,9 mm/min, ce qui rend ce débit extrêmement difficile à identifier et quantifier (voir au chapitre II pour les techniques diagraphiques), bien qu'il contrôle aisément la composition de l'eau dans le forage sur un laps de temps relativement court. À noter que si des débits passifs sont effectifs dans les puits, il est attendu que ces derniers, comme ils déplacent des volumes d'eau non négligeables d'une profondeur à l'autre dans l'aquifère, peuvent considérablement modifier la stratification verticale de l'aquifère au voisinage du puits par rapport à l'état naturel avant forage.

3.2.3 Choix des traceurs

Compte tenu des problématiques contemporaines les plus pertinentes, comme la vulnérabilité de la ressource aux contaminations anthropiques, l'évaluation du renouvellement de l'eau souterraine de bonne qualité dans le cycle de l'eau, il y a certainement un intérêt plus prononcé à porter l'emphase sur la datation à l'aide de traceurs adaptés aux circulations rapides, plutôt que sur les traceurs pour l'eau plus ancienne, voire fossile. Compte tenu de ces problématiques, et en ciblant un échantillonnage sérié selon la profondeur, la méthode $^3\text{H}/^3\text{He}$ est principalement utilisée pour la datation des eaux « récentes » (1-50 ans). Une datation complémentaire SF₆/CFC-12 a également été réalisée sur le puits de Châteauguay, ce dernier puits ayant été particulièrement investigué car présentant des conditions naturelles non influencées par des activités de pompage voisin. Considérant en théorie un aquifère libre, poreux, homogène et associé à une recharge de 100 mm/an (c.-à-d. typique du Québec), la datation ^{14}C n'apparaît pas pertinente sur 100 m de profondeur. Les âges hydrauliques restant trop « jeunes » pour la gamme de datation ^{14}C (Figure 1.21). Or, vu le contexte de ces travaux focalisant sur l'investigation de la masse d'eau selon la profondeur en contexte d'aquifère rocheux fracturé, il n'est a priori pas possible d'anticiper les conditions de confinement (et donc les gammes de temps de résidence) de l'eau

souterraine seulement à partir de la nature des dépôts quaternaires au-dessus du roc. Compte tenu de la complexité appréhendée des réseaux de fractures, il serait possible que ces derniers induisent des conditions de confinement menant à des temps de résidence significativement plus élevés. Dans ce contexte d'étude en aquifère rocheux fracturé, la datation $^3\text{H}/^3\text{He}$ est donc accompagnée par la datation ^{14}C afin de contraindre, le cas échéant, les proportions d'eaux « modernes » et plus « anciennes » selon la profondeur dans les réseaux de fractures.

3.3 Investigation hydrogéochimique séquentielle d'aquifères rocheux fracturés des Basses-Terres du Saint-Laurent (article 3)

Résumé de l'article 3

Cette étude vise à l'investigation de la stratification verticale d'aquifères rocheux fracturés situés dans les Basses-Terres du Saint-Laurent (Québec, Canada), jusqu'à des profondeurs de 100 m. L'investigation hydrogéochimique est réalisée grâce au développement et à l'utilisation d'échantilleurs passifs pour l'eau souterraine, permettant la collecte de solutés pour la qualité de l'eau (ions majeurs) ainsi pour les traceurs non gazeux (^2H , ^{18}O , ^3H , ^{13}C et ^{14}C). Des échantilleurs passifs pour les gaz rares ont également été utilisés, tels que décrits par de précédents travaux. Les échantillonnages séquentiels sont couplés avec des mesures diagraphiques, nécessaires pour l'interprétation en ce qui concerne l'investigation verticale. La datation ^{14}C , ainsi que les isotopes stables de l'eau ne montrent pas la présence significative de masses d'eau « anciennes ». L'investigation avec les traceurs plus récents, ^3H , âges $^3\text{H}/^3\text{He}$, et quelques âges SF₆ et CFC-12 montrent la présence de masses d'eau modernes post 1960 (quatre puits sur six), ou en mélange binaire avec des contributions importantes, atteignant ou dépassant 75 % d'eau pré-1960 (deux puits sur six). Ces masses d'eau « modernes » ne suivent par ailleurs pas de stratification distribuée selon la profondeur et sont plutôt fonction de chaque site et varient peu, et de manière hétérogène selon les fractures pour chaque puits. Selon le système calcocarbonique et les isotopes du carbone, la majorité des masses d'eau investiguées sont dominées par l'interaction avec le CO₂ du

sol hérité lors de la recharge. La chimie des carbonates est par ailleurs marquée par les interactions avancées avec la matrice carbonatée et échanges cationiques. Les minéralisations les plus importantes sont dues à la présence de minéraux très solubles (gypse et apports salins) en zones stagnantes/peu perméables en profondeur et préférentiellement pour les puits pas ou peu drainés et hors de secteurs exploités. Les minéralisations de ces masses d'eau souterraine « modernes » n'apparaissent pas reliées au temps de résidence. L'ensemble des données collectées sur une fenêtre d'observation atteignant 100 m de profondeur suggérerait ainsi la présence des systèmes aquifères peu ou pas stratifiés, avec des écoulements « rapides » et mélangés, sans que des conditions de confinement soient clairement induites selon l'architecture des réseaux de fractures.

Depth-sequential investigation of the hydrogeochemistry of fractured aquifers of St-Lawrence Lowlands (Qc, Canada)

In preparation for submission to "Water" open access journal

G. Meyzonnat¹, F. Barbecot¹, J.A. Corcho-Alvarado², J-M. Lauzon³, R. McCormack⁴

¹Geotop-UQAM, Department of Earth and Atmospheric Sciences, Montréal, QC, Canada

²Spiez Laboratory, Federal Office for Civil Protection, Spiez, Switzerland

³TechnoRem Inc., Laval, QC, Canada

⁴Envir'Eau-Puits Inc., Lévis, QC, Canada

ABSTRACT

This study aims to investigate the vertical stratification of fractured aquifers located in the St-Lawrence Lowlands (Quebec, Canada), down to depths of about 100 m. The hydrogeochemical investigation is carried out through the development and the use of passive samplers for groundwater, allowing the collection of solute related to water quality (major ions) as well as non-gaseous tracers (^2H , ^{18}O , ^3H , ^{13}C and ^{14}C). Passive samplers for noble gases have also been used, as described and developed by other authors. Sequential sampling is coupled with borehole logging surveying, which is essential to discuss about the representativeness of sample's composition with the depth. Radiocarbon dating and stable water isotopes do not indicate the significant contributions of "old" and glacial water bodies. Investigation for modern waters (^3H , $^3\text{H}/^3\text{He}$, SF_6 and CFC-12 dating) report the presence of post-bomb water bodies for four wells among six, and in binary mixtures with contributions reaching or exceeding 75% of pre-bomb waters for (two wells). These modern water bodies do not follow depth distributed stratifications and are rather site-specific, with little variations at fractures for each well. According to the calco-carbonic system and the carbon isotopes, the majority of the investigated water bodies are dominated by the interaction with the soil CO_2 inherited during the recharge.

Carbonate chemistry is also marked by advanced interactions with the carbonate matrix, such as incongruous dolomitic-calcite dissolution and cationic exchange. The most important mineralization are induced by the presence of very soluble minerals (gypsum and saline inputs) in stagnant/low permeability zones at depth and preferably for wells that are not impacted by nearby pumping. The mineralization of these modern groundwater bodies does not appear to be related to residence time in aquifers. All the data collected would thus suggest the presence of aquifer systems with little or no hydrogeochemical stratification, with "modern" flows system. Within the range of depth surveyed, fracture networks are likely inducing confinement conditions, but waters still remain "modern" for most of the wellbores.

KEYWORDS

St-Lawrence Lowlands fractured aquifers, Long Screened Wellbores, Hydrogeochemistry, Passive Sampling, Major Ions, Tritium, Radiocarbon, Stable Water Isotopes, Noble Gases

1. INTRODUCTION

Resulting of water–soil and water–rock interactions, major ions hydrogeochemistry is always of great interest for hydrogeologists as it is closely linked to the quality of the groundwater. Through statistical regression of chemical trends (Stigter et al., 2008), hydrogeochemistry also provides useful information to decipher groundwater flow paths and hydrogeological contexts (Vincent Cloutier et al., 2006), as well as natural baseline composition (Edmunds W.M. et al., 2003). As it reflects inputs from recharge areas, as well as confinement conditions, hydrogeochemistry is also used in certain cases as a proxy for groundwater vulnerability (Mendizabal et al., 2011). Numerous studies on groundwater hydrogeochemistry have been carried out in Quebec and have improved the knowledge about groundwater/aquifer interactions and thus, allowed to better infer about the hydrogeological contexts (Charron, 1978; Vincent Cloutier et al., 2006; Savard, 2013). More recently, regional scales projects had been held for the most populated areas in Quebec, and were associated to extensive characterization of aquifers in Quebec (Larocque et al., 2018), many of which have focalized on groundwater geochemistry

(Blanchette et al., 2010; Benoit et al., 2014; Montcoudiol et al., 2014; Boucher et al., 2015; Ghesquière et al., 2015; Vautour et al., 2015; Saby et al., 2016; Walter et al., 2017; Beaudry et al., 2018; Chaillou et al., 2018). These have intensely increased the number and the quality of geochemical data available for describing both water quality and apprehended flow systems at the regional scale. Indeed, Bondu et al. (2020) made great use of the availability of such a large geochemical dataset and produced an exploratory analysis for assessing the sources and the distribution of naturally occurring contaminants (i.e. Fluoride, Barium Manganese and Arsenic) in southern Quebec's groundwater.

Hydrogeochemistry may be advantageously coupled with groundwater dating, as for understanding how water composition evolves through residence time in aquifers (Appelo & Postma, 2005) as well as for linking residence time with water quality (Saby et al., 2016). Groundwater dating has been in use for more than fifty years (Kazemi et al., 2006), as it also provides essential insights about recharge conditions (Cook & Herczeg, 2000) and sustainability of the resource, usually implying competition between natural renewal and anthropogenic withdrawn (Wachniew et al., 2016). For "modern" waters (0-60 years), the most commonly used tracers are tritium (Eriksson, 1963), $^3\text{H}/^3\text{He}$ pairing (Tolstikhin & Kamensky, 1969), CFCs (Thompson et al., 1974) and SF₆ (Busenberg & Plummer, 2000). For "older" waters (i.e. from few thousands to 30 000 year), the measurement of ^{14}C (Brinkmann et al., 1959) is largely performed. The timescale gap for dating groundwater of "intermediate" ages (i.e. from 50 to 1000 years) could be advantageously constrained with ^{39}Ar (Oeschger et al., 1974), but its usage still remains less frequent than the other tracers cited above, as few laboratories are available for ^{39}Ar analysis which remains costly. Although "age" terminology often is used in the field of groundwater dating, this notion has no real meaning (J Ch Fontes, 1983) because a groundwater sample is necessarily a mixture of water molecules that have spent various residence times in the aquifer (IAEA, 2013). Using a single tracer would compromise the relevance of groundwater dating since the mean age might not represent valuable information compared to the knowledge of "recent" and "older" proportion in groundwater. Given the great variety of hydrogeological contexts, the heterogeneous nature of the aquifers, the dating ranges that are different from one tracer to another, it

seems impossible to avoid the multi-tracing which would lead to more relevant dating results. The different tracers all have advantages and disadvantages (i.e. influence of excess air for all gases, extensive correction for ^{14}C dating, apprehended degradation and local pollution sources for CFCs). That constrain also frequently motivates the use of multitracing (Bartyzel & Rozanski, 2016). Thus, the state of the art of groundwater dating focus on evaluating the age distribution of the water sample by multi-tracing (Corcho Alvarado et al., 2007; Delbart et al., 2014; Alikhani et al., 2016) with subsequent analytical procedure involving flow and mixing models (Zuber, 1986; B. Jurgens et al., 2012; A. Suckow, 2012). Research involving groundwater dating has predominantly focused on porous and relatively homogeneous aquifers in static conditions (Smethie et al., 1992; Szabo et al., 1996; Cook & Solomon, 1997; Corcho Alvarado et al., 2007). Although it is rapidly emerging, research is less abundant for groundwater dating in the context heterogeneous / fractured aquifers (Shapiro, 2001; Kolbe et al., 2016), and/or in the context of disturbances from natural conditions due to intensive pumping related to the exploitation of the water resource (Dunkle-Shapiro et al., 1998; USGS, 2005; Visser et al., 2013). A recent global study by Jasechko et al. (2017) indicates that a large portion of the world's "accessible" groundwater volume is believed to be fossil (i.e. 42-85% of waters less than 1 km deep). But at the same time, half of the water samples in the latter study contained significant concentrations of tritium, indicating mixtures with contemporary waters, likely induced by intensive pumping that modifies the natural flow regimes, and solicits the recent (and renewable) water portions of aquifers (B. C. Jurgens et al., 2016). Given contemporary issues regarding the vulnerability of the resource to anthropogenic contamination, there is certainly a greater interest in carrying the emphasis on surveying "recent" waters (especially for temperate climates), rather than for "old" or even fossil water.

Hydrogeochemical studies held in Quebec have included, but not systematically, tracer data for ^3H and ^{14}C , some of which appeared as early as in the late 1970's in the Montreal area (Simard, 1977; Bériault, 1978). The most exhaustive groundwater dating investigations have included the collection and the interpretation for noble gases (Boucher et al., 2015; Vautour et al., 2015; Méjean et al., 2016; Saby et al., 2016), thus

allowing careful determination of $^3\text{H}/^3\text{He}$ ages by addressing terrigenic helium sources. Hydrochemistry coupling with groundwater dating mostly focused on regional scales in recent Quebec surveys, with two thirds of sampled wellbores concerning fractured aquifers. During these investigations, state-of-the-art procedures were followed by collecting groundwater samples at pumping total discharge, then representing the mixing of waters from all productive zones of the wellbore. When ^3H and ^{14}C data were available for these latter regional scale studies, strong evidence of mixing between recent and older water bodies within the aquifers were usually reported. Borehole logging investigations in these fractured aquifers were carried out in the region (Roy et al., 2011; Crow et al., 2013). But in the context of borehole logging, and apart from observations regarding water salinity, detailed relationship between water composition and residence time with vertical stratification remains relatively unexplored.

Some hydrogeological conditions may result in vertical stratification of the aquifer. Vertical stratifications are theoretically apprehended according to hydraulic ages for homogeneous aquifers (Vogel, 1967) and are reported in real cases for homogeneous sandy aquifers (Corcho Alvarado et al., 2007; Visser et al., 2013). Hydrogeochemical stratifications are also reported in heterogeneous contexts with successive aquifer/aquitard arrangements (Appelo & Postma, 2005; Mayo, 2010). The stratifications relate to residence times and/or groundwater composition but may go unnoticed in the case of conventional sampling of the mixing at a wellbore. In recent investigations, an example is given by Poulsen et al. (2019) and shows the importance of sequential sampling in the context of a fractured/heterogeneous aquifer.

One possible opportunity to investigate the hydrogeochemical stratification of aquifers is to make sequential use of passive samplers. The methodology proposed in this paper aims to develop and to test the relevance of passive sampling for solutes and tracers (major ions, ^2H , ^{18}O , ^3H , ^{14}C and ^{13}C , noble gases). Such sequential sampling at depths, combined with physical borehole logging, is tested to survey hydrogeochemical and flow patterns in long screened wellbores up to 100 m depth in fractured aquifers of the St-Lawrence Lowlands, Quebec. The passive sampling of noble gases was already shown to

be relevant in previous research by Gardner & Solomon (2009), and was indeed used in this study as it is especially adapted to sequential sampling at depths.

2. STUDY SITES

The study area is located in southern Quebec, within the geological region of the St. Lawrence Lowlands. The bedrock units are represented in **Figure 3.1** as a simplified version of the detailed mapping by Globensky (1987). The sedimentary bedrock consists of Cambrian sandstone of the Potsdam Group, Cairnside Formation, composed of quarzitic sandstone with 1-3% of plagioclase and microcline (St-Lazare and Ormstown wellbore). The Ordovician dolomite of the Beekmantown Group, Theresa and Beauharnois Formations, is composed of dolomite interbedded with sandstone, limestone and shales (Mirabel, Napierville and Hemmingford wellbores). Ordovician limestone of the Trenton Group, Tetreauville Formation, composed of limestone with shales joints (St-Roch wellbore). The Chateauguay wellbore is located in the transition zone between the Cairnside and the Theresa Formations. To the west, Abbotsford wellbores are located in the Appalachian Province, which consists of Cambrian bedrock of the Mawcock Formation, composed of red schists interbedded with limestone and sandstone. The geomorphology of Quebec is marked by glaciation-deglaciation phases, with unconsolidated sediments of glacial and post-glacial origin overlying the fractured bedrock. The nature of the unconsolidated sediments largely controls recharge and confinement conditions of the fractured aquifers (Nadeau et al., 2017). Confinement conditions at the location of the wellbores could be apprehended depending on the sediment overlay: unconfined condition for Abbotsford PO5 and Abbotsford-PO7 (5 and 8 m of sand with silt lenses), Hemmingford (0.6 m of till), Ormstown (2.1 m of till), Napierville P6 (5m of sand and gravel and 2 m of till), St-Roch (7.7 m of sandy till); semi-confined conditions for Mirabel (7.7 m of sandy deposits alternated with till); confined condition for St-Lazare (total of 62 m of sediments, mainly sands with silt lenses interlayered at the center by a 6 to 10 meters thick clayey till), Napierville-PO2 (total of 15.6 m of sediments, alternating with sands, till and with a silt layer of 6 m thick), Chateauguay (13.4 m of clay, 1 m of till). All investigated wellbores have a

diameter of 150 mm, are steel-cased within unconsolidated sediments, and the casing is anchored into the bedrock (generally more than 1 m in it). Boreholes are uncased below the steel tubing. Characteristics of the wellbores are depicted in the synthetic logging figures including steel casing lengths, total borehole depths and depths to the water table (Section 4.2.1).

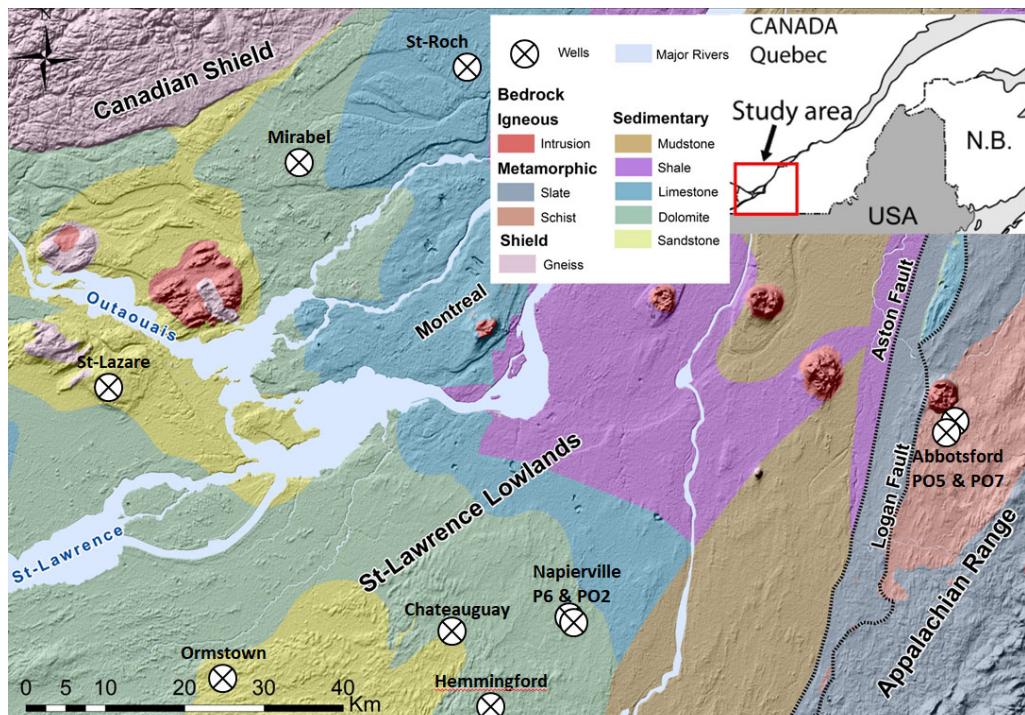


Figure 3.1 : Localization of the wellbores investigated and geological map

3. METHODS

3.1. Materials and techniques

3.1.1 General sampling procedures

Physical parameters (conductivity, pH) were measured for each groundwater samples by the day of the collection of the bottles (see Figure 3.2). Samples for major ions were collected in 125 mL PE bottles. Samples for cation were filtered on site using disposable 0.45 µm nitrocellulose filters and preserved with nitric acid, those for nitrates were preserved with sulfuric acid, using dedicated bottles provided by the Maxxam laboratory. All samples were kept at 4 °C until their analysis. Major cations (Ca, Mg, Na, K) and major anions (Cl, SO₄, NO₃), as well as other elements (Fe, Mn, F, Ba, Br, Si) were

analysed at the Maxxam Laboratory in Montreal (Quebec, Canada). Alkalinity was measured by Gran titration (Stumm & Morgan, 1996) at Geotop-UQAM laboratory by the day of the sample collection. Water samples for noble gases (He, Ne, Ar, Kr and Xe) were collected from pumping with 3/8-inch diameter, refrigeration-type copper tubes, sealed with metal clamps, following standard procedures described in Visser et al. (2014), and analysed at the Institute of Environmental Physics of the University of Heidelberg. He and Ne isotopes collected in passive sampling mode (**Section 3.1.3**) were analysed at the A.E. Lalonde Laboratory of the Ottawa University. Water samples collected for ^3H and ^{14}C were analysed at the Lalonde A.E. Lalonde Laboratory, and those for stable water isotopes (30 mL PE bottles) and ^{13}C (60 mL brown glass) were analysed at the Light Stable Isotope Geochemistry Laboratory at Geotop-UQAM. Usual precaution to avoid contact with atmosphere and/or remaining head space in bottles (i.e. for stable water isotopes and carbon isotopes) were taken following conventional procedures (IAEA, 1999, 2013). Water samples for SF₆ and CFC-12 were collected for Chateauguay wellbore only, by low flow sampling at depth (25, 37, 41 and 47 m) in 0.5 L stainless steel containers equipped with gas-tight Swagelok valves. These samples were analysed at the Institute of Environmental Physics of the University of Bremen. During the sampling, special care was taken to avoid pollution with the atmosphere and to remove air bubbles adsorbed inside the container surface by repeated shocks during purging (IAEA, 2006)

3.1.2 Groundwater passive sampling

Passive samplers were developed for the collection of non-gaseous solutes (major ions, ^2H , ^{18}O , ^3H , ^{14}C and ^{13}C). The principle is to collect water in samplers whose composition is in equilibrium with the water at a given depth in the wellbore. The samplers consist of 0.5 L Nalgene PE bottles with a 2.5 cm diameter open tygon tubing at the top (**Figure 3.2**). The samplers are pre-filled with distilled and degassed water to minimize unwanted pollution with solute introduced into the wellbore. Passive samplers are installed and centered at chosen depth by fixing them to a weighted line trolled down into the wellbore.

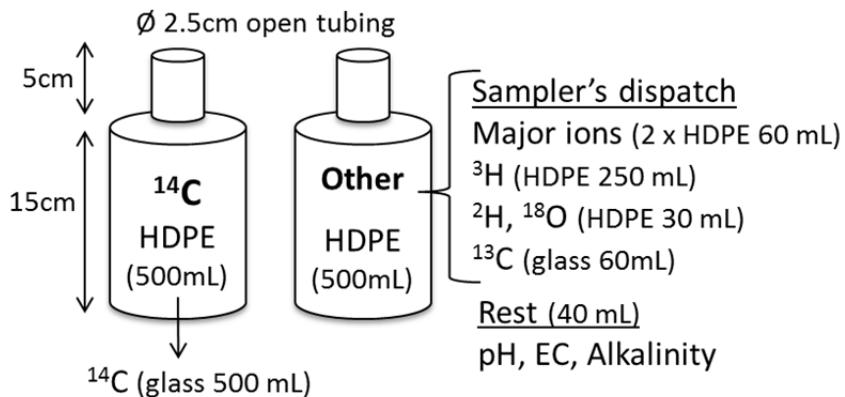


Figure 3.2 : Groundwater passive samplers and dispatching to subsequent vials for analysis

The water inside the upper tubing of the sampler was discarded as soon as collected out of the wellbore. This prevents the sampling of mix of the water that may occur when the sampler is trolled up to the surface. Once recovered, the samplers were immediately closed and their content was later distributed into different vials at the laboratory for subsequent analysis. Transfers into vials using syringes were carefully proceeded to minimize contact with the ambient air.

Equilibration tests were carried out in the laboratory with passive samplers (0.5 L) placed in water tanks (25 L) filled with different solutions prepared from Na-Cl and distilled water (**Figure 3.3**). The electrical conductivity of the water in the containers was monitored during re-equilibration. The first test intends to reproduce the *in-situ* usage, the sampler being filled with distilled water and having an initial temperature warmer than that of the tank (**Figure 3.3 a**). The second test is carried out under isothermal conditions for both containers, the sampler being filled with more highly mineralized water (**Figure 3.3 b**). The later test is designed to only solicit molecular diffusion transport from the sampler to the tank.

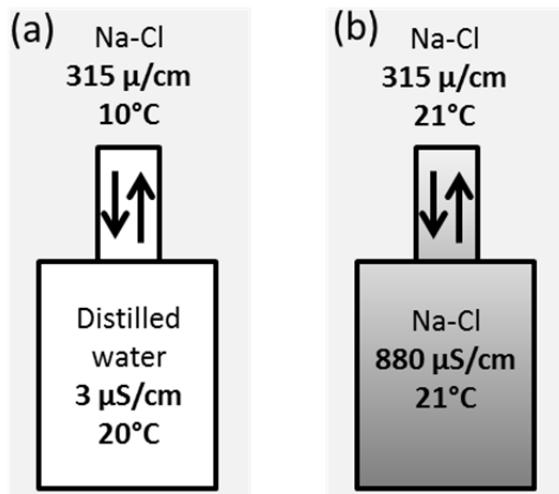


Figure 3.3 : Laboratory re-equilibration test for passive liquid samplers (a) a sampler filled with distilled water, as used in situ, (b) a sampler containing a solution more saline than that of its environment to only solicit molecular diffusion.

Results for laboratory equilibration are presented at **Section 4.1**. In situ testing at the Chateauguay wellbore, comparing the major ion concentrations from passive sampling with those from low flow pumping at the same depths is presented in **Section 4.2.3**.

3.1.3 Gas passive sampling

Passive gas samplers dedicated to noble gases applications were previously described in literature (William E. Sanford et al., 1996; Gardner & Solomon, 2009), and report equilibration times as short as 8 hours. Gas passive sampling was carried out using copper tubes (diameter 3/8", length 15 cm) whose edges are equipped with silicone membranes (length 10 cm, thickness 0.8 mm) allowing diffusion between the sampler headspace and groundwater (**Figure 3.4**). Rigid metal springs were placed at the inside of the silicone tubing to prevent flattening under hydrostatic pressure at depth, and to maintain surface exchange needed for molecular diffusion. Once recovered from the well, the tubes were sealed with metal clamps (**Figure 3.4**) to preserve them prior to analysis. This protocol allowed the collection of 7 mL of gas for each sample.

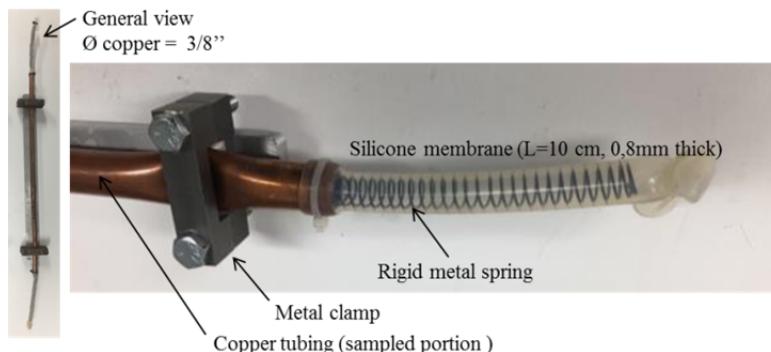
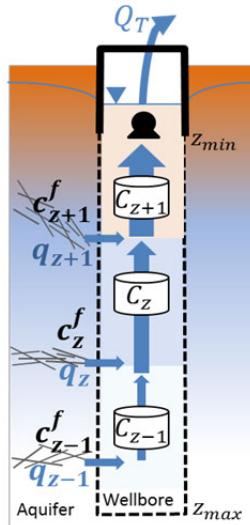


Figure 3.4 : passive samplers for noble gases and sealing clamps

3.1.4 Passive sampler's placement and their representativeness

In the context of heterogeneous aquifers (implicitly including fractured aquifers), sequential passive sampling would benefit to be preceded by borehole logging investigations (G. Meyzonnat et al., 2018; Poulsen et al., 2019). This is allowing to address the distribution of the productive zones (**Equation 3.1**), as well as to identify the occurrence of passive flows, if any. Passive samplers placement is determined by the position of water inflows into the wellbore, downstream of each of them according to the flow direction in the water column (**Figure 3.5**). When the sampler is located outside of a mixing zone, the sampler directly collects the water composition associated to the fracture (i.e. $C_{z-1} = C_{z-1}^f$, **Figure 3.5**). When the sampler is located within a mixing zone, the composition collected represents the mixing of upstream productive zones. Within mixing zones, the water composition relative to each fracture (C_z^f) can be calculated by deconvoluting the compositions collected at adjacent samplers (**Equation 3.2**).



$$Q_T = \sum_{z_{max}}^{z_{min}} q_z \quad (3.1)$$

$$q_z^f = \frac{(q_z + q_{z-1}) c_z - q_{z-1} c_{z-1}}{q_z} \quad (3.2)$$

Figure 3.5 : Representation of flow conditions and sampler's placement in a long screened wellbore during pumping

3.1.5 Low flow groundwater sampling at depth

For the Chateauguay well specifically, groundwater samples were taken at given depths by micro-pumping. The purpose of this sampling was to validate the efficiency of the passive water samplers by comparing these duplicate measurements taken at the same depths. The sampling line consisted of 5 mm diameter HDPE tubing and the pumping was ensured from a peristaltic pump operated from the ground surface. Prior to sampling, the tubing was rinsed with distilled water. When sampling at low flow rates (0.5 L/min), the flushing duration for each line was adjusted to ensure that at least four times the volume of the tubing was flushed out before sampling.

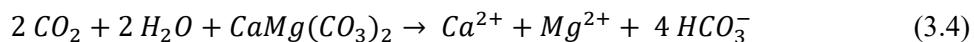
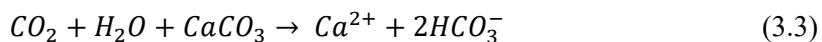
3.2. Hydrogeochemistry theoretical background

3.2.1 Major ions

Major ions (Na^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , K^+ , HCO_3^- , Cl^- , SO_4^{2-}) inherited from water-rock interactions define the groundwater types and its quality. Water type notations include predominant cation and anion, as well as those representing more than a quarter of the charge (i.e. the Ca, Mg - HCO_3 notation stands for a calcium bicarbonate sample with $\text{Mg} \geq 25\%$ of the anions, **Annexe B1**). For fractured carbonate aquifers located within St-Lawrence Lowlands, reported dominant hydrogeochemical processes are carbonate weathering, dissolution/inputs of highly soluble minerals (i.e., gypsum), sodium chloride

inputs from the Champlain Sea episode and Ca-Na cationic exchanges (Blanchette et al., 2010; Benoit et al., 2014; Vautour et al., 2015; Saby et al., 2016; Beaudry et al., 2018; Chaillou et al., 2018). For regions located within the Canadian Shield, silicate weathering is also involved as a significant hydrogeochemical process (Montcoudiol et al., 2014; Ghesquière et al., 2015; Walter et al., 2017).

The dissolution of carbonates results from the solubilisation of CO₂ which produces carbonic acid. The latter is neutralized along with the dissolution of these minerals. Dissolution for calcite and dolomite are respectively given as examples in **Equations 3.3** and **3.4**. The net balance being the production of bicarbonates and cations, i.e. Ca²⁺ for the dissolution of calcite, as well Ca²⁺ and Mg²⁺ for dolomite (Appelo & Postma, 2005).

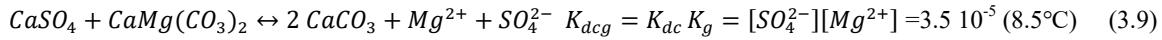
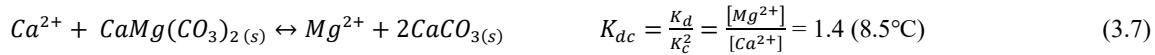
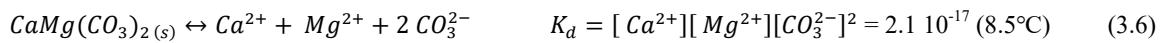


In combination with these latter processes, dissolved inorganic carbon (DIC = H₂CO₃ + HCO₃⁻ + CO₃²⁻) speciation is governed by two weak acid-base equilibria (K₁ = HCO₃⁻ × H⁺ / H₂CO₃; K₂ = CO₃²⁻ × H⁺ / HCO₃⁻). Highest CO₂ partial pressures at the recharge are derived from the decomposition of organic matter in soils (ranging from 3 000 to 10 000 ppm, 10^{-2.5} to 10^{-1.5} atm.), while those in the atmosphere are much lower (400 ppm, 10^{-3.4} atm.) (Gillon et al., 2009; Clark, 2015).

For systems open to CO₂, the carbonic acid concentration is replenished and allows the carbonates to dissolve until the saturation is reached. If the system is closed, the initial supply of CO₂ at the recharge is not replenished and the dissolution of the carbonates is associated to the neutralization of the carbonic acid. The calculation of the CO₂ partial pressure (pCO₂_{eq}) for the water sample allows discussing about aquifer openness towards the soil CO₂.

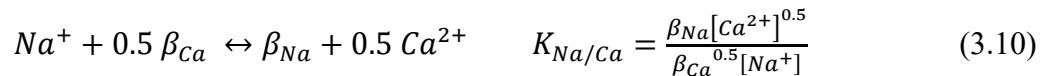
In the context of this study, carbonates include calcareous and dolomitic materials in variable proportion in the St. Lawrence Lowlands bedrock (Globensky, 1987) such as for the Beekmantown and Trenton Group, and Appalachian's Mawcock Formation. Sandstone of the Potsdam Group, Cairnside Formation, is mainly composed of quartzite

with about 1 to 3% of plagioclase (Globensky, 1987), which are not soluble minerals compared to carbonates. Quaternary unconsolidated sediments would be a major source of carbonates, notably in tills (V. Cloutier et al., 2010) which are widespread sediments in Quebec's glacial geomorphology (Lamothe, 1989). If the dissolution of the dolomite occurs in a solution already saturated with respect to calcite, the release of calcium induces the precipitation of calcite, referring to the incongruent dissolution of dolomite, whose equilibrium is defined by Mg/Ca ratio (**Equation 3.7**). Compared to carbonates, the solubility of gypsum (**Equation 3.8**) is very high (i.e. $K_c = 3.9 \cdot 10^{-9}$ and $K_g = 2.5 \cdot 10^{-5}$ at 8.5°C), and is much faster. But as it releases calcium, the dissolution of gypsum impacts carbonate equilibria, and may induce the precipitation of calcite, dolomite, as well as to drive the incongruous dissolution of dolomite (**Equation 3.9**).



Ca-Na and Mg-Na cation exchange occurs when groundwater interacts with clay minerals that have a high cation exchange capacity (CEC). When fresh groundwater interacts with sodium-bearing clay minerals (typically marine clays), calcium and magnesium are preferentially adsorbed onto the clays, inducing the release of sodium in the groundwater (Appelo & Postma, 2005). The equilibrium constant for Ca-Na cation exchange (**Equation 3.10**) is a function of the fractions of cation adsorbed on the clays (i.e. β_X is the meq/L fraction of cation/CEC relative to pore water) and to the cation concentrations in solution. Values of equilibrium constants ($K_{Na/Ca}$, $K_{Na/Mg}$) as well as CEC are available in the literature. However, the adsorbed cationic fractions must be determined by dedicated experiments, otherwise, these equilibria cannot be quantified. By causing depletion of Ca^{2+} and Mg^{2+} in solution, cation exchange may enhance the carbonate dissolution until its saturation is eventually restored. The effect of the cation

exchange thus favours the mineralization of the water, by simultaneously increasing Na⁺ and enhancing the dissolution of carbonates. Cation exchange occurrence can be evaluated according to the ratio Na/Cl>0.86 in groundwater, as the ratio expected from saline inputs from sea-water origin being Na/Cl≈0.86 (D.O.E., 1994).



In the geomorphological context of Quebec, Na-Cl inputs may be inferred from the mixing with confined brackish old water and/or pore water in low-permeability matrices and aquitards (V. Cloutier et al., 2010), from long-term diffusive fluxes by marine clay freshening (Ghesquière et al., 2015). Halite is extremely soluble ($K_{Na-Cl} = 36.3$ à 8.5°C) and not limited by calco-carbonic equilibria.

Cations (Ca²⁺, Mg²⁺, Na⁺ and K⁺) can also originate from the weathering of silicate minerals. Among them, calcic and sodic plagioclase are the most soluble. The weathering of silicate is a slow process compared to carbonates weathering. Significant changes or dominance in water chemistry due to silicate weathering are usually found for arid climate, or where the duration of water-rock interaction increases, and with the absence of carbonates (Appelo & Postma, 2005).

3.2.3 Carbon isotopes and radiocarbon dating

Carbon-14 is used for the dating of dissolved inorganic carbon (DIC) in groundwater over a time scale of up to 30 000 years (Han et al., 2012). The dating principle is based on the radioactive decay of ¹⁴C in the sample (¹⁴C_{sample}) relative to the activity at the recharge (¹⁴C₀), considering a half-life (t_{1/2}) of 5730 years (**Equation 3.11**). Despite the theoretical simplicity of the radioactive decay, groundwater ¹⁴C dating is rather delicate because DIC undergoes many interactions with the carbonate matrix, requiring corrections towards the apparent ¹⁴C activity that is measured.

$$^{14}\text{C age} = \frac{t_{1/2}}{\ln 2} \ln \left(\frac{^{14}\text{C}_0}{^{14}\text{C}_{sample}} \right) \quad (3.11)$$

Radiocarbon atmospheric activity has not been constant over time, either reaching 160 pMC (percent modern carbon) 25 000 years ago due to variations in the Earth's geomagnetic field (Stuiver, 1961), or more recently as a result of atmospheric nuclear testing, reaching nearly 175 pMC around 1965 (Cook & Herczeg, 2000). Given the radioactive decay of ^{14}C over a half-life of 5 730 years, only recent variations would significantly impact the ^{14}C ages of waters collected to date. However, recent studies suggest that the carbon remanence associated with the recycling of organic matter in soils is considerable (Tipping et al., 2010; Gillon et al., 2012), contributing to maintain average ^{14}C activity in soils around 100 pMC. According to the latter, the ^{14}C activity at the recharge in this work is considered constant and equal to 100 pMC.

The use of models is intended to correct $^{14}\text{C}_0$ activity for dilution and isotope exchange processes related to the evolution of the DIC into a carbonate aquifer. The calco-carbonic system is represented in **Figure 3.6** (modified from Han et al. (2012)), where "g", "s" and "aq" represent soil gas, solid carbonate matrix and DIC, Me^{2+} represents Ca^{2+} or Mg^{2+} .

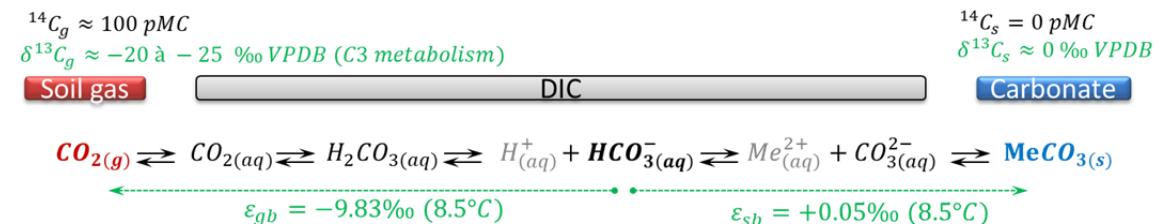


Figure 3.6 : Reactions of dissolution, exchanges and isotopic fractionations of DIC involved in correction models for radiocarbon dating

The model of Tamers (1975) considers the dilution carbon from soil CO_2 ($^{14}\text{C}_g \approx 100 \text{ pMC}$) with "dead" carbon ($^{14}\text{C}_s \approx 0 \text{ pMC}$) from carbonates (**Equation 3.3**). $^{14}\text{C}_0$ Tamers is the corrected activity of the sample, $^{14}\text{C}_g$ and $^{14}\text{C}_s$ are the activities of the gas and the carbonate matrix, "a" and "b" are the carbonic acid and bicarbonate concentrations (**Equation 3.12**). Pearson's model (Ingerson & Pearson, 1964) considers the dilution previously described by Tamers, but constrain it with the ^{13}C composition of the sample (δ). ^{13}C endmembers are those for the soil gas (δ_g) and carbonate matrix (δ_s) (**Equation 3.13**). Subsequent models add a correction term (k) to the Tamers model for

isotope fractionation between reservoirs (**Equation 3.14**). Mook (1972) model (**Equation 3.15**) considers complete or partial equilibration between the soil CO₂ and the DIC. The model of Jean - Charles Fontes & Garnier (1979) (**Equation 3.16**) describes the isotope exchange between the DIC and the CO₂ (« F&Gg »; $\varepsilon = \varepsilon_{gb}$ gas/bicarbonates) or with the carbonated matrix (« F&Gc »; $\varepsilon = \varepsilon_{bs}$ bicarbonates/matrix). The model developed more recently by Han et al. (2012) ("H&P", **Equation 3.17**) differs from the model of Jean - Charles Fontes & Garnier (1979) by considering that isotope exchanges occur between the three endmembers (gas, DIC and carbonate matrix) and that gas/carbonate exchanges occur via the DIC. The dominant exchange with CO₂ or with the carbonate matrix can be considered (i.e. indices "x= g" or "x= s" in **Equation 3.17**; "a0" and "b0" refer to carbonic acid activities and bicarbonate at the Tamers point). When exchange with CO₂ is considered, the latter model provides results similar to Mook's model.

$$^{14}C_{0\text{ Tamers}} = [(a + 0.5b)^{14}C_g + 0.5b^{14}C_s]/(a + b) \quad (3.12)$$

$$^{14}C_{0\text{ Pearson}} = [(^{14}C_g - ^{14}C_s)(\delta - \delta_s)/(\delta_g - \delta_s)] + ^{14}C_s \quad (3.13)$$

$$^{14}C_{0\text{ corrected}} = ^{14}C_{0\text{ Tamers}} + k \quad (3.14)$$

$$k_{Mook} = 0.5(^{14}C_g - ^{14}C_s)[(a + b)\delta - (a + 0.5b)\delta_g - 0.5b\delta_s]/[0.5(\delta_g - \delta_s) - \varepsilon_{gb}](a + b) \quad (3.15)$$

$$k_{F\&G} = (^{14}C_g - ^{14}C_s)[(a + b)\delta - (a + 0.5b)\delta_g - 0.5b\delta_s]/[\delta_g - \varepsilon - \delta_s](a + b) \quad (3.16)$$

$$k_{H\&P} = (^{14}C_X - ^{14}C_{bo} - 0.2\varepsilon_{Xb})\left(\delta - \frac{a}{a+b}\delta_{a0} - \frac{b}{a+b}\delta_{b0}\right)/(\delta_X - \delta_{b0} - \varepsilon_{Xb}) \quad (3.17)$$

All the above correction models have been tested because they represent "extreme" behaviors among all the existing models in the literature. The investigated wells were not sampled along the same flow lines, but at different locations having non-identical hydrogeological conditions. As such, none of the wells can be used as a reference for recharge to the other wells. For these reasons, the use of NETPATH (El-Kadi et al., 2011) was not considered because its use is only advantageous for mass balance adjustment between at least two wells, a priori located on the same flow line.

One of the difficulties in modeling radiocarbon ages is that the correction models (especially those considering "dominant" influence of CO₂, as defined in **Figure 3.22**) are very sensitive to the compositions of soil CO₂ ($\delta^{13}C_g$) that are considered. However,

$\delta^{13}\text{C}_g$ have not been measured at the different sites investigated and remain unknown. The literature reports signatures in the range of $\delta^{13}\text{C}_g = -20$ to -26 ‰ VPDB for C3 metabolism vegetation, and $\delta^{13}\text{C}_g = -10$ to -15 ‰ VPDB for C4 vegetation (Jean - Charles Fontes & Garnier, 1979; Appelo & Postma, 2005; Han et al., 2012). Studies carried out in the St. Lawrence Lowlands recall the predominant and endemic C3 vegetation (woodlands, prairies) associated with a typical $\delta^{13}\text{C}_g = -23 \text{ ‰}$ VPDB for soil CO_2 (Vincent Cloutier et al., 2006). The influence of enriched composition due to recent corn cultivation (C4 metabolism) is also possible (Cane & Clark, 1999). Isotopic compositions for the carbonate matrix are less uncertain and have been set at $^{14}\text{C}_s = 0 \text{ pMC}$ and $\delta^{13}\text{C}_s = 0 \text{ ‰}$ VPDB considering typical Ordovician carbonate compositions (Keith & Weber, 1964). Fossil organic matter content in the sedimentary bedrocks studied in this western region of the Saint-Lawrence Lowlands (sandstone, dolomite, limestone) is insignificant, so depleted contribution of $\delta^{13}\text{C}_s$ due organic matter is unlikely. For the reasons mentioned above, the radiocarbon dating methodology involves two steps, starting with the distinction of the systems involved with a graphical method (Han et al., 2012), followed by the calculation of the radiocarbon ages, once the choice for correction models is justified.

3.2.4 Noble gases and $^3\text{H}/^3\text{He}$ dating

3.2.4-1 Gas solubility equilibrium in water and excess air

Gas-water partitions are temperature dependent and are defined by dimensionless volatility coefficients (H_i , the inverse of Henry's solubility coefficient $K_i = 1/H_i$), calculated from corresponding Bunsen coefficients at **Equation 3.18** (Sander, 2015). Gas solubility equilibrium between water (C_{iw}^{eq}) and atmosphere (C_{ig}^{atm}) is then given at the **Equation 3.19**, with H_i^r calculated at the temperature at the recharge.

$$H_i = \frac{T^{STP}}{\alpha_{Bunsen} T} \quad (3.18)$$

$$C_{ig}^{atm} = H_i^r C_{iw}^{eq} \quad (3.19)$$

Excess air (EA) in groundwater is considered to occur in very most of the cases in natural environment (Chambers et al., 2018) and is described in details by R. Kipfer et al. (2002). EA implies that gas concentration in groundwater (C_{iw}) is different, often greater, than those at equilibrium with the atmosphere (C_{iw}^{eq}). Oppositely, the production of gases in the subsurface (i.e. CO₂, N₂, CH₄) would lead to degassing, which may lower gas concentration from atmospheric equilibrium (J. Lippmann et al., 2003). Recent research specifically focused on oxygen depletion model (OD) at the recharge due to microbial decomposition of organic matter in soils (Hall et al., 2005). Excess air and/or degassing can be generally computed by solubility or diffusion controlled models. Most common models are the UA model (Unfractionated Air excess, Andrews & Lee (1979)); the PD model (Partial Degassing, (Stute, 1989); the PR model (Partial Re-equilibration, Stute et al. (1995)); the OD (Oxygen Depletion, Hall et al., (2005)) and the CE model (Closed-system Equilibration, Aeschbach-Hertig et al. (2008)). In this work, CE, DO, PD and UA models are investigated.

As it accounts for an increase of partial pressure of noble gases in soils compared to those of the atmosphere, the DO model allows new insights to be discussed about the estimation of noble gas temperature (NGT) at the recharge (Castro et al., 2007; Sun et al., 2008; Freundt et al., 2013). The concentration of water in equilibrium with the gas phase for the OD model is given at **Equation 3.20**, considering a pressure adjustment factor (P_{OD}) towards the air-saturated water (ASW) that accounts for the loss of O₂ in the unsaturated zone. Usual unfractionated excess air component (UA) is depicted by V^A (g/gH₂O incorporated excess air); and Z_i (ⁱth noble gas volume fraction of the in dry air).

$$C_{iw} = C_{iw}^{eq} P_{OD} + V^A Z_i \quad (3.20)$$

The CE model is also mainly considered for the computation because of its versatility to model excess air at recharge as well as degassing within the subsurface. The CE model considers that air entrapped in water at the recharge may only partially dissolve, leaving a remaining free gas phase in groundwater which leads to a new equilibrium between water and remaining bubbles. The concentration of water in equilibrium with the gas phase for

the CE model is given at **Equation 3.21**, considering the volatility coefficient at the temperature of the recharge. A is the initial volume ratio of gas in water (V_a/V_w) and B is the final volume ratio (V_b/V_w). With fractionation factor ($F = B/A$), the CE model is expressed with parameters A and F. Setting $A > 0$ and $B = 0$ ($F = 0$) lead to the UA model. Excess air with fractionation is modeled with $B < A$ ($0 \leq F \leq 1$) and degassing with $B > A$ ($F > 1$).

$$C_{iw} = C_{iw}^{eq} \frac{1+AH_i^r}{1+BH_i^r} = C_{iw}^{eq} \frac{1+AH_i^r}{1+FAH_i^r} \quad (3.21)$$

The placement of a passive gas sampler in the well induces a subsequent equilibrium between the gas in the sampler (C_{ig}^s) and the groundwater (C_{iw}), taking into account temperature and existing excess air, if any. The dissolved gas concentration in the water from the sampler is calculated from the corresponding volatility at the water temperature with depth in the well (**Equation 3.22**).

$$C_{iw} \left[\frac{ccSTP}{gH_2O} \right] = C_{ig}^s \left[\frac{cc}{cc} \right] / H_i^s \quad (3.22)$$

3.2.4-2 Sources of helium and their distinction

Atmospheric helium has a constant composition (${}^3\text{He}/{}^4\text{He} = R_{atm} = 1.386 \cdot 10^{-6}$ Clarke et al. (1976)). A slight fractionation occurs for water in equilibrium with the atmosphere ($R_{eq} = 1.36 \cdot 10^{-6}$, Benson & Krause (1980)). Helium from atmospheric in groundwater include water equilibrated concentration (He_{eq}) and the excess air (He_{ea}). Terrigenic helium (R_{terr}) have distinct sources, the crustal ratio being low (e.g. $R_{crust} \approx 2.0 \cdot 10^{-8}$ Peeters et al. (2003) and $R_{crust} \approx 1.66 \cdot 10^{-8}$ for St-Lawrence Lowlands, Pinti et al. (2011)), the mantle source being rich (i.e. $R_{man} \approx 1.2 \cdot 10^{-5}$ Craig (1981)). The proportion of terrigenic ${}^4\text{He}$ (${}^4\text{He}_{terr}$) in the samples (${}^4\text{He}_{sample}$) is calculated by subtracting the portion of atmospheric origin (${}^4\text{He}_{eq+ea}$) (**Equation 3.23**).

$${}^4\text{He}_{terr} = {}^4\text{He}_{sample} - {}^4\text{He}_{eq+ea} \quad (3.23)$$

The distinction of helium sources can be visualized according to the mixing between the atmospheric/terrigenic sources according to ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ and $\text{Ne}/{}^4\text{He}$ ratios (R Kipfer et al.,

1994). The contribution of the different ${}^3\text{He}$ sources, necessary to determine the concentrations of ${}^3\text{He}_{\text{tri}}$, is better evaluated using a Weise diagram (Weise & Moser, 1987). The Weise diagram is based on **Equation 3.24**, where the intercept (b) represents R_{terr} of the sample.

$$\frac{{}^3\text{He}_{\text{sample}} - {}^3\text{He}_{\text{ea}}}{{}^4\text{He}_{\text{sample}} - {}^4\text{He}_{\text{eq}}} = \left(R_{\text{eq}} - R_{\text{terr}} + \frac{{}^3\text{He}_{\text{tri}}}{{}^4\text{He}_{\text{eq}}} \right) \frac{{}^4\text{He}_{\text{eq}}}{{}^4\text{He}_{\text{sample}} - {}^4\text{He}_{\text{ea}}} + R_{\text{terr}} \quad (3.24)$$

$$\text{Y} = \text{a} \quad \text{X} + \text{b}$$

For $\text{X}=0$, any ordinate (Y) above the crust endmember is associated to mantle helium contributions (${}^3\text{He}$ enriched). For $\text{X}=1$, any ordinate above the atmospheric endmember is associated to tritiogenic helium (Weise diagram is given in the result section, **Figure 3.25**). ${}^3\text{He}_{\text{tri}}$ compositions are calculated, subtracting the atmospheric and terrigenic contributions in the sample (**Equation 3.25**, Peeters et al. (2003)). R_{terr} for each sample is evaluated according to the interpretation of the Weise diagram.

$${}^3\text{He}_{\text{tri}} = {}^3\text{He}_{\text{sample}} - {}^3\text{He}_{\text{eq+ea}} - {}^4\text{He}_{\text{terr}} R_{\text{terr}} \quad (3.25)$$

3.2.4-3 ${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$ groundwater dating

Tritium undergoes radioactive decay with a half-life ($t_{1/2}$) of 12.43 years to produce stable ${}^3\text{He}_{\text{tri}}$. Tritium is produced naturally in the atmosphere as a result of the bombardment of nitrogen by cosmic rays. Tritium is also associated with anthropogenic sources, notably as a result of thermonuclear testing in the atmosphere during the 1950s and the 1960s (i.e. maximum of more than 3 000 TU in 1963). The contemporary (2019) atmospheric tritium content for the northern hemisphere is in the order of 10 TU (B. Jurgens et al., 2012). Tritium dating method (Nir, 1964) considers the radioactive decay constant of tritium ($\lambda=\ln 2/t_{1/2}$), and involve the knowledge of initial tritium content at the recharge (${}^3\text{H}_0$, **Equation 3.26**). The ${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$ dating method (Tolstikhin & Kamensky, 1969) is calculated from the measured ${}^3\text{H}$ and estimated ${}^3\text{He}_{\text{tri}}$ content (**Equation 3.27**), thus not requiring the knowledge of tritium content at the recharge. This latter method implicitly considers that groundwater evolves in a closed system in which ${}^3\text{He}_{\text{tri}}$ accumulates.

$$\tau_{{}^3\text{H}} = \lambda^{-1} \ln \left(\frac{{}^3\text{H}_0}{{}^3\text{H}} \right) \quad (3.26)$$

$$\tau_{^{3}H-^{3}He} = \lambda^{-1} \ln \left(\frac{^{3}He}{^{3}H} + 1 \right) \quad (3.27)$$

4. RESULTS

4.1 Passive sampler testing in laboratory

When the sampler is filled with warmer distilled water, as used *in situ* (**Section 3.1.2**), equilibration with the water tank is achieved within 4 hours (**Figure 3.7 a**). When only molecular diffusion is solicited (**Section 3.1.2**), equilibration is only achieved after about 20 days (**Figure 3.7 b**).

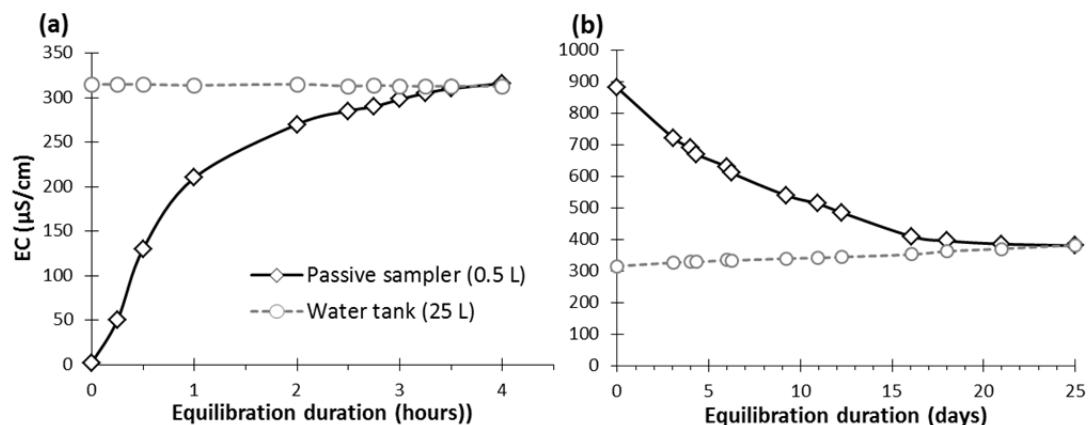


Figure 3.7 : Equilibration results in laboratory: (a) conditions as implemented *in situ* (samplers filled with warmer distilled water), (b) equilibration soliciting only molecular diffusion (isothermal experience with higher mineralization into the sampler)

Equilibration duration that aims at molecular diffusion (**Figure 3.7 b**) is comparable to pure diffusive transport of Na-Cl in a static water column (**Figure 3.8**), as calculated considering $D_{\text{NaCl}}^* = 7.9 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ at 20°C (Zogzas & Maroulis, 1996). The latter calculation indicates that transport by diffusion over a distance comparable to the height of the sampler (i.e. 15 cm) becomes significant only after 20 days.

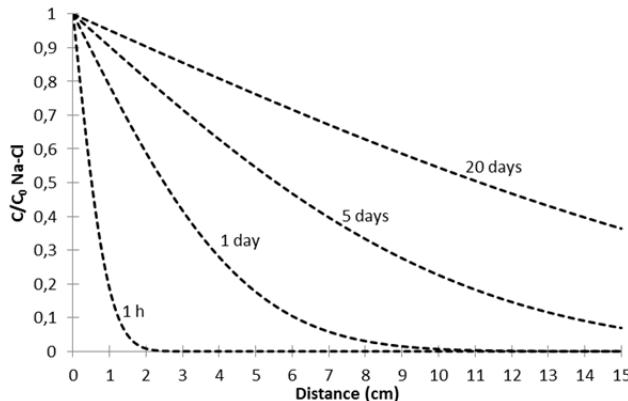


Figure 3.8 : Theoretical breakthrough curves for the transport of Na-Cl by molecular diffusion in stagnant water at 20°C

Fast equilibration of the samplers, as used similarly to the *in-situ* protocol (**Figure 3.7 a**) suggests that transport by molecular diffusion cannot be dominant. The test (**Figure 3.7 b**) and the modeling (**Figure 3.8**) about molecular diffusion suggest equilibration duration of more than 20 days, much longer than hours (**Figure 3.7 a**). Such fast equilibration would be rather driven by natural convection (Spitler et al., 2016), depending on slight differences of fluid densities due to different temperatures and/or solute concentrations. The transport mechanism relates to the development of upwards convection currents from the inside of the sampler (warmer and less mineralized water) towards the water tank, and simultaneously compensated by downwards convection currents from the water tank (colder and more mineralized water). These convection currents ultimately result in the rapid homogenization of the sampler with its environment. Such convective transport would always be solicited for *in-situ* conditions as the samplers are pre-filled with warmer distilled water ($T \geq 15^\circ\text{C}$ as fieldwork was always performed during summer and fall), compared to groundwater which is necessarily more mineralized and colder all year long (7 to 9°C in Quebec).

4.2 Sampling conditions at depths in long screened wellbores

The investigation of aquifer stratification is implemented in long screened wellbores (e.g. exceeding 50 m depth) in order to report, if occurring, the largest possible ranges for groundwater dating and geochemical compositions with depth. This excluded wellbores in granular aquifers, whose screens are often installed at shallower depths, and over

relatively short intervals (i.e. screens usually less than 5 m long), considerably limiting the potential for investigation regarding vertical stratification.

4.2.1 Borehole logging and samplers placement in wellbores

The characterization of the productive zones distribution was carried out by borehole logging, using spinner flowmeter and optical surveys, with a particular focus on high-resolution temperature sensing. The summary of hydraulic characterizations (total well depth, casing length, depth to the water table, flow distribution), obtained from the pumping of all wellbores is shown in **Figures 3.9 and 3.10**. Details about borehole logging are described in previous work (G. Meyzonnat et al., 2018; Guillaume Meyzonnat et al., 2019). Among the ten wells that were accessible for this study, the first logging surveys (without pumping) revealed the occurrence of flows already occurring in six wells (**Figure 3.9**). Given the high flow rates measured, Napierville PO2, St-Roch, Mirabel and Ormstown wells are certainly influenced by nearby municipal pumping, inducing forced drainage through networks of interconnected fractures. For Napierville P6 and Hemmingford wells, flows in static conditions were not quantified by spinner flowmeter, but only with temperature sensing. For Napierville P6, similar temperature profiles under static and pumping conditions (discharge rate set at 130 L/min) suggest high flows rates, which would certainly be influenced by neighbouring pumping. For Hemmingford, the differences between static and pumping conditions were drastically different, suggesting lower rates and the occurrence of passive flows from natural origin. High-resolution temperature profiling for Chateauguay, St-Lazare, Abbotsford PO5 and PO7 reported the absence of “passive” or “active” flows, the latter having stagnant water columns in static conditions (**Figure 3.10**).

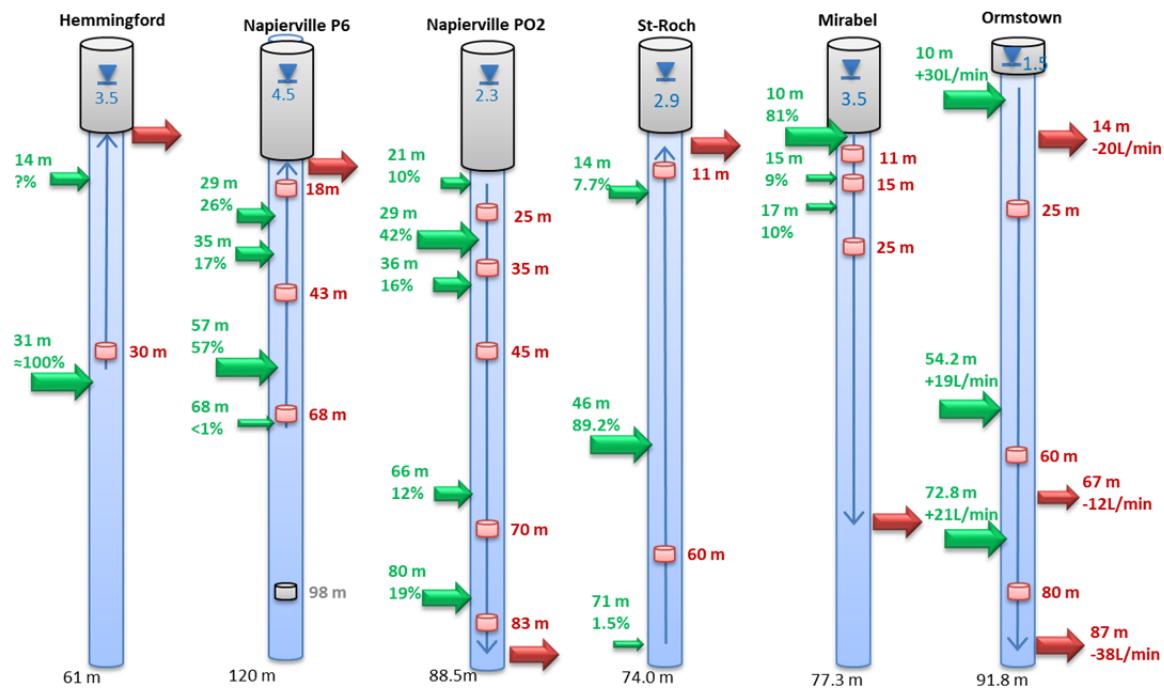


Figure 3.9 : Borehole logging results for well influenced by permanently occurring flows. Flows in and out from the wellbores are depicted by green and red arrows. Red or grey color for sampler's depth refers to flowing or stagnant water zones.

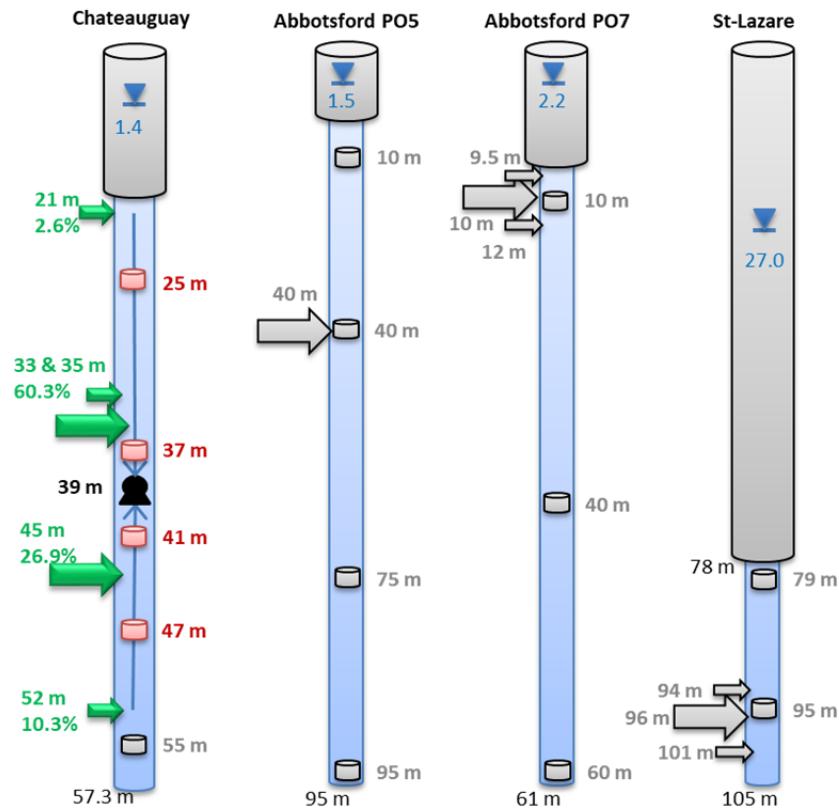


Figure 3.10 : Placement of passive samplers for wells having stagnant water column. Flows for Chateauguay were imposed by a permanent low flow pumping. Flows into the wellbore are represented by green arrows. Grey arrows represent the position of fractures identified from pumping tests. Red or grey color for sampler's depth refers to flowing or stagnant water zones.

For the Chateauguay wellbore, inflow distributions are inferred from complete logging survey during pumping tests. The flowing situation shown for Chateauguay corresponds to the one imposed by the low flow pumping at 39 m depth implemented to constrain water fluxes during sampler's equilibration.

4.2.2 Passive sampling representativeness towards fluxes conditions

The Chateauguay well has the most interesting investigation potential over all the wells investigated. The latter is not influenced by nearby pumping nor natural passive flows, and has fractures relatively well distributed with the depth. Chateauguay well was therefore more intensively sampled for geochemistry, and accompanied by a low flow pumping of 1 L/min at 39 m depth (**Figure 3.10**). This system was used for constraining the water fluxes during the 6-days of the passive sampling. Low flow pumping was

ensured by a stand-alone station comprising a submersible pump powered by a solar panel (**Figure 3.11**). This procedure allowed the calculation of water composition at each fracture by deconvolution from those collected by the passive sampling (**Equation 3.2**).



Figure 3.11 : Stand-alone low flow pumping system with solar panel.

For the wellbores influenced by neighbouring pumping, permanent flow rates were all higher than 20 L/min. Considering such high flow rates, and the impossibility to ensure that they would remain constant over time during sampling, it was not possible to constrain them with the stand alone pumping system which has a limited power. It was then impossible to ensure constant water composition within the mixing zones of these wellbores (i.e. those presented at **Figure 3.9**). Temperature surveys were immediately taken following the passive samplers collection. These surveys report that the direction of flow remains likely identical, but that the intensity of the flow has changed during sampler equilibration (examples for Mirabel and St-Roch wellbores are shown at **Figure 3.12**). Given this situation, geochemistry for sampler within mixing zones of these wellbores was not deconvoluted. Considering different representativeness for the samplings, data presented related to the depth (all geochemical figures and tables) has the following meaning:

- Outside of mixing zones, the depth represents the one of the inflowing fracture located upstream from the corresponding passive sampler;
- In stagnant zones, the depth is the one at which the passive sampler is placed, and represents the composition of stagnant water at this depth;
- Within unconstrained mixing zones, the depth is the one at which the passive sampler is placed, and represent the composition of the water mix from all inflowing fractures upstream of it;
- For Chateauguay wellbore only, all the depths are representing the depth of each inflowing fractures as the concentration within mixing zones were deconvoluted.

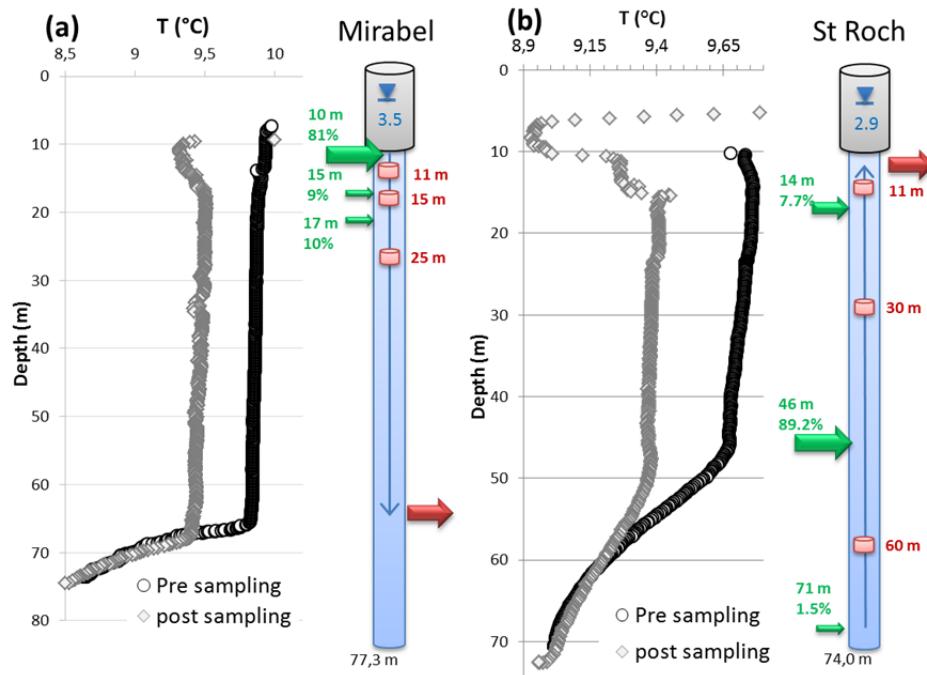


Figure 3.12 : Temperature surveys in the Mirabel (a) and St-Roch (b) wellbores before and after passive sampling (unchanged flow directions in the water column).

4.2.3 Validation of passive sampling at depth and deconvolution at fractures

Passive sampling at depth was tested according to the survey at the Chateauguay well. The concentrations obtained in the samplers after 6 days of equilibration are compared with those of water samples taken by low flow pumping (**Section 3.1.5**) at the corresponding depths (**Table 3.2** and **Figure 3.13**).

	error / DL	0.1	5	0.3	0.1	0.1	0.1	1	0.05	0.5	±0.4‰	±0.5‰
Depth m	pH	EC µS/cm	Ca mg/L	Mg mg/L	Na mg/L	K mg/L	HCO ₃ mg/L	Cl mg/L	SO ₄ mg/L	¹⁸ O ‰ SMOW	² H ‰ SMOW	
Passive Sampler	25	7.89	507	43	29	37	5	339	8.7	6.4	-10.71	-73.89
	37	7.7	667	51	30	52	5.1	305	43	53	-10.85	-74.62
	41	7.69	679	53	30	52	5	308	46	59	-10.88	-74.83
Low flow pumping	25	7.91	534	43	28	36	4.9	344	9.7	7.1	-10.75	-73.95
	37	7.81	621	47	27	48	4.9	300	38	39	-10.90	-75.07
	41	7.67	680	53	31	54	5.3	307	46	58	-10.91	-74.89

Table 3.2 : Concentrations measured at depths by passive sampling and by low flow pumping

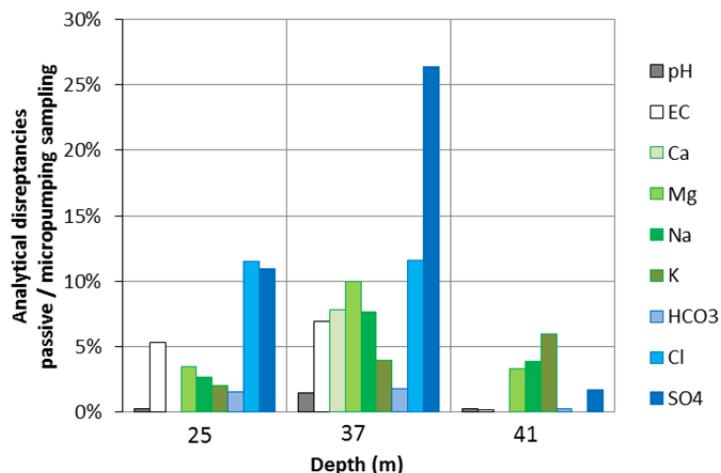


Figure 3.13 : Comparison of passive samplers compositions and groundwater pumped at depth

Of the 33 comparative measurements (11 parameters tested at three depths), the mean error is 2 %. Four measurements exceed 10% of error for chlorine and sulfate at 25 and 37 m depth (**Figure 3.13**). The largest error (Sulphates, 37 m) could be analytical or due to sulfate reduction in the sample prior to analysis. Comparisons for stable water isotopes show good agreement between both sampling methods with low discrepancies for ¹⁸O and ²H compositions, staying below the range of analytical error. Although the flow rate for sampling was deliberately limited to 0.25 L/min, the observed disparities

may be induced by a change in the flow distribution in the water column during sampling (the permanent flow rate imposed being 1 L/min). Although it is used as a reference here, sampling with low flow pumping at depth appears ultimately more difficult to carry out than passive sampling. Even if the purging was carried out for a volume five times that of the tubing (i.e. 1 L to 1.6 L for HDPE tubings of 25 m to 41 m long, 0.3 cm diameter), the length of the tubing might lead to uncertainties regarding the homogeneity of the samples collected. An additional test was conducted to compare the composition of the mixture calculated according to the intensity and to the composition (deconvoluted) at each fracture (from passive sampling), with the composition of the sample collected at the discharge of the main pumping. The comparison between major ions and stable isotopes are in good agreement, with differences of less than 5%, except for the electrical conductivity (10%) and the concentration of sulfate (14%) (**Table 3.3**).

Table 3.3 : Comparison of passive sampling with samples collected at pumping's discharge

	error / DL	0.1	5	0.3	0.1	0.1	0.1	1	0.05	0.5	$\pm 0.4\%$	$\pm 0.5\%$
	Depth m	pH	EC µS/cm	Ca mg/L	Mg mg/L	Na mg/L	K mg/L	HCO_3 mg/L	Cl mg/L	SO_4 mg/L	$^{18}\text{O } \text{\textperthousand}$ SMOW	$^2\text{H } \text{\textperthousand}$ SMOW
Passive Sampler	25	7.89	507	43	29	37	5	339	8.7	6.4	-10.71	-73.89
	37	7.7	667	51	30	52	5.1	305	43	53	-10.85	-74.62
	41	7.69	679	53	30	52	5	308	46	59	-10.88	-74.83
	47	7.72	715	55	32	55	5.3	314	50	63	-11.02	-74.74
Mixing (Calculated)		7,70	672	52	30	52	5.1	308	44	54	-10.89	-74.74
Pumping's discharge (measured)		7,65	612	50	29	51	4.9	307	42	48	-10.89	-74.95
% error/ max. err %		-1%	-10%	-4%	-4%	-2%	-4%	0%	-4%	-14%	0.004 %	0.21 %

4.3 Major ions chemistry

All the water samples analysed showed an electro-neutrality of less than 10%. Twenty-nine (29) analyses for major ions are available for the 10 wells sampled. Sample depths ranged from 10 to 98 m (mean 50 m). Water temperatures ranged from 8 to 9.9°C (mean 8.5°C), pH values from 6.9 to 8.3 (mean 7.5) and total dissolved solids (TDS) from 236 to 2 556 mg/L (mean 975). Water type are predominantly Ca-HCO₃ (40%), followed by Ca-SO₄ (37%), Na-Cl (17%) and Ca-Cl (7%). Although magnesium never appears as the major cation (exception for Chateauguay 21 m), it represents at least a quarter of the cationic charge in 70% of the samples. Geochemical data table is provided in **Annexe B1**, along with a Piper diagram (**Annexe B2**). Nitrates were analysed for all groundwater

samples, but the results reported concentrations below the detection limit of 0.02 mg/L N-NO₃.

Geochemistry data for major ions and trace elements (**Annexe B1**) were computed using PHREEQC (Parkhurst, 1995). It is important to note that in terms of weathering, the results below essentially focus on the weathering of carbonates, as most of the wellbores are installed in carbonate aquifers, and because quaternary sediment also contains carbonates and are widespread. Weathering with respect to silicate is not modeled anyway in PHREEQC, as data regarding aluminium are not available.

Total dissolved solids (TDS) generally increase with depth for most of the wellbores, independently of the lithology (**Figure 3.14**). TDS varies greatly between the wells. Most important mineralization is clearly associated with Ca-SO₄ water type (Napierville P6 and PO2) and Na-Cl water type (deep samples of Abbotsford PO5). The size of the symbols used for each sample in **Figure 3.14** is relative to the depth in each well. This symbology is used in all the following figures.

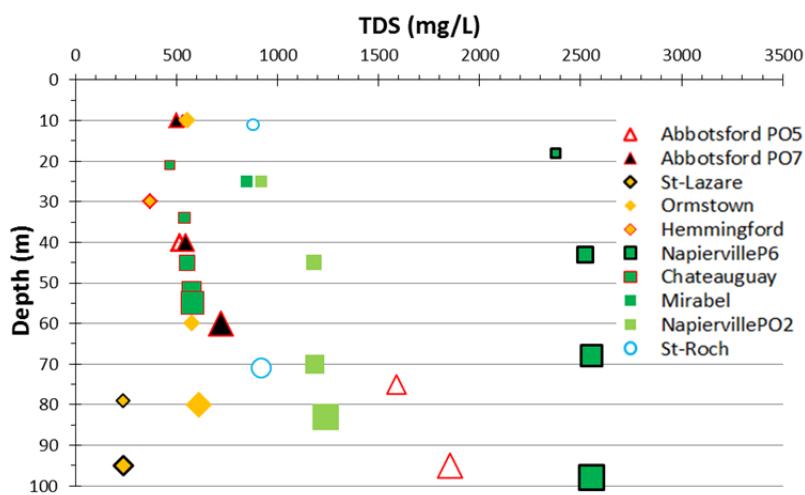


Figure 3.14 : TDS as a function of depth and lithology (red-schist, orange-sandstone, green-dolomite and blue-limestone)

Saturation indexes for calcite and dolomite (**Figure 3.15**) were computed with PHREEQC for each sample data (**Annexe B1**).

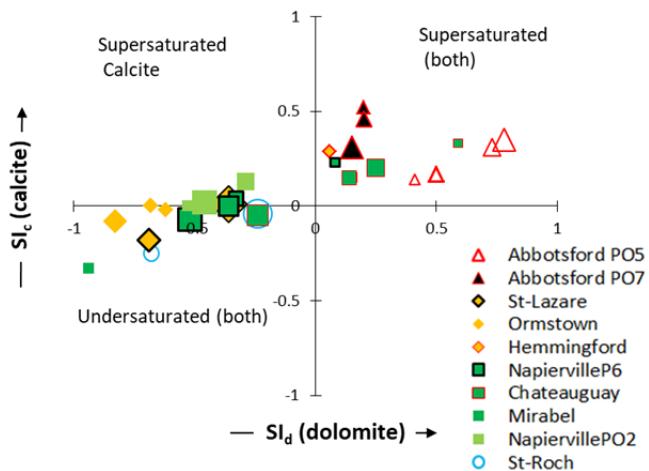


Figure 3.15 : Saturation Indexes for calcite and dolomite

The majority of samples appear nearly saturated or supersaturated with respect to calcite ($SI_c \geq 0$ for 69% of the samples, SI_c minimum of -0.4, **Figure 3.15**). Dolomite weathering also appears important, but less preponderant than for calcite, as fewer samples reached or exceeded saturation ($SI_d \geq 0$ for 41% of the samples, SI_d minimum of -1.0, **Figure 3.15**). Given frequent saturation with respect to calcite and dolomite, the occurrence of incongruous dissolution of dolomite is likely widespread.

Partial CO_2 pressure for each sample were computed using PHREEQC and are represented in **Figures 3.16** and **3.17** as a function of pH, alkalinity as well as the typical initial CO_2 pressures at recharge (i.e. soils and atmosphere, **Section 3.2.1**). Saturation equilibriums curves towards calcite were also computed with PHREEQC (at 8.5°C mean temperature of samples), considering open and closed CO_2 systems with different $p\text{CO}_2$ range (i.e. modeling of equilibrium towards calcite $SI_c=0$, with a solution under constant $p\text{CO}_2$, or with a solution under initial but not replenished $p\text{CO}_2$). Arrows depicts the evolutions in open, “intermediate” and closed systems conditions. Boundaries for the systems at saturation with calcite are those computed with PHREEQC.

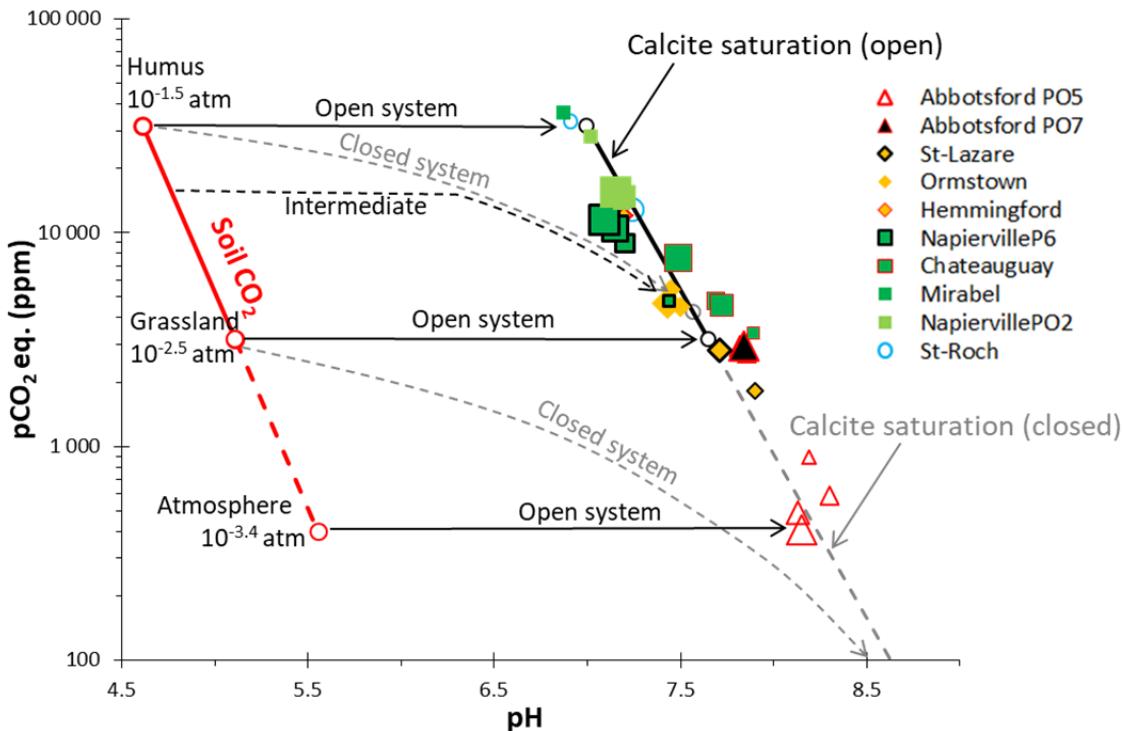


Figure 3.16 : Samples pCO_2 as a function of pH, shown together with saturation equilibriums for calcite and initial pCO_2 at recharge (soil and atmosphere)

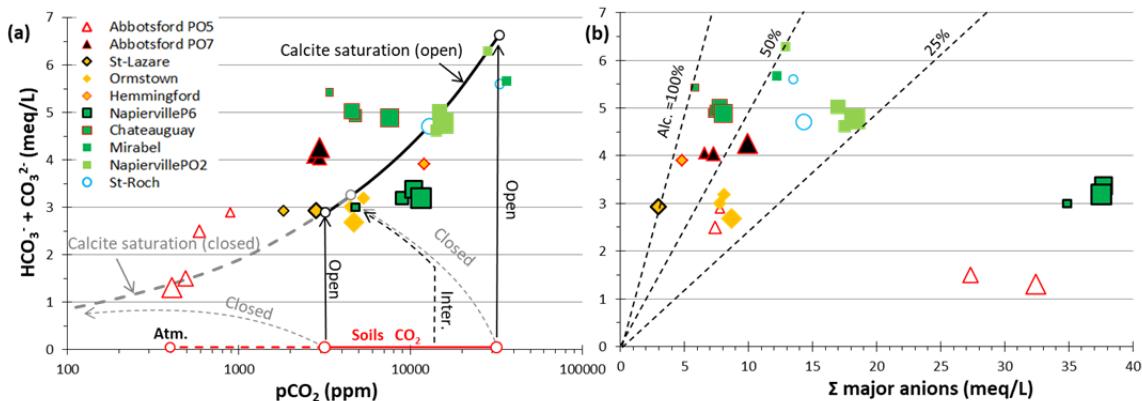


Figure 3.17 : Bicarbonate and carbonate as a function of (a) pCO_2 and (b) the anionic charge

From **Figures 3.16** and **3.17**, the vast majority of waters have pCO_2 in the same range than soil CO_2 ($>>$ atmospheric pCO_2). For some samples in the latter figures, saturation state towards calcite slightly differs from the saturation index computed for calcite (**Figure 3.15**). When they occur, these differences are likely due to the dissolution of other carbonated minerals than calcite. As groundwater is collected at depth, waters must

have evolved from open system conditions within the unsaturated zone, followed by closed system conditions once the saturated zone was reached. With the exception of the Abbotsford PO5 and St-Lazare wells, the pCO₂ of all the samples are in same range as those of soils. This recalls that initial pCO₂ at the recharge was mainly inherited from soil pCO₂ rather than from the atmosphere, which has a much lower pCO₂. At this stage, it is not possible to quantify about the initial pCO₂ at the recharge for each sample as “intermediate” evolutions are possible. For example, Ormstown waters in **Figures 3.16** and **17 a** could have either totally evolved in closed conditions from an initial soil pCO₂ of $10^{-1.5}$ atm, or from a lower soil pCO₂ followed by an evolution in closed conditions. Further discussion about the CO₂ systems can be detailed with ¹³C data, in conjunction with radiocarbon dating (**Section 4.5**). However, tendencies could still be observed with **Figures 3.16** and **17 a**. Samples for Abbotsford PO5 have the lowest pCO₂, far below the minimum range expected for soil CO₂ (i.e. $10^{-2.5}$). This suggests that groundwater for Abbotsford PO-5 have more strongly evolved in closed system condition (i.e. within the saturated zone), or that soil CO₂ at the recharge may have been unusually low compared to other sites. For St-Roch and Mirabel, pCO₂ are near or above the maximum expected for soils (i.e. $10^{-1.5}$ for humus) and have rather acidic pH, suggesting that groundwater had a limited evolution in closed system condition. Although carbonates mineralization varies, due to different initial pCO₂ and subsequent evolution within unconsolidated sediment and fractured aquifers, carbonates does not always represent the main mineral input for the samples (**Figure 3.17 b**). Groundwater from Napierville wells likely evolved from elevated soil pCO₂ at the recharge, but they do not exhibit alkalinity-dominated mineralization. Deep samples from Abbotsford PO5 also show high mineralization while their alkalinity remains low. For the latter sites, the contribution of alkalinity to total mineralization is rather minor, confirming that other dominant processes intervene. For the St-Lazare, Hemmingford and Chateauguay wells, mineralization would essentially related to carbonate weathering, while the contribution for the other wells is intermediate (Ormstown, Saint-Roch and Abbotsford-PO7 and the shallower samples of Abbotsford PO5).

Gypsum saturation is nearly reached for Napierville P6 (**Figure 3.18 a**). Samples for Napierville PO2 also have relatively elevated gypsum saturation indexes. Sulfate may originate from the dissolution of gypsum ($\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, occurring from the hydration of anhydrite CaSO_4) and from baryte (BaSO_4). The latter is also considered because barium data is available. Gypsum is more soluble than baryte (i.e. $K_{\text{gypsum}} = 2.5 \cdot 10^{-5}$ and $K_{\text{baryte}} = 6.3 \cdot 10^{-11}$ at 8.5°C). All samples from wells other than St-Lazare appears supersaturated towards barite ($\text{SI}_{\text{baryte}} > 0.5$), and barium is not detected in sulfate rich water (i.e. Napierville P6) likely because of barite precipitation. Considering the latter, gypsum can be considered as the initial main source of sulfate for all the samples but St-Lazare. For Napierville and Ormstown wells, more than 50% of the mineralization is attributable to gypsum dissolution. When significant, sulfate contributions always increase with the depth, as for Napierville, Ormstown and Chateauguay wells (**Figure 3.18 b**).

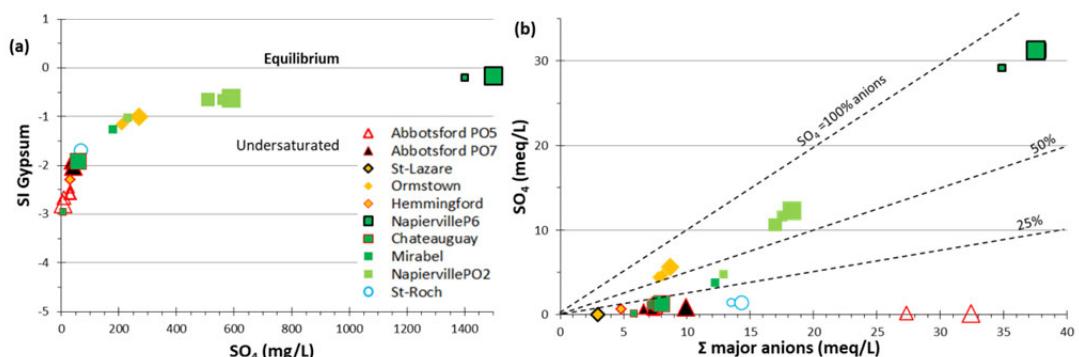


Figure 3.18 : (a) Saturation Index for gypsum and (b) sulfate contributions to the anionic charge

Saline inputs contributions are evaluated relative to chlorine (**Figure 3.19 a**), the latter being conservative whereas sodium is not, subject to cation exchange. Deep samples from Abbotsford PO5 show highest chlorine concentrations, which contribute more than 90% of the anionic charge. Significant contributions of close to 50% concerns two shallower samples from the Abbotsford PO5 well, as well as deep samples from Abbotsford PO7 and the St-Roch. All other wells are only slightly influenced by saline contributions (less than 25% of the anions). Sodium enrichment relative to chlorine suggests the occurrence of Ca-Na cation exchange for all wells (**Figure 3.19 b**). For St-

Napierville PO5 deepest samples, sodium default is observed compared to chloride, which suggests possible contribution of CaCl_2 at depth. St-Lazare samples are particularly depleted in chlorine, although their sodium concentrations represent 13% of the cations, suggesting more advanced cation exchange. The importance of the cation exchange also appears to be significant ($\text{Na}/\text{Cl} > 2$) for Napierville P6 and for Chateauguay, as well as for Abbotsford PO7.

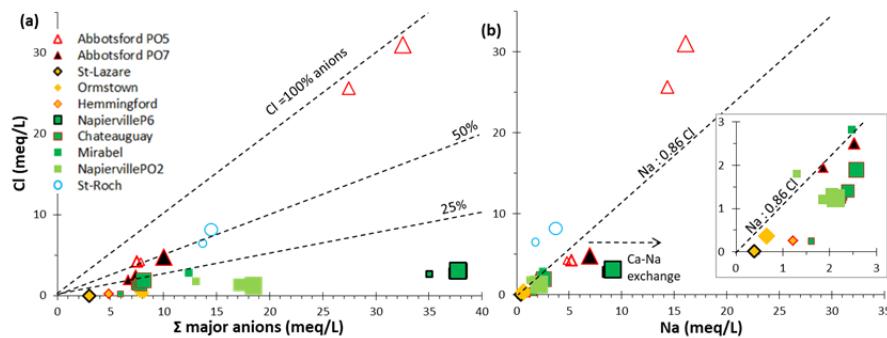


Figure 3.19 : Chlorine concentrations as a function of (a) anions and (b) Na/Cl ratio

Part of sodium or calcium contributions from Ca and Na-Feldspar weathering cannot be completely excluded for all wells installed in the sandstone aquifer (Saint-Lazare, Ormstown) or when the lithology includes sandstone, i.e. all wellbore installed in dolomite formations. But as the pH for all samples are relatively high, and that most matrices are carbonated, significant contribution from silicate weathering is very unlikely for the area. As the bedrock at St-Lazare and Ormstown consists of rather pure quartzite with few percent of plagioclase, it is inferred that the geochemical characteristics of these samples (relatively high pH and alkalinity) are rather dominated by carbonates weathering from quaternary sediments overlaying the bedrock.

4.4 Stable water isotopes

The signature of stable isotopes in precipitation varies seasonally, with depletion in the winter season and enrichment in the summer season (Fritz et al., 1987). Stable isotopes compositions collected by passive sampling at depth are reported in **Figure 3.20**, as well as with local meteoric data near St-Lazare area (Larocque et al., 2015b). The stable isotopes collected generally follow the local meteoric water line, indicating that the waters infiltrated contributing to the recharge do not undergo any significant evaporation

compared to the precipitations. The composition of the groundwater samples is generally depleted relative to the weighted average of precipitation. This is usually the result of more intense recharge periods during spring melt and fall rainfall, the latter being more depleted than summer precipitation Larocque et al. (2015b).

Associated to the last deglaciation events in the Saint-Lawrence Lowlands, isotopic compositions were reported in literature for Pleistocene meltwater ($\delta^{18}\text{O} \approx -16.0\text{\textperthousand}$ VSMOW), as well as for the Champlain Sea waters ($\delta^{18}\text{O} \approx -10.54\text{\textperthousand}$ VSMOW), the latter being considered to be the mixture of one third of seawater with two thirds of Pleistocene melt water (Hillaire-Marcel & Gadd, 1988; V. Cloutier et al., 2010).

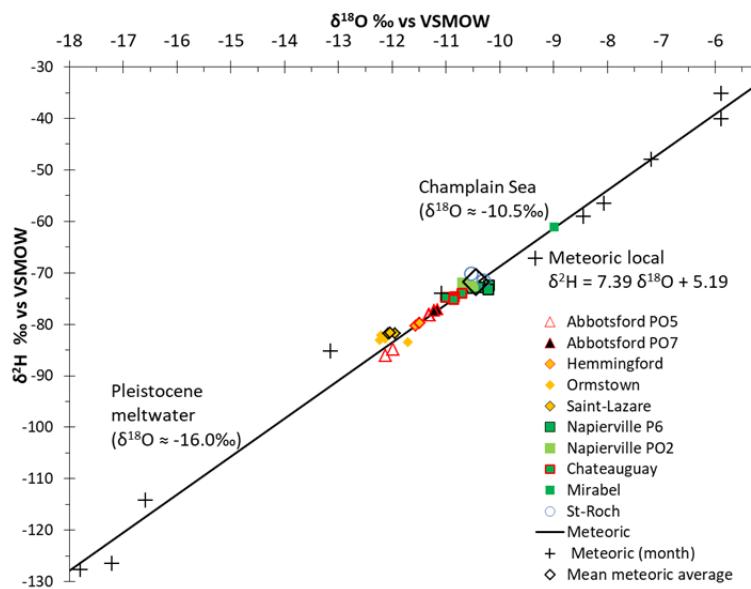


Figure 3.20 : ^{18}O and ^2H compositions and local meteoric data

For each well, isotope compositions measured have similar values and no depth-dependency can be distinguished (Figure 3.21). Thus, significant contribution of Pleistocene meltwater (i.e., $\delta^{18}\text{O} \approx -16.0\text{\textperthousand}$, Figure 3.20) with depth is very unlikely. Discernment regarding the influence of the Champlain Sea is not possible isotopically, since the latter (i.e. $\delta^{18}\text{O} \approx -10.54\text{\textperthousand}$) has almost the same composition than the mean contemporary meteoric composition (i.e. $\delta^{18}\text{O} \approx -10.54\text{\textperthousand}$, Figure 3.20). Different

isotopic compositions per wellbore (**Figure 3.21**) are thus more likely attributable to contemporary recharge conditions, which may differ from one site to the other.

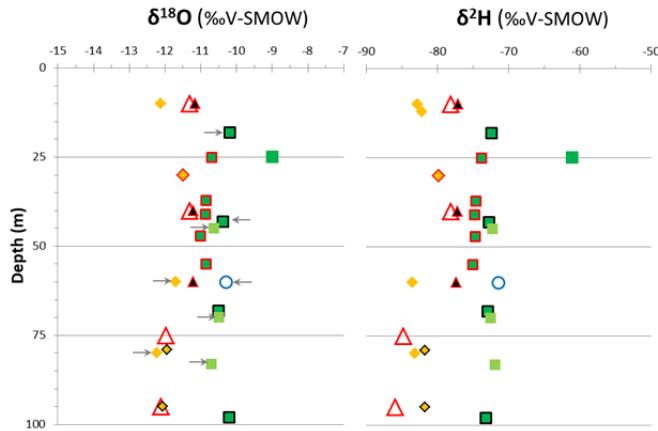


Figure 3.21 : ^{18}O and ^2H compositions sampled at depth. Arrow represents samples within mixing zones

It is to be noted that (at the exception of Chateauguay wellbore) all the isotopic compositions presented in **Figure 3.21** are not deconvoluted (**Equation 3.2**), as fluxes in some wells could not be compelled (**Section 4.2.2**). Some uncertainties thus remains about the representativeness of sampler's compositions placed within mixing zones (such samplers are pointed by grey arrows in **Figure 3.21**). However, isotopic compositions per well remain not that different to argue about a significant vertical stratification of isotopic compositions.

4.5 Carbon isotopes

Combined plots for ^{14}C , $\delta^{13}\text{C}$ and DIC compositions are used to discuss about the dominant processes that influence radiocarbon dating. The isotopic value for soil CO_2 ($\delta^{13}\text{C}_g = -20\text{\textperthousand VPDB}$, minimum range for C3 vegetation) is first set arbitrarily for discussion in **Figure 3.22**.

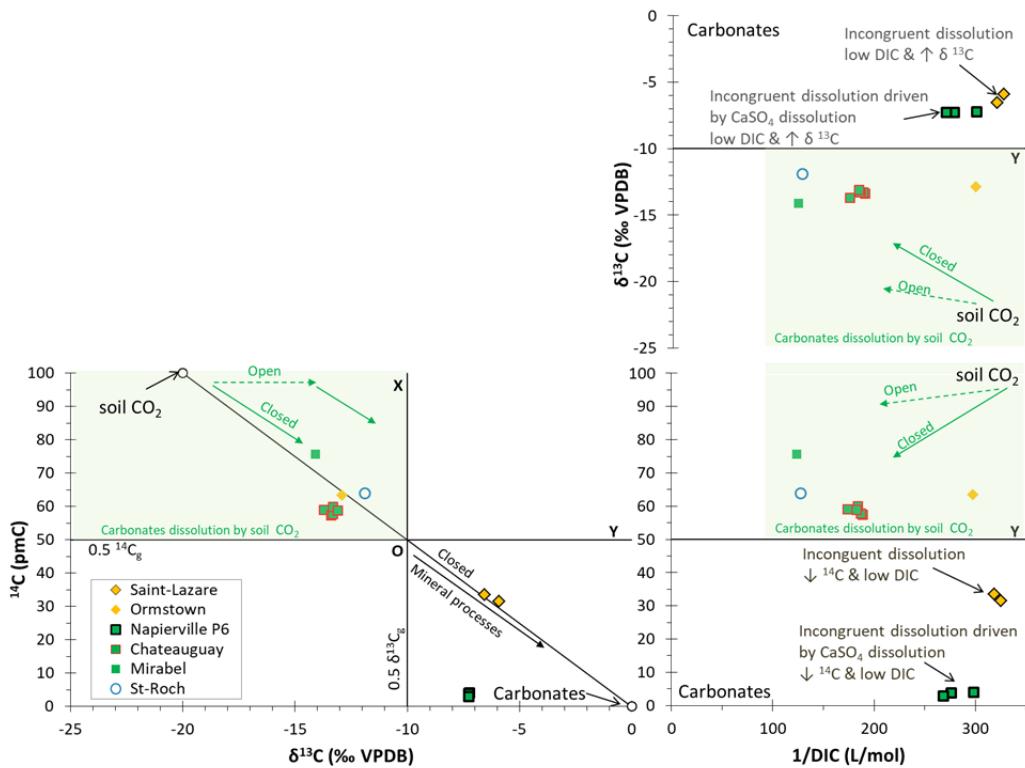


Figure 3.22 : Graphical representation of the main geochemical processes that interfere with radiocarbon dating (Han et al., 2012)

The green zone (**Figure 3.22**) corresponds to the dissolution of carbonates along the neutralization of carbonic acid from soil CO_2 . Considering a closed system (initial and not replenished supply of CO_2), the carbon isotopic compositions evolve from the soil signature ($\delta^{13}\text{C}_g$, $^{14}\text{C}_g$), to the origin "O" ("Tamer" point) corresponding to the complete neutralization of the carbonic acid by dissolution of carbonates. This zone is also represented at **Figures 3.22 b** and **c** with respective depletions of $\delta^{13}\text{C}$ and ^{14}C , and an increase of the CID during carbonate dissolution. At the Tamers point, isotopic compositions are diluted by half due to the carbon input from carbonates, i.e. $\delta^{13}\text{C}=0.5 \delta^{13}\text{C}_g$ and $^{14}\text{C}=0.5 \ ^{14}\text{C}_g$. The compositions for St-Roch, Mirabel, Ormstown and Chateauguay samples suggest that these waters have evolved in a closed system (along mixing line soil CO_2 /Tamers point), and that the dominant process is the dissolution of carbonates by neutralization of carbonic acid from the soil CO_2 . Samples from the St-Lazare and Napierville wells have higher $\delta^{13}\text{C}$ signatures in and much lower ^{14}C activities. The latter are placed in a graphical area (**Figure 3.22 a)** for which dominant

exchanges occurred with the carbonate matrix (i.e. soil CO₂ was neutralised, $\delta^{13}\text{C} < 0.5 \delta^{13}\text{C}_g$ and $^{14}\text{C} < 0.5 \ ^{14}\text{C}_g$). These isotopic compositions indicate advanced exchange between the DIC and the carbonate matrix (i.e. $\delta^{13}\text{C}$ enrichment and lowering of ^{14}C activities), whereas the DIC of these samples remain low (**Figure 3.22 b and c**). Such carbon recycling between the DIC and the carbonate matrix is likely referring to incongruent dissolution reactions.

A link may be noted with major ions chemistry (**Section 4.3**) as samples from the Napierville well appeared most potentially affected by the incongruent dissolution of dolomite driven by gypsum dissolution. This process can induce low DIC concentrations, whereas carbon recycling between DIC and the matrix is effective. Enrichment in $\delta^{13}\text{C}$ is also likely more enhanced from dolomite inputs than from calcite (Clark, 2015). Napierville P6 composition is well below the evolution described by the Pearson model ("soil - Tamers point - mineral" **Figure 3.22 a**), suggesting a decrease in ^{14}C activity due to radioactive decay, thus interpreted as significant groundwater residence time. Concerning St-Lazare, major ions also suggests the occurrence of the incongruent dissolution of the dolomite, as well as an important cation exchange. These last two processes promote carbon recycling between DIC and carbonate reservoirs, and may explain why the St-Lazare samples have the most enriched $\delta^{13}\text{C}$ of all samples, despite having low alkalinity. It should be noted that the St-Lazare well is located on a wooded area away from intensive agricultural activities, thus surely not including corn cultivation. In this case, soil CO₂ $\delta^{13}\text{C}$ input from C4 metabolism vegetation ($-10 < \delta^{13}\text{C}_g < -15 \text{ ‰ VPDB}$) is unlikely. The area nearby (more than 600 m) is urbanized and the possibility of an enriched $\delta^{13}\text{C}$ input from individual septic systems (Aravena & Robertson, 1998) cannot be totally excluded. However, nitrates concentrations in groundwater within the area are generally absent (Larocque et al., 2015b), so that important enriched $\delta^{13}\text{C}_g$ input from septic system cannot be addressed for St-Lazare samples, which also reports non-detection for nitrates (**Section 4.3**). St-Lazare sample's composition are fitting with those predicted by the Pearson model (**Figure 3.22 a**), which is the process line of "zero" ^{14}C age, meaning chemically evolved but relatively "young" groundwater in relation to the ^{14}C dating range.

Graphical representation of radiocarbon ages computation is shown with Pearson, Mook, F&Gg, F&Gc and H&Pc models, by varying the $\delta^{13}\text{C}_g$ (not measured *in situ*) and considering pH of the samples (**Figure 3.23**). This is performed to show the sensitivity of the modeling towards $\delta^{13}\text{C}_g$, as well as not to impose a single value of it, which cannot be justified as $\delta^{13}\text{C}_g$ was not measured *in situ*. In **Figure 3.23**, isotopic fractionations that intervene in the models are all calculated at 8.5°C, corresponding to the mean temperature of the samples. Within the range of samples temperature (8.0 to 9.9°C), isotopic fractionation is insignificant (i.e. $\Delta\epsilon_{gb} < 0.05\%$). For a system dominated by soil CO₂ neutralization (i.e. green zone, **Figure 3.22**), ¹⁴C age modeling is very sensitive to $\delta^{13}\text{C}_g$. For samples corresponding to CO₂ dominated systems, the F&Gg model is a priori more suitable in the context of this study than the Mook model which is rather dedicated to non-carbonated aquifers. Indeed, all the samples were collected at depth in carbonate aquifers, having shallow and thin unsaturated zones (i.e. less than 5 meters, except for St-Lazare). Higher $\delta^{13}\text{C}_g$ values lead to greater radiocarbon ages, as the decrease in ¹⁴C activity below the process lines of the models is being interpreted as a ¹⁴C decay (**Figure 3.23**).

For Chateauguay and Ormstown wells (**Figure 3.23 a and c**), a minimum of $\delta^{13}\text{C}_g = -20\text{\textperthousand}$, (lowest range for C3 plants metabolism), thus provides "maximum" radiocarbon ages (**Table 3.4**). For Mirabel (**Figure 3.23 e**) the minimum value of $\delta^{13}\text{C}_g = -19\text{\textperthousand}$ is considered (otherwise the radiocarbon ages computed are already negative, i.e. ${}^{14}\text{C age} \approx 0$). This lower value may be justified if any influence from corn cultivation or nearby septic system occurs, as $\delta^{13}\text{C}_g$ from C4 vegetation is more enriched (**Section 3.2.3**). For St-Roch, even $\delta^{13}\text{C}_g = -19\text{\textperthousand}$ lead to ¹⁴C age of zero. To explore maximum interval that can be taken, $\delta^{13}\text{C}_g$ value is then set for each sample until radiocarbon ages become "zero" (i.e. Ormstown $\delta^{13}\text{C}_g = -23\text{\textperthousand}$; Chateauguay 55m $\delta^{13}\text{C}_g = -20\text{\textperthousand}$; Mirabel and Chateauguay $\delta^{13}\text{C}_g = -24\text{\textperthousand}$, **Figure 3.23 b, d, f**). The values in $\delta^{13}\text{C}_g$ do not induce any significant differences in age modeling for St-Lazare and Napierville, those being in systems dominated by exchange with the carbonate matrix.

For St-Lazare (**Figure 3.23 a, b**), computed radiocarbon ages are always zero (along or above process lines).

For Napierville P6, the variations in $\delta^{13}\text{C}_g$ also induce insignificant differences in the calculated radiocarbon ages. “Maximum” radiocarbon ages are compiled in **Table 3.4** (bold values). “Maximum” ages thus range from 2 100 to 3 000 years for Chateauguay, nearly 900 years for Mirabel and 1 300 years for Ormstown. For St-Lazare, radiocarbon dating leads to “zero” age with all models (Pearson, F&Gc, H&Pc, which depict similar compositions anyway). For Napierville, the same latter models suggest radiocarbon ages between 18 000 and 20 000 years. When $\delta^{13}\text{C}_g = -23\text{‰}$ is considered (typical soil CO₂ signature usually in the context of Quebec), all radiocarbon ages are “zero”, but for Napierville P6 (¹⁴C ages about 17 000 years) and Chateauguay (¹⁴C ages from 200 to 800) (**Table 3.4**).

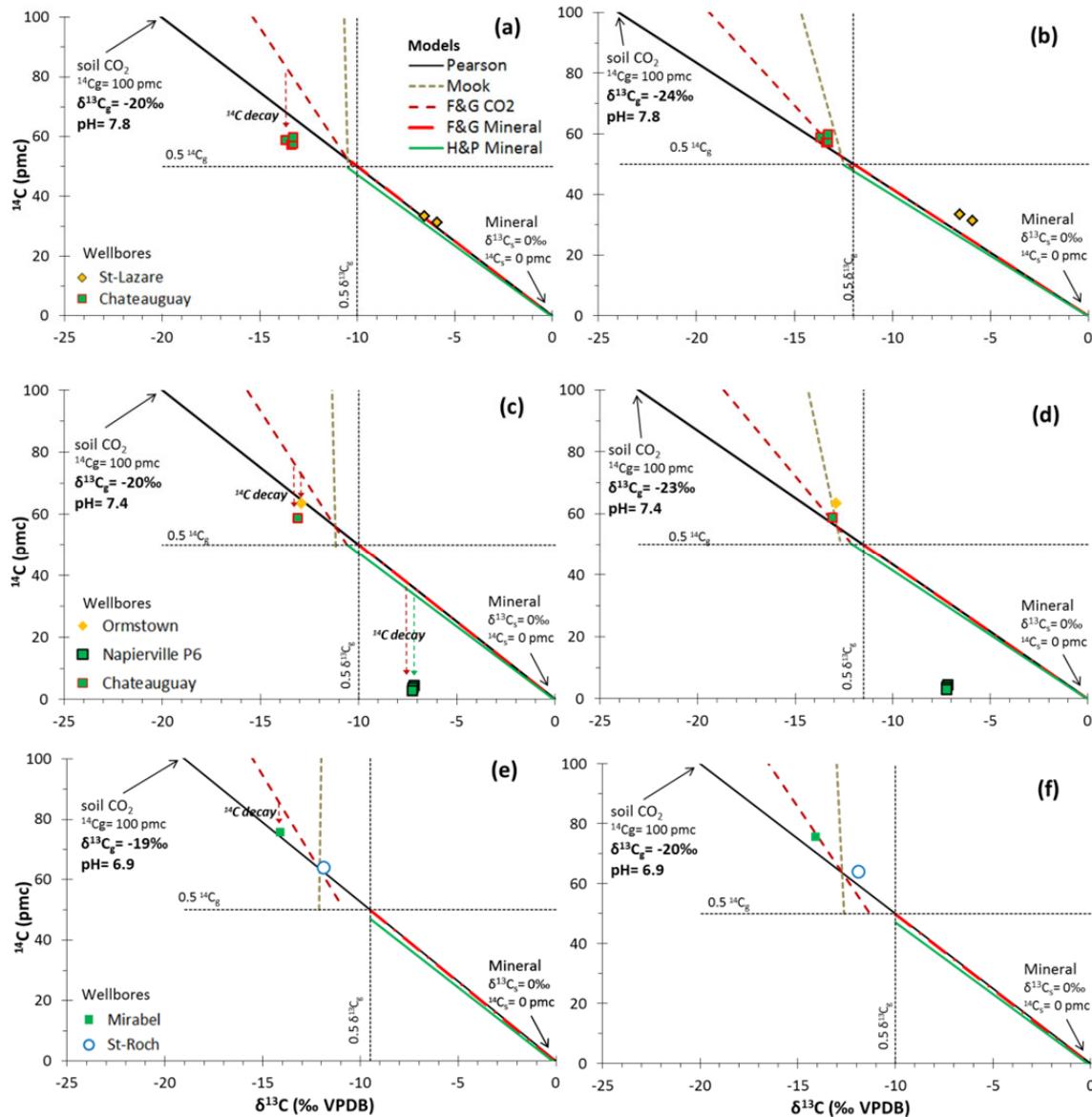


Figure 3.23 : ^{14}C and ^{13}C compositions and models predictions for various $\delta^{13}\text{C}_g$. Samples with similar pH are represented in (a, b) St-Lazare and Chateauguay; (c, d) Ormstown, Napierville and Chateauguay 55m; (e, f) Mirabel and St-Roch

Table 3.4 : Radiocarbon dating modeling

Sample	Sample					Minimal $\delta^{13}\text{Cg}$ ‰ PDB C3 plants	Maximum Corrected $^{14}\text{C}_0$ (pMC)					Maximum ^{14}C age (years)					^{14}C age (year) with $\delta^{13}\text{Cg} = -23$ ‰ PDB Reference in the context of Quebec	
	T °C	pH	^{14}C pM C	err.	$\delta^{13}\text{C}$ ‰ PDB		Pearson (1964)	Mook (1972)	F&Gg (1979)	F&Gc (1979)	H&Pc (2012)	Pearson (1964)	Mook (1972)	F&Gg (1979)	F&Gc (1979)	H&P (2012)		
Napierville P6 18	8,3	7,4	4,1	0,1	-7,2	0,1	-20	36,2	-898	18,2	36,1	34,1	18 100	$^{14}\text{C}_0 < 0$	12 400	18 100	17 600	16 100 (F&Gc)
Napierville P6 43	8,2	7,2	3,7	0,1	-7,3	0,1	-20	36,3	-1111	15,3	36,2	34,2	18 800	$^{14}\text{C}_0 < 0$	11 700	18 800	18 300	17 600 (F&Gc)
Napierville P6 68	8,2	7,2	3,0	0,1	-7,3	0,1	-20	36,3	-1161	14,6	36,2	34,2	20 800	$^{14}\text{C}_0 < 0$	13 200	20 750	20 300	19 600 (F&Gc)
Saint-Lazare P11-79	8,3	7,9	31,4	0,2	-5,9	0,1	-20	29,6	-1078	8,3	29,5	27,9	<0	$^{14}\text{C}_0 < 0$	<0	<0	<0	<0 (F&Gc)
Saint-Lazare P11-95	8,4	7,7	33,5	0,2	-6,6	0,1	-20	32,8	-910	13,7	32,7	30,9	<0	$^{14}\text{C}_0 < 0$	<0	<0	<0	<0 (F&Gc)
Chateauguay 21	8,3	7,9	59,0	0,4	-13,7	0,1	-20	68,5	918	84,5	68,6	64,9	1 200	$^{14}\text{C}_0 > 100$	3 000	1 250	800	850 (F&Gg)
Chateauguay 33-35	8,2	7,7	57,3	0,3	-13,4	0,1	-20	67,0	842	80,6	67,0	63,4	1 300	$^{14}\text{C}_0 > 100$	2 800	1 300	850	700 (F&Gg)
Chateauguay 45	8,1	7,7	57,7	0,3	-13,3	0,1	-20	66,5	845	79,6	66,5	63,0	1 200	$^{14}\text{C}_0 > 100$	2 700	1 200	700	550 (F&Gg)
Chateauguay 52	8,1	7,7	60,0	0,3	-13,3	0,1	-20	66,5	867	79,8	66,5	63,0	900	$^{14}\text{C}_0 > 100$	2 400	900	400	250 (F&Gg)
Chateauguay 55	8,0	7,5	58,8	0,3	-13,1	0,1	-20	65,5	720	76,2	65,5	62,0	900	$^{14}\text{C}_0 > 100$	2 150	900	450	<0 (F&Gg)
St Roch 11	9,8	6,9	64,0	0,2	-11,9	0,1	-19	62,6	106	62,0	62,6	59,1	<0	$^{14}\text{C}_0 > 100$	<0	<0	<0	<0 (F&Gg)
Mirabel 10	9,9	6,9	75,7	0,2	-14,1	0,1	-19	74,2	-751	84,6	74,3	70,1	<0	$^{14}\text{C}_0 < 0$	900	<0	<0	<0 (F&Gg)
Ormstown 10	8,2	7,5	63,4	0,2	-12,9	0,1	-20	64,5	603	74,3	64,5	61,1	150	$^{14}\text{C}_0 > 100$	1 300	150	<0	<0 (F&Gg)

4.6 Noble gases and $^3\text{H}/^3\text{He}$ dating

4.6.1 Gas system and excess air

Soils temperature data measured between 2015 and 2018 were available at St-Lazare Station (**Annexe B4**). At 1 m depth, monthly soils temperatures varied from 1.4 to 19.3°C (annual mean 9.5°C), while monthly air temperatures varied from -10.8 to 20.4°C (mean annual 6.0°C, 1981-2010, Rigaud Station, Canada (2019)). Recharge conditions in Quebec would be rather bimodal, with maximum rates occurring during the April snow melt and at falls around October. Weighting the monthly soil temperature with the monthly recharge intensity available for the study area (Larocque et al., 2015b) gives an average annual recharge temperature of 8.3°C (**Annexe B4**). The same weighting with air temperature gives a mean of 5.4 °C. Soil temperature would be more representative of recharge conditions compared to air temperatures (Freundt et al., 2013). The mean recharge temperature estimated from soil temperature and recharge intensity (8.3°C) is also consistent with temperatures logged in wellbores prior to the present geochemistry investigation (G. Meyzonnat et al., 2018; Guillaume Meyzonnat et al., 2019). Temperatures surveyed in those wellbores ranged from 7.2 to 9.6°C within 15 to 25 m depth influenced by seasonal temperature variation.

Noble gases concentrations in the water samples were processed using the PANGA software (Jung & Aeschbach, 2018) considering UA, OD CE and PD models (**Table 3.5**) and using Monte Carlo fitting procedure. Noble gas modeling for Chateauguay mix (i.e. sample collected at total discharge the pumping) was performed from neon and argon only, as krypton and xenon analyses were unavailable. Best estimates between models are evaluated with χ^2 (error weighted square sum of the deviation between measured and modeled concentration). Best estimates is calculated with χ^2 when the number of noble gases analysed is greater than the number of model parameters to fit (degree of freedom >0).

The results obtained with the CE model with all noble gases available (Ne, Ar, Kr, Xe) for Chateauguay 55 m and Napierville PO2 mix suggest elevated excess air (A_{CE} $2.9 \cdot 10^{-2}$ and $1.1 \cdot 10^{-2}$ ccSTP/g) with remaining gas phase (F_{CE} respectively 0.08 and 0.65). For the same wellbores and same noble gases, modeling performed with the OD model provides comparable and elevated excess air (A_{OD} respectively $1.9 \cdot 10^{-2}$ and $1.5 \cdot 10^{-3}$ ccSTP/g) with significant adjustment factor (P_{OD} respectively 1.36 and 1.11) suggesting oxygen depletion within the unsaturated zone. The PD model cannot fit any of the available data and gives negative fractionation ($F_{PD} < 0$). Degassing in these samples is thus not likely giving the invalidity of the PD model, and fractionation factors below the unity for the CE model ($F_{CE} < 1$).

Estimated noble gas temperatures (NGT) at recharge with the CE model range from 3.2 ± 1.0 °C (Chateauguay mix) to 4.9 ± 1.0 °C (Napierville PO2 mix). NGT computed with the OD model are much higher (i.e. 7.5 ± 4.7 °C for Napierville PO2 mix and 12.5 ± 2.6 °C for Chateauguay 55 m). Noble gas modeling is also performed by imposing air and soil temperatures in the CE model (i.e. 5.3 and 8.3°C, **Table 3.5**), which leads to an increase in excess air and fractionation with increasing temperature. NGT estimated with the OD model are higher than for the CE model, and compare better with temperatures estimated with soil temperatures (i.e. 8.3°C, as discussed above). Such NGT discrepancy between CE and OD model is reported in literature. Better comparison were also reported between NGT computation with the OD model and soils temperatures, otherwise NGT were underestimated with other models by 1.5 to 2.2°C (Castro et al., 2007; Freundt et al., 2013). However, NGT errors computed with the OD model in this present work are also much higher compared to the CE model, so that no clear trend can be accounted for NGT estimation. Considering the latter, and that not enough complete noble gas dataset for the same well or same location is yet available, strong uncertainties remain about the estimation of NGT in the context of the present state of this work. Nevertheless, the following interpretation for noble gases make use of the CE model

(dealing with the possibility of remaining free gas phase) because the latter represents more interest to be compared with the data collected from passive samplers. The latter technique allowing the direct collection of the gas at equilibrium with groundwater. Data modeled with the CE model and used hereafter appear in bold in

Table 3.5.

Table 3.5 : Excess air and NGT modeling in groundwater samples

Sample	Model	Fitting param.	DoF	χ^2	A ccSTP/g	A error	F or P_{OD} -	F or P_{OD} error	NGT °C	NGT error
Chateauguay 55 m	UA	Ne, Ar, Kr, Xe	2	20.0	2.2E-2	1.1E-4			2.2	0.2
		Ne, Ar	0	-	2.2E-2	1.1E-4			1.9	0.2
	OD	Ne, Ar, Kr, Xe	1	0.6	1.9E-2	7.4E-4	1.36	9.8E-2	12.5	2.6
	CE	Ne, Ar, Kr, Xe	1	0.0	2.9E-2	1.8E-3	0.08	1.4E-2	4.7	0.6
		Ne, Ar, Kr, Xe, T=5.4	2	1.1	3.1E-2	4.7E-4	0.10	4.4E-3		
		Ne, Ar, Kr, Xe, T=8.3	2	25.4	3.9E-2	5.3E-4	0.14	3.3E-3		
		Ne, Ar, T=5.4	0	-	3.1E-2	4.8E-4	0.10	4.4E-3		
		Ne, Ar, T=8.3	0	-	3.8E-2	5.4E-4	0.14	3.4E-3		
	PD	Ne, Ar, Kr, Xe	1	0.0	1.5E-2	1.4E-3	-0.27	6.0E-2	7.311	1.3
Châteauguay mix	UA	Ne, Ar	0	-	4.5E-3	2.4E-4			3.2	1.0
	CE	Ne, Ar, T=3.2	0	-	4.6E-3	5.8E-3	0.02	0.9		
		Ne, Ar, T=4.7	0	-	1.4E-2	0.01	0.5	0.1		
		Ne, Ar, T=5.4	0	-	1.8E-2	8.0E-3	0.52	8.5E-2		
		Ne, Ar, T=8.3	0	-	4.2E-2	1.3E-2	0.60	3.0E-2		
Napierville PO2 mix	UA	Ne, Ar, Kr, Xe	2	0.6	2.4E-3	1.7E-4			4.4	0.5
		Ne, Ar	0	-	2.4E-3	2.1E-4			4.1	1.0
	OD	Ne, Ar, Kr, Xe	1	0.1	1.5E-3	1.4E-3	1.11	1.8E-1	7.5	4.7
	CE	Ne, Ar, Kr, Xe	1	0.3	1.1E-2	1.8E-2	0.65	2.7E-1	4.9	1.0
		Ne, Ar, Kr, Xe, T=5.4	2	0.5	2.1E-2	1.2E-2	0.72	6.2E-2		
		Ne, Ar, Kr, Xe, T=8.3	2	3.4	1.6E-1	6.1E-2	0.78	1.2E-2		
		Ne, Ar, T=5.4	0	-	1.5E-2	1.2E-2	0.68	1.2E-1		
		Ne, Ar, T=8.3	0	-	6.3E-2	3.4E-2	0.76	2.5E-2		
	PD	Ne, Ar, Kr, Xe	1	0.3	1.6E-3	1.4E-3	-0.07	1.2E-1	5.6	2.1

The results from the gas samplers only include helium and neon isotopes, so that excess air modeling including fractionation cannot be constrained with heavier noble gases. For Chateauguay wellbore, passive gas samples were taken in duplicate of those taken by water sampling to be analyzed for all noble gases (i.e. He, Ne, Ar, Kr and Xe). But this latter data is not yet available. Previous work by Peeters et al. (2003) made use of $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ ratios to handle the calibration of excess air models that include fractionation. Models based on molecular diffusion (PR model, Stute et al. (1995); PD model, Stute (1989)) make it possible to describe $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ ratios ≤ 9.78 (ratio at equilibrium with the atmosphere), as diffusion favours the loss of the lightest isotope from groundwater. The CE model, based on solubility, also always induces a

lowering of $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ ratios with increasing fractionation. However, an enrichment beyond the ratio at equilibrium with the atmosphere ($^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne} = 9.78$) is possible, but limited to a maximum of $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne} = 9.8$ (atmospheric ratio), considering infinite excess air and no fractionation (which is equivalent to the UA model). $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ ratios measured from gas samples range from 9.805 to 11.472, and therefore cannot be predicted by the UA model, even considering extreme excess air. The data however suggest unfractionated air excesses as any fractioning would lower the $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ ratios. For Napierville PO2, it is moreover noticeable that the excess of neon (ΔNe) is much higher for samples collected with gas samplers than for the groundwater samples (**Table 3.6**). An hypothesis about such discrepancy is that passive gas samplers likely equilibrate with time towards both fractions of excess air (dissolved and free gas phase, equivalent to UA), while groundwater sampling would only collect dissolved gases. Considering this hypothesis and high $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ ratios, excess air for gas samplers have therefore all been calculated considering the UA model constrained with ^{20}Ne . Recharge temperatures considered for the gas samplers UA modeling are those determined from seasonality of recharge and soils temperature, as described in the beginning of this section (i.e. 8.3°C). Degassing is not apparent for Napierville PO2 Mix (see above with CE and PD model discussion), but sequential data available for the same wellbore with gas samplers shows a decrease in neon excess with the depth (**Table 3.6**). Since excess air occurs at recharge and because neon has no terrigenic source, this decrease likely indicates outgassing contributions (terrigenic gas input) with the depth. The deeper sample of Napierville PO2 (83m) further suggests the evidence of degassing, as it is depleted in neon ($\Delta\text{Ne} = -30\%$). Although it is not possible to model the latter sample with neon isotopes (i.e. $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne} > 9.8$), such degassing could be described by the CE model considering $A_{\text{CE}}=1.1 \cdot 10^{-2} \text{ ccSTP/g}$ (same as sample Napierville PO2 mix) but with a fractionation factor of $F_{\text{CE}} = 1.8$ ($F_{\text{CE}} > 1$ indicated degassing). Excess air in samples ranged from $\Delta\text{Ne} = +14$ (St-Lazare 95 m) to $+138\%$ (Napierville PO2 35 m) (**Table 3.6**).

Table 3.6 : Noble gases results from water (w) and gas (g) passive sampling

Sample	Depth (m)	C ^S _{iw} [ccSTP/g]				EA modeling			²⁰ Ne/ ²² Ne	ΔNe %
		⁴ He 10 ⁻⁸	³ He 10 ⁻¹⁴	²⁰ Ne 10 ⁻⁷	²² Ne 10 ⁻⁸	Model and fitting	A x10 ⁻³ ccSTP/g	F (-)		
Napierville PO2	mix (w)	6.3	9.3	2.3	2.4	CE (Ne, Ar, Kr, Xe)	11.2	0.65	9.78	17
	21 (g)	8.3	13.2	4.1	4.0	UA (Ne, 8.3°C)	12.3	-	10.20	105
	35 (g)	24.5	24.0	4.7	4.6	UA (Ne, 8.3°C)	16.1	-	10.25	138
	45 (g)	20.3	19.1	2.8	2.8	UA (Ne, 8.3°C)	4.9	-	10.04	41
	70 (g)	28.9	19.9	3.6	3.1	UA (Ne, 8.3°C)	9.4	-	11.47	80
	83 (g)	24.8	9.4	1.4	1.4	-	degassed	-	9.80	-30
Napierville P6	18 (g)	1.8E5	1.48E4	3.1	3.1	UA (Ne, 8.3°C)	6.6	-	9.96	56
Mirabel	10 (g)	9.4	13.4	3.1	3.2	UA (Ne, 8.3°C)	6.7	-	9.89	57
Chateauguay	mix (w)	20.4	15.8	2.7	2.8	CE (Ne, Ar, 4.7°C)	13.6	0.50	9.77	35
	55 (w)	33.5	34.4	5.6	5.7	CE (Ne, Ar, Kr, Xe)	29.2	0.08	9.83	182
Saint-Lazare	79 (g)	8.1	9.9	2.4	2.4	UA (Ne, 8.3°C)	2.4	-	9.90	20
	95 (g)	7.0	8.8	2.3	2.3	UA (Ne, 8.3°C)	1.7	-	10.00	14
Ormstown	10 (g)	286.0	66.9	3.4	3.4	UA (Ne, 8.3°C)	8.3	-	10.18	72
St-Roch	11 (g)	10.0	20.6	3.2	3.2	UA (Ne, 8.3°C)	7.4	-	10.18	63

Excess air is developing at the recharge through entrapment of bubbles during sediment imbibition. Its intensity would be enhanced within fine sediments and with the magnitude of water table annual fluctuation (Heaton & Vogel, 1981; Aeschbach-Hertig et al., 2002; Ingram et al., 2007). With the exception of the Ormstown site, quaternary sediments all consist of sand with variable amounts of silt (**Section 2**), whose compositions could potentially favour excess air. Annual water table fluctuation data is not available for these sites, but natural fluctuation are typically less than few meters in this context of Quebec Lowlands (Carrier et al., 2013; V Cloutier et al., 2013; Larocque et al., 2013). Indeed, depths to the water table are being shallow at all sites (**Figures 3.9 and 3.10**) but for St-Lazare. Only St-Lazare has a thick sandy unsaturated zone (25 m), which would favour conditions for excess air development. But the latter well, not showing influence of nearby anthropogenic groundwater abstractions shows the smallest excess air (**Table 3.6**). All the wellbores influenced by neighbouring pumping are associated to high excess air (i.e. ΔNe>50%). It is likely that such neighbouring pumping are enhancing water table fluctuation against natural conditions, and would likely explain the largest excess air observed with passive samplers.

4.6.2 Helium sources distinction

The distinction of helium sources can be first visualized by comparing the composition of the samples with two endmembers: water in equilibrium with the atmosphere and crustal composition for the St. Lawrence Lowlands (**Section 3.2.4-2**). The theoretical contribution of excess air does not modify ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ ratios, but slightly modifies ${}^4\text{He}/\text{Ne}$ ratios because of solubility differences between these two gases (**Figure 3.24**). Increasing proportions of terrigenic ${}^4\text{He}$ are distinguished from right to left in **Figure 3.24**. “Napierville 21” sample is not valid because its ${}^4\text{He}$ concentration is below equilibrium with the atmosphere, while showing significant neon excess. The increase in the ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ ratio above the atmosphere/terrigenic mixture indicates ${}^3\text{He}$ enrichment by tritogenic or mantle sources, but cannot be quantified with this graph. A Weise diagram (Weise & Moser, 1987) is used to constrain ${}^3\text{He}$ sources (methodology in **Section 3.2.4-2**).

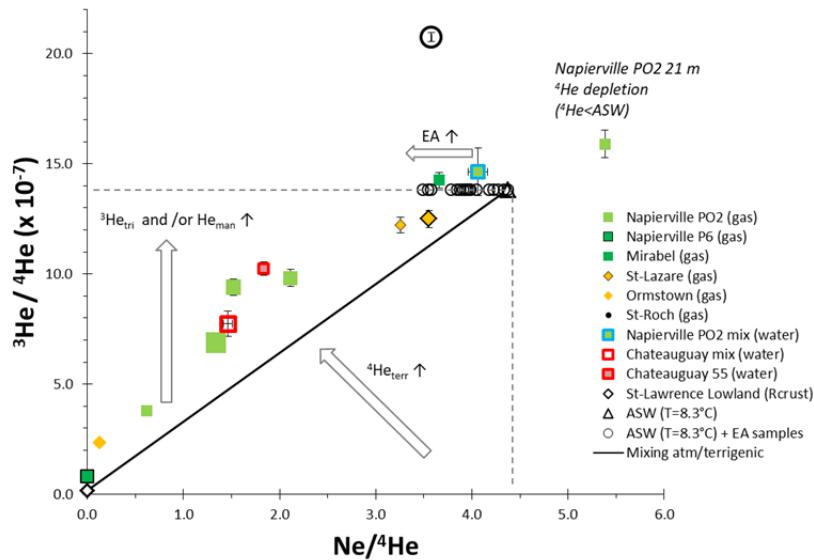


Figure 3.24 : ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ - $\text{Ne}/{}^4\text{He}$ ratios in samples to distinguish about He sources

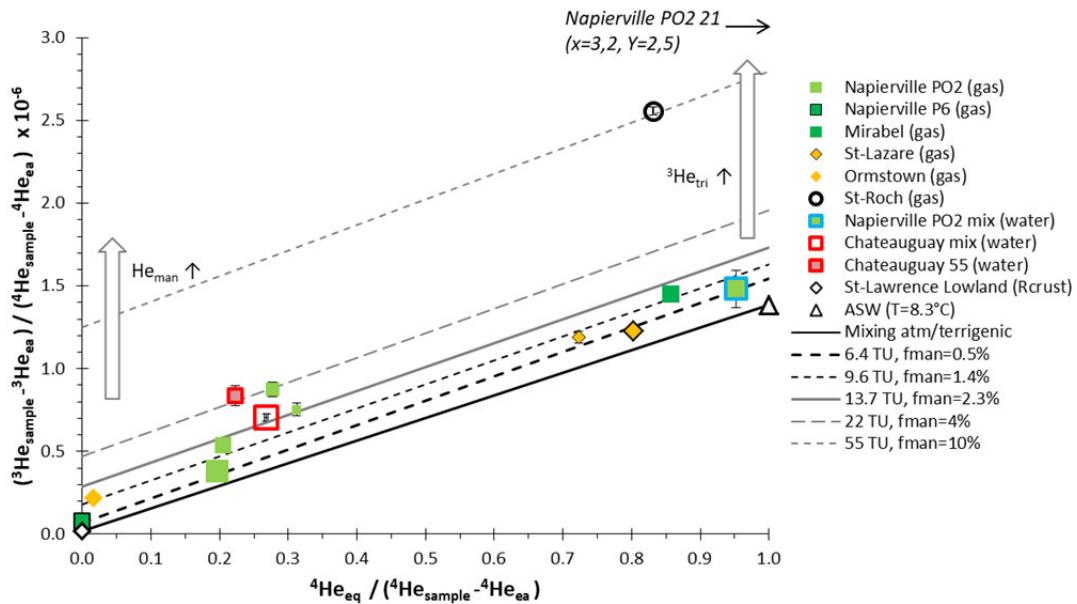


Figure 3.25 : Weise diagram for the evaluation of ³He contributions in samples

Different mixing can be defined in the Weise diagram according to the mantle (f_{man} : mantle fraction of terrigenic helium) and tritiogenic contributions. Mixture slopes are usually justified when aiming to fit with several samples that are assumed to be collected along the same flow path. This cannot be justified in the present case because the samples are taken at separate sites and at different depths, so they are not along the same flow path. Yet, the choice of equal slopes drawn in **Figure 3.25** is arbitrary and different mixtures are set to fit with the samples compositions. But this procedure is still rather more informative for ³He_{tri} composition than **Figure 3.24**. Indeed, the evaluation of tritiogenic helium For St-Lazare, Mirabel, St-Roch, and Napierville PO2 (water) is unambiguous because these samples are placed at the right side of the Weise graph, where the influence of the mantle helium contribution is insignificant. Unfortunately, the quantification of tritiogenic helium becomes more uncertain for all other samples located on the right side of the graph because the contribution of mantle ³He becomes predominant. ⁴He_{terr} (mantle and crust) are calculated from **Equation 3.26**, and ³He_{tri} are estimated from **Equation 3.27**. The

Weise diagram is used to estimate mantle helium contributions (f_{man}), from which R_{terr} (mantle and crust) is calculated for each sample (**Table 3.7**).

Available data show no increasing trend in terrigenic helium with the depth (**Figure 3.24**), suggesting the absence of age stratification based on accumulation of ${}^4\text{He}_{\text{terr}}$. The results for Napierville P6 are not exploitable for dating purposes because of its high terrigenic content ($1.8 \cdot 10^{-3}$ ccSTP/g, representing all the ${}^4\text{He}$ in the sample). Ormstown sample is highly uncertain for dating, as it would contain high proportions of terrigenic ${}^3\text{He}$ ($2.8 \cdot 10^{-6}$ ccSTP/g, 69% from mantle origin). For St-Roch wellbore, mantle helium contribution is the highest ($f_{\text{man}}=10\%$) but most of ${}^3\text{He}$ would be from tritiogenic origin (at the right side of **Figure 3.25**), so that this sample can be dated with ${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$ method. ${}^4\text{He}_{\text{terr}}$ would represent 2 to 97% of the helium in the samples (**Table 3.7**). ${}^4\text{He}_{\text{terr}}$ -rich waters indicate the potential presence of old waters bodies that have accumulated terrigenic helium (Méjean et al., 2016). Previous works carried out in Quebec (Vautour et al., 2015; Méjean et al., 2016; Saby et al., 2016) also showed variable ${}^4\text{He}_{\text{terr}}$ concentrations depending on the wellbores, but with lower maximum concentrations ranging between $1.0 \cdot 10^{-9}$ and $4.4 \cdot 10^{-4}$ ccSTP/g.

Table 3.7 : Results for ${}^4\text{He}_{\text{terr}}$, ${}^3\text{He}_{\text{tri}}$, ${}^3\text{H}$ and ${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$ ages

Sample	${}^4\text{He}_{\text{terr}}$ 10^{-8} ccSTP/g	${}^4\text{He}_{\text{terr}}/$ ${}^4\text{He}_{\text{sample}}$	f_{man}	${}^3\text{He}_{\text{man}}/$ ${}^3\text{He}_{\text{sample}}$	R_{terr} 10^{-8} crust+man	${}^3\text{He}_{\text{tri}}$ TU	${}^3\text{H}$ TU	${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$ (year) R_{terr}	${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$ (year) R_{crust}
NapiervillePO2mix	0.1	2%	0.5%	0%	7.7	5.6	-	-	-
Napierville PO2 21	-3.3	-39%	-	-	-	-	-	-	-
Napierville PO2 35	107	44%	2.3%	13%	29.2	16.2	9.2	17	30
Napierville PO2 45	12.7	62%	4.0%	32%	49.6	18.1	4.9	28	48
Napierville PO2 70	18.9	65%	1.9%	22%	24.4	11.6	5.1	21	41
Napierville PO2 83	19.9	80%	0.5%	13%	7.7	9.1	6.1	16	25
Napierville P6 18	1.8E5	100%	0.5%	73%	7.7	7514.5	7.5	123	168
Mirabel 10	0.8	8%	1.5%	1%	19.6	10.6	13.8	10	11
St-Lazare 79	1.8	22%	0.6%	1%	8.9	7.8	<0.8	>42	>44
St-Lazare 95	1.2	15%	0.3%	0%	4.7	3.9	<0.8	>32	>33
Ormstown 10	276	97%	1.4%	69%	18.4	21.8	2.7	40	89
St-Roch 11	1.0	10%	10.0%	6%	121.5	56.5	9.3	35	37
Chateauguay mix	13.4	64%	2.3%	23%	29.2	14.7	1.5	45	60
Chateauguay 21	-	-	-	-	-	25.2	2.6	37	51
Chateauguay 33-35	-	-	-	-	-	25.2	1.8	42	58
Chateauguay 45	-	-	-	-	-	25.2	3.0	34	49
Chateauguay 52	-	-	-	-	-	25.2	3.4	32	47
Chateauguay 55	17.1	51%	4.0%	24%	49.6	25.2	4.2	35	55

4.6.3 $^3\text{H}/^3\text{He}$ ages

Tritium contents collected by passive sampling range from 1.5 (Chateauguay mix) to 13.9 TU (Mirabel) (**Table 3.7**). For Saint-Lazare samples, the tritium compositions are below the detection limit (<0.8 TU) suggesting the presence of only pre-bomb water. For Chateauguay, $^3\text{H}/^3\text{He}$ ages from passive sampler data were calculated based on the $^3\text{He}_{\text{tri}}$ composition of Chateauguay 55 m (**Table 3.7**), as the latter included all noble gases data. The calculated $^3\text{H}/^3\text{He}$ ages range from 10 (Mirabel) to 45 years (Chateauguay mix), and do not appear to be depth dependent (**Figure 3.26**). For Ormstown, $^3\text{H}/^3\text{He}$ ages are given as an indication only because computation for $^3\text{He}_{\text{tri}}$ is uncertain (69% of ^3He would be from a mantle source). Uncertainties remain regarding the proportions of ^3He from mantle origin. However, if the latter are neglected (i.e. considering $R_{\text{terr}}=R_{\text{crust}}=1.66 \times 10^{-8}$), only 8 of the 14 calculated $^3\text{H}/^3\text{He}$ ages (**Table 3.7**) would be within the range for the $^3\text{H}/^3\text{He}$ dating method (i.e. 0-50 years).

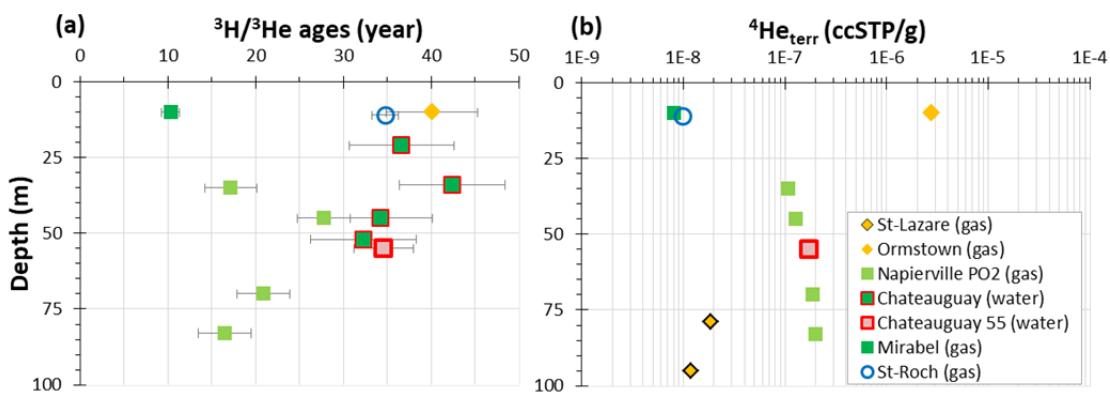


Figure 3.26 : (a) $^3\text{H}/^3\text{He}$ ages and (b) $^4\text{He}_{\text{terr}}$ concentrations at depth

4.7 SF₆ and CFC-12 ages

The Chateauguay well was investigated by sequential sampling of SF₆ and CFC-12 at a given depth (groundwater samples). Concentrations at fractures were calculated by deconvolution of the concentrations sampled at depth (**Equation 3.2**). Volatilities for SF₆ and CFC-12 were calculated in the same manner than for noble gases (**Section 3.2.4-1**), using Bunsen coefficients published respectively by Bullister et al. (2002), Warner & Weiss (1985), at a recharge temperature of 8.3°C (estimated from soils temperature and seasonality of the recharge). SF₆ and CFC-12 concentrations measured in water (**Table 3.8**) were corrected for excess air ($A_{CE}=13.6 \cdot 10^{-3}$ ccSTP/g, $F_{CE}=0.5$, as for Chateauguay mix sample **Table 3.6**). Recharge years (tracer age) are estimated by comparing the calculated ratios at recharge (**Table 3.8**) with atmospheric records at the Washington DC station (USGS, 2018).

Table 3.8 : SF₆ and CFC-12 dating results

Fracture depth (m)	GW concentration (fmol/L)		Volume fraction calculated at the recharge (pptv)		Apparent recharge year		Tracer age (year) (sampling in 2019)	
	SF ₆ err. ±2,0%	CFC-12 err. ±1,5%	SF ₆	CFC-12	SF ₆	CFC-12	SF ₆	CFC-12
21	0,33	159	0,3	24.3	1973	1957	47	62
33 & 35	0,42	229	0,4	35.0	1975	1960	45	60
45	0,36	225	0,3	34.5	1973	1960	46	60
52	0,68	280	0,7	42.9	1978	1961	41	58

Apparent tracer ages range from 41 to 47 years for SF₆ and from 58 to 62 years for CFC-12, thus representing equal tracer ages whatever the depths. The concentrations measured for these two tracers are very low, reaching the lowest range considered for dating both SF₆ and CFC-12. Apparent ages are lagged by about 15 years between CFC-12 and SF₆. Theoretically considering piston flow, such difference would be induced by the potential fading of CFC-12 in the aquifer (Höhener et al., 2003; Sebol et al., 2007). Flow conditions other than piston flow could also explain discrepancies between each tracer apparent ages. But given lowest dating range reached for both tracers, the 15-year lag between SF₆ and CFC-12 becomes rather qualitative. Discussion about mixing conditions is detailed hereafter.

4.8 Evaluation of groundwater mixing conditions

Tritium levels in precipitation (Washington DC station, USGS (2018)) are compared to the sum of ^3H and $^3\text{He}_{\text{tri}}$ for the samples (**Figure 3.27**). The latter sum theoretically represents the tritium concentration in precipitations ($^3\text{H} + ^3\text{He}_{\text{tri}} = ^3\text{H}_{\text{atm}}$) and the corresponding $^3\text{H}/^3\text{He}$ ages allow the estimation of the recharge period (piston flow). Theoretical compositions are also represented considering mixtures with 75% and 95% pre-bomb water with a tritium content of 8 TU (B. Jurgens et al., 2012). Data from the Napierville PO2, St-Roch and Mirabel generally follow tritium compositions at the recharge, suggesting the predominance of post-bomb waters. For Chateauguay and Ormstown, compositions are below historical atmospheric tritium compositions, suggesting the mixing of post bomb waters with up to 75% of pre-bomb waters.

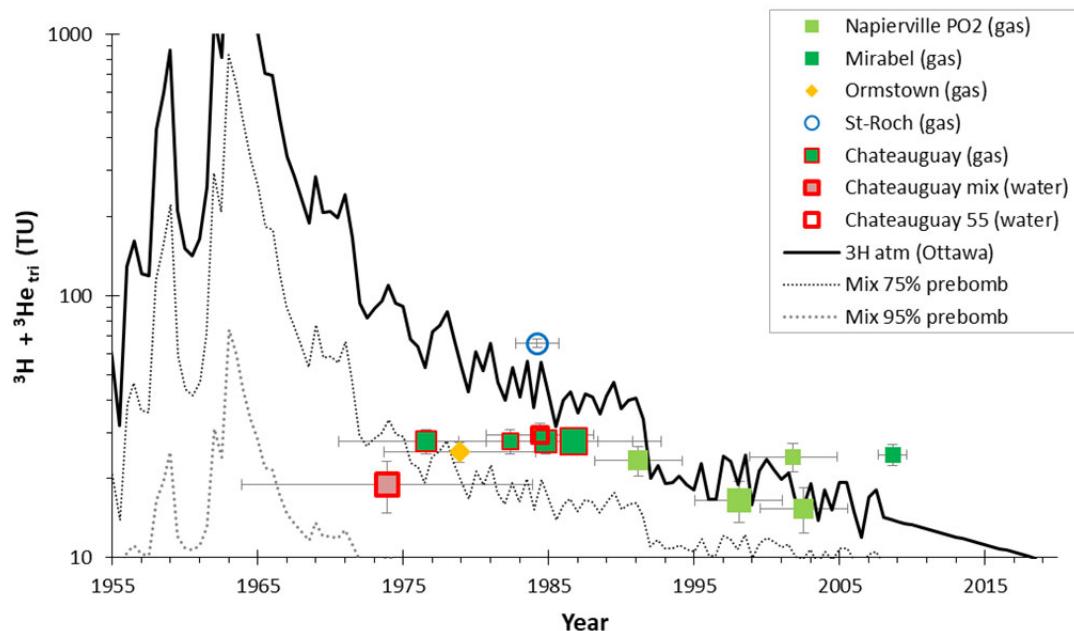


Figure 3.27 : $^3\text{H} + ^3\text{He}_{\text{tri}}$ in samples compared with historical ^3H inputs in precipitations (Ottawa Station) and with compositions of mixing with 75 and 95% pre-bomb water (8 TU). “gas” and “water” refer to the sampling mode for noble gases.

For the Chateauguay well, mixing conditions among "modern" water bodies are estimated using $\text{SF}_6/\text{CFC-12}$ and $^3\text{H}+^3\text{He}_{\text{tri}}/\text{SF}_6$ data. SF_6 and CFC-12 atmospheric ratios calculated are closed to the binary mixing (BMM) between contemporary

waters (2019) and 95% "pre-modern" waters (i.e. ≥ 1960 , SF_6 and CFC-12 free) (**Figure 3.28 a**). As for $SF_6/CFC-12$, the $^3H+^3He_{tri}/SF_6$ comparison (**Figure 3.28 b**) also excludes compositions described by piston flow (PFM). The $^3H+^3He_{tri}/SF_6$ compositions of the Chateauguay well samples would correspond to the binary mixture (BMM) of 40-year-old water (PFM) with 50-75% pre-bomb water, SF_6 free (pre-1960). The compositions could also generally be depicted by an exponential flow model (EMM) with mean age of about 400 to 600 years.

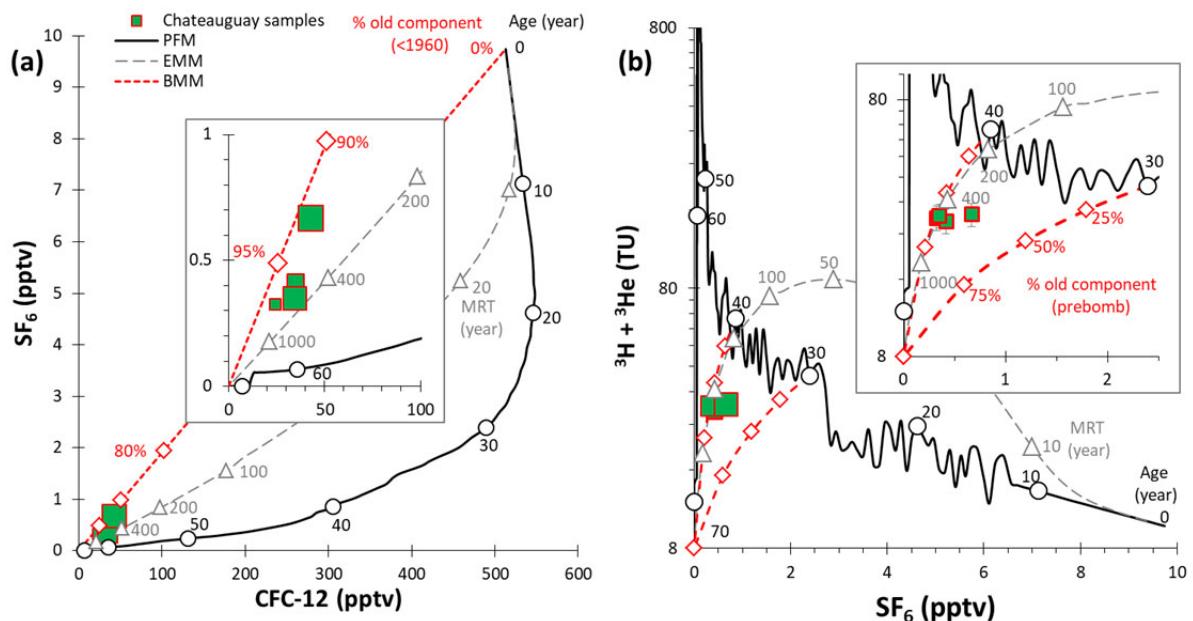


Figure 3.28 : evaluation of flow mixing conditions for Chateauguay wellbore: (a) $SF_6/CFC-12$ compositions and (b) $^3H+^3He_{tri} / SF_6$ compositions compared with those predicted by flow and mixing models (PFM, EMM, BMM)

Compilation of the dating results and potential mixing between water bodies are discussed below for each wellbore. For usage within mixing models, samples ^{14}C activities are corrected by considering the radioactive decay equivalent to ^{14}C ages computed (i.e. $\delta^{13}C_g = -23 \text{‰}$, **Table 3.4**) from an initial activity of $^{14}C_0 = 100 \text{ pMC}$.

- Concerning Napierville P6 18m, $^3H/^3He$ ages cannot be evaluated, as the sample shows extremely important contributions of terrigenic helium. However, this sample has a high tritium content ($^3H = 7.5 \text{ TU}$) and a low ^{14}C activity (i.e. corrected

$^{14}\text{C} = 11 \text{ pMC}$). Such a composition cannot be reproduced, even when considering an "extreme" binary mixture between contemporary water ($^3\text{H} = 10 \text{ TU}$, $^{14}\text{C} = 100 \text{ pMC}$) with fossil water ($^3\text{H} = 0 \text{ TU}$, $^{14}\text{C} = 0 \text{ pMC}$). With such a binary mixture, the fraction of old water would be 25% according to the sample's tritium (7.5 TU), and 88% according to its ^{14}C activity (11 pMC). Since the tritium measurement is considered the most reliable, it is assumed that the ^{14}C age is overestimated with a maximum defect of 64 pMC (i.e. 75-11 pMC). Mixing conditions for the Napierville P6 cannot be quantified, but high tritium composition suggests the predominance of post-bomb waters (i.e. mean tritium age is 5 years considering $^3\text{H}_0=10 \text{ TU}$).

- For Napierville PO2, $^3\text{H}/^3\text{He}$ ages range from 16 to 28 years, but are relatively uncertain because they might be associated with significant mantle ^3He contributions (13 to 32%). Qualitatively, strong terrigenic helium contributions suggest the presence of old water bodies, but this does not allow estimating the mixing conditions for dating, since ^{14}C analysis is not available for this well.
- For St-Lazare, the results for tritium being below the detection limit ($<0.8 \text{ TU}$), and those for ^{14}C being insignificant (^{14}C ages ≈ 0), it is not possible to quantify the mixing conditions. However, these results suggest the presence of waters with mean ages greater than 32 to 45 year considering tritium data (i.e. if $^3\text{H}_0=10 \text{ TU}$ and $^3\text{H} \leq 0.8 \text{ TU}$, tritium age are ≥ 45 years) and $^3\text{H}/^3\text{He}$ ages (i.e. with $^3\text{H} < 0.8$ at samples, $^3\text{H}/^3\text{He}$ ages are >32 and >42 years, **Table 3.7**).
- For Mirabel and St-Roch, the tritium contents are the highest measured (13.8 and 9.3 TU), and suggest the predominance of post-bomb waters (**Figure 3.27**) with mean $^3\text{H}/^3\text{He}$ ages of 10 and 35 years, without contribution of "old" waters, as "zero" ^{14}C ages are computed for those wellbores.
- Chateauguay sample's proportions of "modern" and "old" water bodies cannot be described by piston flow (PFM), suggesting a mixing between "modern" and "old" water bodies (**Figure 3.29**). The samples cannot be all described by exponential nor piston flow model. The binary mixing model (BMM) is then used for discussion

about $^3\text{H}/^3\text{He}$ and ^{14}C compositions (**Figure 3.29**). The latter model representing the mixture of distinct endmembers water bodies, i.e. not following a continuous distribution from one to the other. For Chateauguay, if the recent end member for Chateauguay mix is considered (i.e. $^3\text{H}/^3\text{He}$ age = 42 years at 33-35 m), a mixing with up to 75% of "old" water bodies is possible (**Figure 3.29**). These proportions are qualitative because without another intermediate tracer between $^3\text{H}/^3\text{He}$ and ^{14}C , the proportions and the ages of the endmembers for ^{14}C cannot be constrained. Indeed, Chateauguay sample's compositions may also be depicted with "older" (lower ^{14}C activity) and "younger" (lower $^3\text{H}+^3\text{He}$ compositions) endmembers, leading to lowering the proportion of "old" waters. Such ^{14}C ages less than a thousand years old are not very significant given the range and uncertainties for radiocarbon dating. For example, only slight variation of $\delta^{13}\text{C}_g$ leads to about 800 years difference in the age computed for radiocarbon (i.e. error bars in **Figure 3.29** represents ± 9 pMC, corresponding to $\pm 1 \text{‰ } \delta^{13}\text{C}_g$). Assuming that the proportions of pre-bomb waters identified previously (tritium and $\text{SF}_6/\text{CFC-12}$ dating, **Figures 3.27** and **3.28**) are all "old" (i.e. having a significant ^{14}C age from 200 to 800 years, with $\delta^{13}\text{C}_g = -23 \text{‰}$, **Table 3.4**), the contributions of "old" waters (i.e. few hundred years) for the Chateauguay well are thus estimated to be around 75% of the mixture.

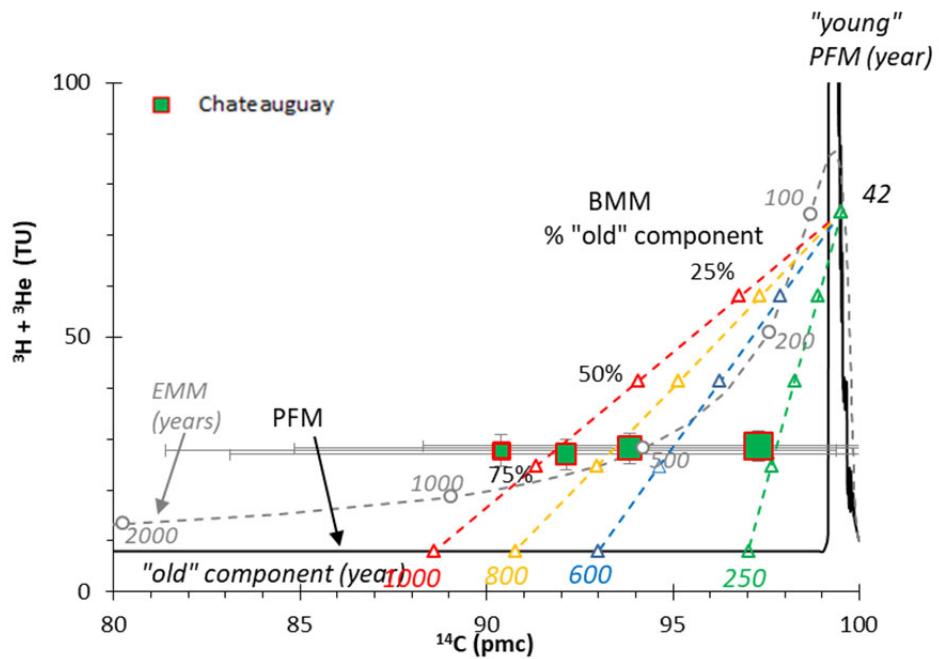


Figure 3.29 : Mixing conditions evaluated for Chateauguay with ${}^3\text{H} + {}^3\text{He}$ and corrected ${}^{14}\text{C}$ activities (i.e. ${}^{14}\text{C}_0=100$ pMC, ${}^{14}\text{C}$ ages computed with $\delta^{13}\text{C}=-23\text{\textperthousand}$). Error bars for ${}^{14}\text{C}$ are given as $\pm 1\text{\textperthousand } \delta^{13}\text{C}_g$.

5. DISCUSSIONS

5.1 Representativeness of sequential sampling with depth in fractured aquifers

Through laboratory testing, the equilibration of passive samplers was demonstrated to be fast with equilibration duration of about 4 hours. *In-situ* tests between low flow sampling at a given depth and passive sampling also showed satisfactory results, with similar compositions for major ions and isotopes of about 2% error (Section 4.2.3). Passive sampling methodology only requires few and robust equipment and is easy to implement, allows versatile choice for sampling classical chemistry (major ions) and non-gaseous tracers (${}^2\text{H}$, ${}^{18}\text{O}$, ${}^{13}\text{C}$, ${}^{14}\text{C}$ and ${}^3\text{H}$). This represents an advantage over means usually required for sampling at significant depths, which generally involves much higher costs and technicality (i.e. multi-level observation wells, packers confining sections in long screened wellbores) and/ or rather delicate handling (low flow pumping, long sampling tubing). One interesting aspect of passive sampling is

the easy collection of water samples at significant depths. For many other methods, uncertainties may arise as to the representativeness of the sample with respect to the depth. For example, the use of packers does not preclude by-pass fluxes from the outside of isolated section due to the interconnection of fractures in the bedrock (Tiedeman & Hsieh, 2001). Uncertainties may also rise about the effective depth of the sampling due to equipment blockage (submersible pumps, tubing and cables) in wellbores, for which sections areas remain usually small. But finally, even if the method is simple, passive sampling also face difficulties that are inherent to the sampling of long screened wellbores in fractured bedrock, as that could likely be impacted by mixing and passive flows.

By constraining fluxes in the water column, the coupling of sequential passive sampling and borehole logging allows to infer about the composition of water inflowing at each fracture. The position of the pump constraining the flows is a determining factor for optimizing the resolution of the sequential sampling. A better resolution for the deconvolution of the composition at each fracture is obtained by placing the pump at a depth corresponding to half the number of productive zones in the well. Following the example of the Chateauguay well (**Figure 3.10**), the sampler placed at 25 m depth directly collects the composition of the fracture at 21 m, and the one at 47 m collects the composition of the fracture at 52 m. The compositions of samplers placed at the 37 and 41 m represent mixed water inflows, but only from two consecutive fractures.

A disadvantage of passive sampling is that the installation and the collection of the samples require two consecutive *in-situ* interventions, with sufficient duration between them to allow for the equilibration of the passive samplers. In the context of fractured aquifers, the quality of passive sampling is optimal when water flows are present in the water column. In this case, the composition of the sampler represents the composition of the water column at the depth where the sample is placed. If the water column is stagnant, the composition of the sampler after equilibration is

theoretically that of the mixture between the composition of the stagnant water in the vicinity of the sampler and the initial content of the sampler. However, it is difficult to imagine a perfectly stagnant water column in a fractured aquifer due to the occurrence of natural convection (Spitler et al., 2016) induced by density difference (temperature and/or solute concentrations), or by the occurrence of very low but permanent passive flows (Poulsen et al., 2019). However, if considering the mixing of a sampler (0.5 L of distilled water) with the water contained in one meter of water column (i.e. 17 L for a 150 mm diameter borehole), the dissolved species collected in the sampler would be impacted by an error of only 2.9%. This is equivalent to the dilution between volumes of stagnant water in section the wellbore and the initial content of the sampler. The impact of samplers (pre-filled with distilled water) in stagnant water would thus be rather minor.

The majority of the wells investigated in this study showed a heterogeneous distribution of productive zones, with occurrence of passive flow inducing different flow directions within the wellbores (**Figure 3.9**). Sequential sampling in fractured (or heterogeneous) aquifers must therefore be preceded by a borehole logging survey. Without it, criteria such as "sampling depth" or "total well depth" might become obsolete for any interpretation regarding the vertical stratification of the aquifer. When the composition of each productive zone is to be determined, flows into the well must be constrained during passive sampling (i.e. Chateauguay well example). Three quarters of the wells sampled in this work were impacted by strong drainage induced by nearby pumping (**Figure 3.9**). Since these flows rates were high, they could not be constrained. Quick performed post-sampling temperature logs allow checking for unchanged flow directions in wellbores, but those cannot be used to quantify flow distribution in this case. These conditions make impossible the deconvolution of concentrations at fractured within mixing zones, but do not affect the information collected outside of them. However, all samplers' compositions collected during this study remained broadly similar through depths, thus not pointing

out significant vertical stratification for geochemistry. Even with the uncertainty regarding the fluxes steadiness in the wells influenced by passive flows, the comparison of the deconvoluted concentrations at fractures (based on pre-sampling complete borehole logging, **Figure 3.30 a)** with those collected at samplers within mixing zones (**Figure 3.30 b)**) do not change the overall hydrogeochemical picture towards TDS.

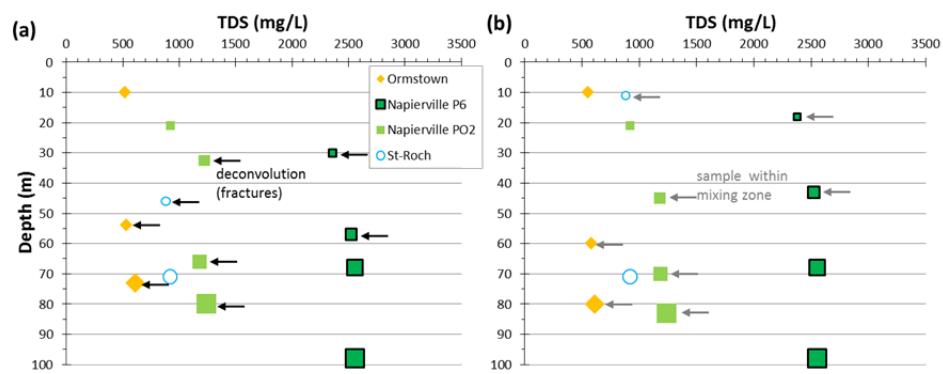


Figure 3.30 : TDS data deconvoluted at fractures (a) compared with those measured with passive samplers at depths within mixing zones (b). Outside of mixing zones (symbols not associated with arrows), composition and depths are directly those of fractures.

5.2 Mineralization and flowing system inferred from major ions and carbon isotopes

Considering that most of sample's pCO₂ are in the same range as those for soil CO₂ (**Figure 3.15**), and considering the ¹⁴C/¹³C isotopic compositions above the Tamers point (**Figure 3.22**), most of the water bodies investigated appear to be “dominated” by dissolution of carbonates by CO₂ (i.e. green zone in **Figure 3.22**). Sample's pCO₂ remain similar per well, meaning that water contribution at fractures would have common recharge area conditions with respect to soil CO₂. St-Lazare and Napierville P6 wells show more advanced isotope exchanges with the carbonated matrix (**Figure 3.22**). Partial CO₂ pressures are lower for the Abbotsford PO5 and St-Lazare wells (**Figure 3.15**), also suggesting a more advanced evolution in a closed system with more intense interaction with the mineral matrix. Greatest TDS do not

however result from carbonates dissolution. The presence of highly soluble minerals (inherited from gypsum dissolution as well as saline inputs) are responsible for the most important TDS observed (i.e. Napierville P6 and PO2, Abbotsford PO5). When they are significant, the contribution of these soluble minerals systematically increasing with the depth, as observed for the Napierville (P6 and PO2), Abbotsford (PO5 and PO7), Ormstown and St-Roch wells (**Figure 3.14**). This is likely attributed to more stagnant waters at depths, while these minerals would have been flushed at shallower depths. Cation exchange is very likely for most waters ($\text{Na}/\text{Cl} > 0.86$, **Figure 3.19**). Depending on the sodium intake (and calcium uptake), cation exchange may lower saturation equilibrium towards carbonates, eventually allowing more of them to dissolve, contributing to an increase in water mineralization.

5.3 Flowing system inferred from tracers

For all samples collected, radiocarbon activities never provide straight forward information about the "age" of the water. Constraining radiocarbon ages with ^{13}C data appears essential in all cases. For instance, S-Lazare samples have ^{14}C activities for about 30 pMC, which without correction would give ^{14}C ages of about 10 000 years. But enriched $\delta^{13}\text{C}$ compositions ($\approx -6\text{\textperthousand}$ VPDB) highlight an intense exchange with carbonates, finally leading to a "zero" radiocarbon age. The graphical representations show how sensitive the correction models are towards $\delta^{13}\text{C}_g$, particularly for water bodies dominated by exchange with soil CO_2 . $\delta^{13}\text{C}_g$ is unfortunately rarely measured at sites. Radiocarbon ages computed for wellbores influenced by nearby pumping all lead to "recent" waters (i.e. ^{14}C age ≈ 0). Radiocarbon age for Napierville P6 (^{14}C age $\approx 18\text{ 000 years}$) are invalidated by dating computation involving more recent tracers (^3H , $^3\text{H}/^3\text{He}$), thus excluding the potential presence of "old" water bodies for those wellbores (**Section 4.8**). Only Chateauguay wellbore would be associated to significant, although "young" ^{14}C ages (i.e. 200 to 800 years, **Table 3.4**) considering $\delta^{13}\text{C}_g = -23\text{\textperthousand}$, the isotopic soil CO_2 signature generally considered in Quebec's context (Vincent Cloutier et al., 2006; Saby et al., 2016). For all wellbores (but for

Napierville PO5), stable isotopes compositions do not suggest significant contributions of Pleistocene melt waters. It is to be noted that in the context of carbonate aquifers, analytical solutions (Tang et al., 1981; Ward E. Sanford, 1997) or physical-based models (Małoszewski & Zuber, 1985; Maloszewski et al., 2004) have shown that over a sufficiently large time and space scales, the effect of molecular diffusion from the stagnant porous matrix may become dominant. ^{14}C dating, which intends to determine the residence time of the "mobile" water in fractures, would then also report the contribution of water from the porous matrix, which is predominant by volume. Physically based models were not investigated along this work, but it is assumed that the radiocarbon models constrained with $\delta^{13}\text{C}$, integrate and correct for such diffusive exchange with stagnant waters from the carbonate matrix.

Generalized detection of tritium reports the presence of "modern" waters in all wells except for St-Lazare. For St-Lazare, tritium content below detection limit ($^3\text{H} < 0.8$) leads to ^3H ages greater than 45 years, and $^3\text{H}/^3\text{He}$ ages greater than 32 and 42 years, and with no significant age for ^{14}C . For Mirabel ($^3\text{H}/^3\text{He}$ age=10 years), Napierville PO2 ($^3\text{H}/^3\text{He}$ age from 16 to 28 years) and St-Roch ($^3\text{H}/^3\text{He}$ age=35 years), $^3\text{H}/^3\text{He}$ analysis (**Figure 3.27**) reports only post-bomb waters. For Ormstown ($^3\text{H}/^3\text{He}$ age = 40 years) and Chateauguay ($^3\text{H}/^3\text{He}$ age from 32 to 42 years), mixing between post bomb waters would include up to 75% of pre-bomb waters. The latter "old" component for Ormstown gave insignificant ^{14}C age. The interpretation for the Chateauguay well has been better refined given multi-tracing with $^3\text{H}+^3\text{He}$ /SF₆ and SF₆/CFC-12. Chateauguay is the one wellbore not being disturbed by intensive neighbouring pumping. The portrait for this wellbore is then likely representing natural aquifer conditions. The latter can be described as the presence of not stratified modern waters bodies (mean age 30 years) in binary mixing with up to 75% prebomb waters associated to low but significant ^{14}C ages (200 to 800 years). However, strong uncertainties remain about ^{14}C dating for all wellbores as $\delta^{13}\text{C}$ in soils were not measured.

5.4 Recharge area length and confinement conditions evaluated from ${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$ ages

Recharge rates were compiled from ${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$ ages by considering equations for hydraulic age (Vogel, 1967) for unconfined and confined aquifers (**Equation 1**). Recharge was estimated by arbitrarily considering a fractured aquifer thickness of 100 m, and using the apparent porosities measured during logging (**Section 2.6.1**), or an arbitrary bedrock porosity of 2.5%. Recharge rates were adjusted by varying the ratio confined distance/recharge distance ($R_{c/u} = x^*/x$ in **Equation 1**), to fit recharge rates with those for till (i.e. ≈ 150 mm/year, Larocque et al. (2013)). The results are compiled in **Table 3.9**.

Table 3.9 : Recharge area length and confinement condition computed from ${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$ ages

Wellbore	Context from Quaternary cover at the wellbore	Upstream Distance to permeable sediment (cartography)	Depth (m)	${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$ age (year)	Apparent wellbore porosity	$R_{c/u}$ confined/unconfined distance ratio	Computed recharge rate (mm/year)		Computed recharge area length (m)
							apparent porosity	porosity 2.5%	
Napierville PO2	Confined	600 m (Till)	35	17	2.2%	0.8	150	174	800
			45	28	2.2%	1.4	150	174	450
			70	21	2.2%	0.3	150	173	2 400
			83	16	2.2%	0.3	280	324	2 000
Chateauguay	Confined	1.2 km (Thin till on bedrock)	55	35	0.6%	1.3	36	150	950
Mirabel	Semi-Confining	1.5 km (Till)	10	10	0.5%	0.5	28	150	3 000
Ormstown	Unconfined	0 m (Till)	10	40	0.2%	2.3	13	150	-
St-Roch	Unconfined	0 m (Litoral sand on till)	11	35	0.6%	2.0	36	150	-

Captive conditions are considered at the location of Napierville PO2 according to the nature and thickness of unconsolidated deposits (**Section 2**). For this well, $R_{c/u}$ ratios ranging from 0.3 to 1.4 allow to model typical recharge rates for till using the apparent porosity measured at the well (i.e. 2.2%). This would correspond to recharge zone having lengths of 800 m, 450 and 2.4 km for fractures 35, 45 and 70 m deep (**Table 3.9**). For the fracture at 83 m depth, even an unrealistically very low ratio $R_{c/u}$ of 0.001 does not allow to model typical recharge rates for tills (over 250 mm/year), while giving recharge eras length of more than 20 km. For this latter fracture, the $R_{c/u}$

ratios was arbitrarily set at 0.3 (as for the fracture at 70 m deep), then suggesting higher recharge rate (280 mm/year) but with similar recharge length area (2000 m).

For the other wells, the apparent porosities estimated are low, leading to unrealistic recharge rates (i.e., 14, 5, 1 and 2 mm/year modeling unconfined conditions for Châteauguay, Mirabel, Ormstown and St-Roch). For the latter wellbores, the porosity of the aquifer is arbitrarily adjusted to 2.5%. Ormstown, St-Roch and Mirabel wells would be located within unconfined or semi-confined context depending on the thickness and nature of the unconsolidated deposits (**Section 2**). However, the recharge rates mentioned above are very low and the calculations presented in **Table 3.9** are therefore based using captive conditions equation. For these wells, $R_{c/u}$ ratio varies from 0.5 for Mirabel to 2.3 for Ormstown. The distance to the recharge zones for the Chateauguay and Mirabel being available, the lengths of their recharge zones can be calculated, which gives respectively 950 m and 3 km. For Ormstown and Saint-Roch wells, only the $R_{c/u}$ ratios can be estimated, since the local context for latter wellbores is unconfined.

These estimates remain highly uncertain given that recharge rates in tills (heterogeneous in nature) can vary greatly spatially below and above 150 mm/year. The modeling is carried out in 2D, and it is idealised as for homogeneous and isotropic aquifer, which is far from the current situation of heterogeneous fractured aquifers. However, these calculations suggest fractures orientation and extend would determine the flow path from the recharge, particularly for Saint-Roch and Ormstown wellbores, which are yet clearly placed in the context of unconfined aquifer based on the nature of the Quaternary deposits.

5.5 Residence time and water quality

In the context of "modern" waters bodies, the influence of residence time on water mineralization is investigated by comparing anions with tritium contents (**Figure 3.31**). All wells combined, simultaneous increase in total mineralization and

decrease in tritium content is never observed (**Figure 3.31 a**). This suggests that residence time for "modern" waters is unlikely affecting the total mineralization. This portrait is the same regardless of the mineralization processes considered for carbonates (**Figure 3.31 b**), saline inputs (**Figure 3.31 c**) and sulfate (**Figure 3.31 d**). Only the Ormstown wellbore would show significantly decreasing in tritium content with increasing sulfate concentrations. This latter trend is also function of the depth, suggesting that a slight vertical stratification with the depth due to residence time is possible for the Ormstown wellbore. For the other wells, no significant depth-dependent mineralization/tritium trends are apparent.

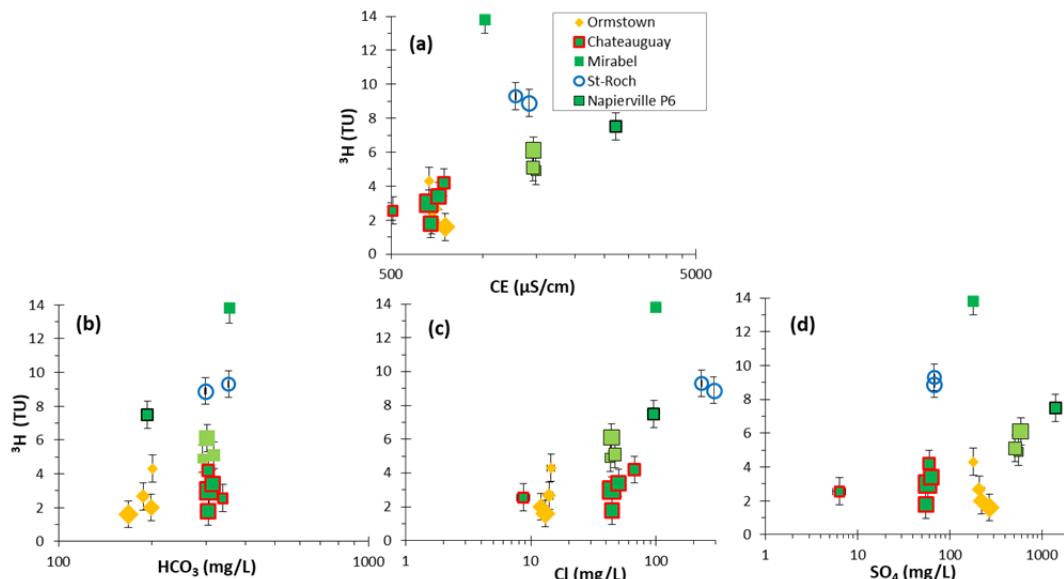


Figure 3.31 : ${}^3\text{H}$ content compared with groundwater mineralization: (a) electrical conductivity, (b) bicarbonates, (c) chlorine and (d) sulfate

Considering "modern" water bodies, residence times (evaluated at time scale for tritium) are apparently not playing a role in water mineralization. The vulnerability of waters to surface contamination since the beginning of the industrial era (post 1960) can be estimated with recent tracers (${}^3\text{H}$, ages ${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$ and SF_6). Groundwater containing larger proportion of pre-bomb water (Chateauguay, Saint-Lazare, Ormstown) would thus be much less vulnerable to anthropogenic pollutions than those containing only post-bomb water (Napierville PO2, St-Roch, Mirabel). If any

pollution is present in post bomb water, its dilution would be proportionally equivalent to the proportion of pre-bomb waters, supposedly less impacted by pollution since intensification of agriculture and other industries. It should also be noted that nitrates, which can serve as a qualitative tracer to identify anthropogenic sources of pollution, were not detected in any of the samples collected. Because of the heterogeneous distribution of fracture networks in the bedrock, binary mixing between modern water bodies (post and pre-bomb waters), and with insignificant age stratification given the tracer used, depth/residence time relationship cannot be inferred geometrically. This leads to an additional difficulty for the calibration of residence times in numerical flow-transport models. If the relationship depth/residence time cannot be anticipated, the "tracer" ages cannot be extrapolated for wellhead protection areas. Indeed, the age resolution for tracers (i.e. at least few years for ${}^3\text{H}$, ${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$ and SF_6) is much larger compared to wellhead protection area (WHPA) criteria (i.e. bacteriological and virological WHPA criterion are respectively 200 and 550 days in Quebec). Without another more "recent" tracer, these remarks suggest additional challenges to precisely constrain the protection of groundwater resources in the context of these fractured aquifers.

6. CONCLUSIONS

The use of passive samplers appears particularly suitable for the sequential sampling of groundwater at depths, and for solutes of interest regarding water quality (major ions) and for non-gaseous tracers (^2H , ^{18}O , ^3H , ^{13}C and ^{14}C). The installation and the removal of the passive samplers are robust and simple, even for depths up to 100 m, the maximum depth investigated in this study. This sampling mode demonstrated its efficiency to collect solutes in groundwater at depth, and showed equilibration times within only few hours. Regardless of the method, samples sequentially collected in fractured aquifers (within long screened wellbores) must be coupled with borehole logging investigations. Otherwise, "sampling depth" and/or "total wellbore depth" becomes ambiguous parameters regarding interpretation about groundwater stratification, if any. Control and knowledge of the flowing conditions in the wellbore must be ensured during the sampling period, otherwise inflow compositions at fracture cannot be deconvoluted from the passive samplers located within mixing zones. For the majority of fractured aquifer investigated within 0-100 m depth, groundwater bodies appear modern. According to the calco-carbonic system, the majority of the investigated waters are dominated by carbonates weathering. However, these "modern" waters showed rather limited evolution in a closed system conditions towards CO_2 . Isotopic exchange between DIC and carbonate matrix and cation exchange are evident and still testifies about a certain evolution of groundwater within the aquifers. ^{14}C dating computations lead to the non-significant contributions of "old" water bodies for all wells influenced by nearby pumping. Only Chateauguay wellbore, thought to represent natural flowing conditions, shows significant ^{14}C ages (few hundred years). But ^{14}C ages remains largely uncertain as data for ^{13}C in soils were not measured. Investigation with recent tracers (i.e. ^3H , $^3\text{H}/^3\text{He}$, SF_6) report the presence of modern water bodies mostly post-bomb (57% of the wells), or in binary mixture with significant contributions, reaching or exceeding 75% pre-bomb water (43% of the wells). These "modern" water bodies do not show depth-distributed

stratification and are rather site-specific and heterogeneously distributed according to small differences at fractures for each wellbore. Water mineralization does not appear to be related to the residence time of these "modern" groundwater bodies. Only a slight chemical stratification is observed in relation to the presence of the most soluble minerals (sulfate and saline inputs) which would tend to accumulate in stagnant/low permeability zones at depth and preferentially for wells that are not or poorly drained/exploited. All the data collected would thus suggest poorly stratified aquifer systems, with relative "rapid" flows, whatever the depth, especially when the well bores are influenced by nearby anthropogenic withdrawn. But even considering natural conditions (i.e. Chateauguay wellbore), the development of confining conditions within fracture networks, able to change geochemistry or residence time at depths, is not apparent.

3.4 Conclusions du chapitre III

L'utilisation d'échantilleurs passifs apparaît particulièrement adaptée pour la collecte séquentielle d'eau souterraine selon la profondeur pour des solutés d'intérêt, tant pour la qualité de l'eau (ions majeurs) que pour les traceurs non gazeux (^2H , ^{18}O , ^3H , ^{13}C et ^{14}C). Comparé à d'autres méthodes d'isolement par section, pompage en profondeur ou de système mécanique plus complexes, la pose et le relevage des échantilleurs passifs est robuste et simple à mettre en œuvre, même pour des profondeurs atteignant 100 m, profondeur maximale sondée dans cette étude. Ce mode d'échantillonnage a démontré une bonne reproductibilité des concentrations testées selon les ions majeurs et les isotopes stables. L'équilibration des échantilleurs passifs est rapide et réalisée en quelques heures. Indépendamment de la méthode, les échantillons récoltés séquentiellement dans les aquifères rocheux fracturés doivent impérativement être couplés avec des investigations diagraphiques préliminaires. Sans quoi, profondeur d'échantillonnage et profondeur totale du puits deviennent des paramètres qui perdent leur signification pour l'interprétation de la stratification de l'eau. La distribution des zones productives et la présence de débits

éventuels (passifs ou induits par pompage voisins) contrôlent la composition de la colonne d'eau dans le puits, masquant aisément les stratifications naturelles. Le contrôle et la connaissance des flux dans la colonne d'eau doivent également être assurés pendant la durée de l'échantillonnage, sans quoi les compositions aux fractures ne peuvent pas être déconvolées à partir des compositions collectées par les échantilleurs placés dans les zones de mélanges.

Pour la majorité des aquifères qui ont été investigués dans les Basses-Terres sur une profondeur de 100 m, les masses d'eau souterraine apparaissent modernes. Selon le système calcocarbonique, la majorité des masses d'eau, même profondes, auraient cependant subi une évolution limitée en système fermé. Les pressions partielles de CO₂ des échantillons sont différentes pour chaque site selon les conditions appréhendées à la recharge, et elles évoluent peu en zone saturée, selon la profondeur. Les échanges isotopiques entre le carbone inorganique dissous et la matrice carbonatée et l'échange cationique sont cependant des processus bien présents qui témoignent d'une évolution de l'eau souterraine dans l'aquifère. Les minéralisations les plus importantes sont dues à la présence de minéraux très solubles (gypse et apports salins). La datation radiocarbone ne relève pas la présence de masses d'eau significativement anciennes pour tous les puits influencés par les drainages voisins. En conditions naturelles (i.e. Châteauguay), les masses d'eau plus anciennes sont apparentes, mais restent relativement "jeunes" d'un point de vue ¹⁴C (quelques centaines d'années). L'investigation avec les traceurs plus récents, ³H, âges ³H/³He, âges SF₆ et CFC-12 montre la présence de masses d'eau modernes majoritairement post-1960 (57 % des puits datés), ou en mélange binaire avec des contributions importantes, atteignant ou dépassant 75 % d'eau pre-1960 (43% des puits datés). Ces masses d'eau « modernes » ne suivent par ailleurs pas de stratification distribuée selon la profondeur et sont plutôt fonction de chaque site et varient peu, et de manière hétérogène selon les fractures pour chaque puits. La minéralisation des eaux n'apparaît pas reliée au temps de résidence de l'eau souterraine qui reste « moderne ».

Seule une légère stratification chimique est observée relativement à la présence des minéraux les plus solubles (gypse et apports salins) qui auraient tendance à s'accumuler en zones stagnantes/ peu perméables en profondeur et préférentiellement pour les puits pas ou peu drainés et hors zones exploitées. L'ensemble des données collectées suggérerait ainsi la présence des systèmes aquifères peu stratifiés, avec des écoulements « rapides » induits par les fractures discrètes, quelle que soit la profondeur. Des conditions de confinement induites selon l'architecture des réseaux ne sont pas clairement établies, ou en tout cas, ne permettent pas de déceler de changements ni sur la composition, ni sur le temps de résidence de l'eau souterraine.

CONCLUSIONS

Cette recherche a concerné l’investigation verticale physique et hydrogéochimique d’aquifères rocheux fracturés carbonatés des Basses-Terres du Saint-Laurent (Québec, Canada), sur une fenêtre d’observation atteignant cent mètres de profondeur. Ces travaux visaient à accompagner les connaissances massivement collectées depuis 2008 au Québec par les projets d’acquisition de connaissances sur les eaux souterraines (PACES). L’approche privilégiée pour cette recherche étant l’investigation d’un nombre plus restreint de puits, mais réalisé d’une manière plus détaillée pour chacun. Pour les hydrogéologues TechnoRem et Envir'Eau-Puits, les développements méthodologiques en thermique et en échantillonnage séquentiel sont opérationnels. Ces méthodologies sont robustes et permettent des investigations détaillées aux puits, utilisables pour la ressource en eau potable (qualité et productivité), et pourraient également être utilisées pour les sites contaminés. Concernant la protection des captages, des défis demeurent concernant la modélisation sereine des aires de protection en contexte d’aquifère rocheux fracturé. Cet aspect est discuté dans les axes de recherche, section 4.5.

4.1 Conclusions générales

La recherche menée a comporté une première composante physique focalisant sur les relevés en diagraphie en température. La deuxième composante a porté sur le développement d’échantilleurs passifs permettant la collecte séquentielle d’échantillons d’eau souterraine. Le couplage de ces méthodes permet de discuter de la représentativité des données collectées en fonction de la profondeur. Au total, vingt et un (21) forages d’une profondeur comprise entre 22 et 128 m ont été investigués

par diagraphie en température haute résolution. Quinze (15) de ces puits sollicités en pompage ont également inclus des relevés microvélométriques et optiques. Trente-huit pour cent (38%) des puits diagraphiés ont présenté des débits passifs naturels ou imputables à l'influence de pompages municipaux voisins. Dix (10) puits présentant une distribution de zones productives favorables ont fait l'objet d'investigations hydrogéochimiques. Vingt-neuf (29) échantillonnages séquentiels ont été collectés pour les ions majeurs et les isotopes stables de l'eau, dix-sept (17) pour le tritium, treize (13) pour le ^{14}C et le ^{13}C , quinze (15) pour les gaz rares et quatre (4) pour le SF₆ et le CFC-12.

Les résultats diagraphiques révèlent une grande hétérogénéité sur la distribution des fractures et leurs transmissivités selon la profondeur. Quatre-vingts pour cent (80%) des zones productives identifiées ($n=54$ pour 15 forages) ne sont pas distribuées et sont des fractures discrètes ou des conduits, dont l'ouverture apparente est comprise entre 1 et 40 cm. Les transmissivités des fractures sont très inégales ($1.9 \cdot 10^{-2}$ à $2.2 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$, moyenne harmonique $2.6 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$) et aucune tendance n'est discernable selon la lithologie. Les quinze (15) relevés thermiques en pompage montrent autant de puits pour lesquels les réseaux de fractures drainent des horizons aquifères profonds, ou l'inverse, drainent des horizons superficiels depuis la surface. La plupart des évolutions en système fermé vis-à-vis du CO₂ seraient toutefois relativement limitées pour des eaux qui apparaissent « modernes ». Les minéralisations les plus élevées sont essentiellement liées à la dissolution de matériaux très solubles (gypse et apports salins). Les résultats en datation mettent en lumière la présence majoritaire de masses d'eau « modernes » (c.-à-d. âges $^{3}\text{H}/^{3}\text{He}$ et SF₆ et de 16 à 45 ans), dont une moitié comportant essentiellement des eaux post-1960, et l'autre moitié en mélange disparate (mélange binaire) avec des proportions atteignant 75% d'eaux pré-1960. La composition minérale ne varie pas ou très peu selon la profondeur, et quand elle survient, serait essentiellement liée à la présence de minéraux très solubles en zones profondes et stagnantes, bien que ceci n'apparaisse pas associé à des temps de

résidence plus élevés en profondeur. L'ensemble des données collectées montrent ainsi une distribution hétérogène des zones productives selon la profondeur. Les masses d'eau « modernes » identifiées seraient reliées à des écoulements « rapides » dans les réseaux de fractures, quelle que soit la profondeur. Ces écoulements mélangés « modernes » ou « jeunes » n'induisent pas de stratification évidente des masses d'eau sur la fenêtre d'observation 0-100 m de profondeur pour les puits investigués.

Une analogie avec le modèle conceptuel des écoulements souterrains en dépendance avec la topographie et l'échelle des bassins versants (Tóth, 1999) peut être réalisée pour les puits de Châteauguay (Figure 4.1), ce dernier présentant des conditions d'écoulement naturelles. En se basant sur le modèle d'élévation numérique (Figure 4.1 (a)), le puits de Châteauguay est situé dans un fond de vallée, à une élévation d'environ 50 m. Le fond de cette vallée est couvert par des dépôts organiques reposants sur un till argileux d'une épaisseur de 15 mètres, induisant des conditions captives pour l'aquifère rocheux à l'emplacement du puits. Les zones de recharge présumées pour l'aquifère rocheux captif de la vallée sont situées au sud. Les terrains situés en amont hydraulique sont couverts par un till mince favorisant la recharge, et atteignent des élévations de 130 m. La profondeur, la position des fractures ainsi que les résultats pour le tritium le radiocarbone du puits de Châteauguay sont replacés dans le contexte du profil topo géologique de la région (Figure 4.1(b)).

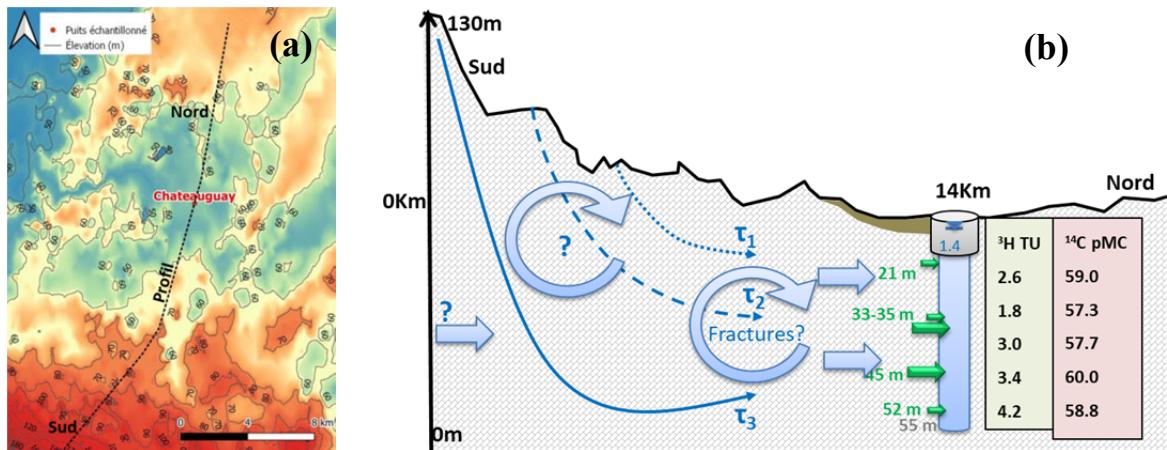


Figure 4.1 : Caractéristiques du puits de Châteauguay (profondeur, position des fractures, données datation tritium et radiocarbone) placées dans le contexte topo géologique de la région : (a) carte du modèle d’élévation (b) profil topo géologique et emplacement du puits

En se basant sur le modèle conceptuel de Tóth (1999), des écoulements régionaux plus ou moins profonds peuvent être anticipés selon la topographie, engendrant des lignes d’écoulement associées à des temps de résidence croissant selon la profondeur ($\tau_1 < \tau_2 < \tau_3$). Selon ce modèle conceptuel, une stratification verticale de l’âge devrait être observée selon la profondeur des fractures interceptant le puits de Châteauguay. Cependant, les données en datation montrent : 1) l’absence de stratification verticale d’âge selon les deux traceurs (^3H et ^{14}C) et 2) la présence simultanée d’eaux « récentes » (détectation du tritium) et « anciennes » (activités radiocarbone relativement faibles) en mélange pour chaque fracture. Bien que le contexte hydrogéologique d’aquifère captif induirait plutôt des écoulements plutôt latéraux à l’amont immédiat du puits (soit plutôt l’absence de stratification verticale), les données en datation suggèrent un mélange marqué des eaux bien en amont de la zone captive. Il est vraisemblable que ce soit les réseaux de fractures qui contribuent au mélange des eaux provenant des différentes zones de recharge. Dans ce cas d’aquifère fracturé, le concept suggérant des lignes d’écoulement uniquement contrôlées par la topographie des bassins versants n’apparaît pas être pertinent. Pour le puits de Châteauguay, il ne peut pas être exclu que des contributions d’eau plus « anciennes » proviennent d’écoulements superficiels dans le roc fracturé (plutôt que d’écoulements profonds), et que les temps de résidence plus élevés soient simplement dus aux contributions des zones de recharge les plus éloignées du puits.

Les autres puits qui sont influencés par des pompages voisins (puits de Mirabel, Ormstown, Napierville et Saint-Roch) ne sont pas comparés au modèle conceptuel de Tóth (1999) puisqu'il est anticipé que les drainages forcés modifient des écoulements souterrains par rapport aux conditions naturelles d'écoulement. Dans ce cas, les drainages forcés solliciteraient plus favorablement les réseaux de fractures alimentés depuis les zones de recharge les plus proche des pompages, contribuant au drainage de masses d'eau plus « jeunes ».

4.2 Apports et contributions de la recherche

Aspects particuliers mis en lumière par l'investigation diagraphique détaillée :

Les investigations diagraphiques, concernant notamment la thermométrie, ont permis de mettre en évidence la présence de débits induits dans les puits. Qu'ils soient naturels (débits passifs permanents) ou d'origine anthropique (pompage voisin), la présence de ces débits induits s'est révélée être très fréquente dans les puits investigués. Comme mentionné au paragraphe précédent, les écoulements forcés dus aux pompages voisins doivent modifier considérablement la composition de l'eau par rapport aux conditions naturelles d'écoulement d'eau souterraine. Il s'avère également que même des écoulements passifs faibles et naturels peuvent facilement contrôler la composition de la colonne d'eau du fait que ces derniers sont permanents (Voir exemple en section 3.2.2). Une des surprises des relevés diagraphiques a été de constater la présence de flux d'eau verticaux extrêmement importants dans les puits influencés par des pompages voisins (c.-à-d. jusqu'à 140 L/min puits Mirabel, annexe A2). Ou encore, que l'influence des pompages voisins pouvait être très importante, même sur de grandes distances (c.-à-d. jusqu'à 40 L/min pour les puits d'Ormstown, selon un puits de pompage distant de plus de 500 m, annexe A2).

Nature de la fracturation :

Les mesures diagraphiques réalisées n'indiquent pas de distribution particulière des conductivités hydrauliques selon la profondeur (section 2.6.1). Une des particularités

des mesures diagraphiques détaillées (en particulier du couplage de la thermométrie et des relevés optiques) est d'avoir permis d'identifier la présence de zones productives plutôt constituées par des fractures discrètes que par des horizons des fractures distribuées. Il est également constaté qu'une seule fracture centimétrique peut tout à fait constituer l'unique apport d'eau pour un puits productif. On notera sur cet exemple les puits productifs Abbotsford (PO-7, capacité estimée à 340 L/min) et le puits d'Hemmingford (PCL, capacité estimée à 80 L/min), présentant respectivement des fractures uniques à 10 et 30 m de profondeur. La profondeur de ces fractures discrètes est à mettre en perspective avec l'extension des aires d'alimentation des puits. Il est probable que l'extension des aires d'alimentation soit dépendante de la profondeur des fractures (soit croissante selon la profondeur des fractures). En l'état actuel, ces travaux de thèse concernant la diagraphie thermique ne permettent cependant pas d'anticiper quantitativement l'extension des réseaux de fractures, et en suivant, ne permettent pas d'anticiper l'extension des aires d'alimentation (voir section 4.5 pour les perspectives de recherche).

Intérêts spécifiques de la thermique :

Les données de profondeur-température recueillies dans cette étude ont rappelé la capacité de la technique à localiser précisément les zones productives dans les puits. De tels profils recueillis avec une thermistance à haute résolution ont spécifiquement démontré leur capacité de révéler des débits très faible, eux-mêmes indétectables avec un micromoulinet. L'utilisation du bilan thermique améliore nettement la lisibilité des profils thermiques en statique et en dynamique, qui autrement peuvent s'avérer relativement complexes à interpréter. L'utilisation du bilan thermique permet également de calculer l'évolution de la température des zones productives pendant le pompage. C'est sur ce point que la température "en tant que traceur gratuit" apporte sans doute la plus grande pertinence et le plus de potentiel, car elle fournit des

informations sur l'origine des eaux souterraines alimentant le puits, information très difficile à obtenir par d'autres moyens.

Applicabilité en recherche et pour l'industrie :

Bien qu'essentielles pour la compréhension de systèmes d'écoulement et des aspects liés à la qualité de l'eau en contexte d'aquifère rocheux fracturé, les investigations verticales (physique et hydrogéochimiques) représentent toutefois un investissement en temps et en moyens accru par rapport à un échantillonnage ou à un essai de pompage classique. Les techniques utilisées pour la diagraphie thermique et l'échantillonnage passif de l'eau contribuent cependant à faciliter ce type d'investigation, car ces méthodes sont robustes et au moins relativement faciles à implémenter sur le terrain tant pour des fins de recherche que pour des applications industrielles. Le calculateur thermique (« BHB Calculator ») développé pendant ces travaux de thèse est destiné aux hydrogéologues et aux chercheurs qui souhaitent améliorer la lisibilité des profils complexes profondeur-température et de pouvoir effectuer une analyse quantitative rapide. D'utilisation simple, le calculateur est polyvalent pour la modélisation de profils thermiques selon diverses configurations de pompage, et à partir de mesures de température acquises avec fibre optique ou thermistance. Permettant la mesure de profils instantanés selon la en profondeur, la fibre optique offrirait une meilleure résolution spatiale et une meilleure observation en conditions transitoire. En ce sens, elle pourrait être avantageusement utilisée en plaçant la pompe à n'importe quelle la profondeur dans le puits. Ce qui n'est pas le cas pour les thermistances, car ces dernières représentent un encombrement dans le forage lors des mesures. Cependant, la résolution des sondes à thermistance reste aujourd'hui bien meilleure que celle de la fibre optique, ce qui les rend (à ce jour) plus adaptées pour la caractérisation des faibles débits et /ou dans le contexte où les géogradients thermiques naturels sont généralement faibles (sans chauffage provoqué). Concernant hydrogéochimie, l'efficacité des échantilleurs passifs pour

l'eau a été validée en laboratoire et sur le terrain. La pose et la collecte de tels échantillonneurs sont simples et ces derniers peuvent ainsi être utilisés pour des fins de recherche comme dans le domaine industriel. Ces échantillonneurs permettent la collecte de données pour la qualité de l'eau, la géochimie isotopique, et pour les traceurs environnementaux non gazeux. Bien que cela n'ait pas été testé lors de la thèse, l'utilisation des échantillonneurs passifs pourrait très bien concerner l'échantillonnage de contaminants dissous dans l'eau (c.-à-d. métaux, hydrocarbures), dans le cadre de la caractérisation et de la réhabilitation de sites contaminés.

4.3 Limitations des investigations verticales réalisées

Limite de la représentativité physique et hydrogéochimique des puits investigués par rapport au portrait « global » pour les Basses-Terres :

La représentativité des données collectées aux puits qui ont été investigués peut être distinguée selon deux critères importants, soit par rapport 1) aux propriétés hydrauliques et 2) aux conditions d'écoulement.

Concernant premièrement les propriétés hydrauliques, il faut noter que les puits investigués pendant ces travaux de thèse sont majoritairement des puits de captage municipaux. Ces puits ont été sélectionnés par les consultants hydrogéologues partenaires de ce projet de recherche (TechnoRem Inc. et Envir'Eau-Puits Inc.), dans le cadre de mandats de recherche en eau qu'ils ont effectués pour les municipalités. En ce sens, les puits investigués lors de cette thèse sont forcément des puits très productifs par rapport à l'ensemble des conditions naturelles appréhendées pour les aquifères rocheux fracturés des Basses-Terres. Il faut par ailleurs noter que la répartition des propriétés hydrauliques « naturelles » dans les basses terres reste probablement relativement méconnue, du fait même que la plupart des données disponibles représentent également des captages, qui même s'ils sont des puits résidentiels, et représentent a priori des emplacements productifs. Il faut noter que lorsque les puits sont forés pour des fins d'investigations en recherche (c.-à-d.

investigation stratigraphique pour les zones non couvertes, investigations matérielles telles que les diagraphies réalisées par Crow en 2013, et les puits d'investigation forés pendant les projets PACES), et non pour des fins de recherche en eau, la productivité des aquifères rocheux s'avère généralement moindre.

En deuxième lieu, les conditions d'écoulement pour beaucoup de puits investigués sont largement influencées par des pompages voisins, et ne représentent pas des conditions naturelles d'écoulement pour l'eau souterraine. Ceci provient du fait même que les puits investigués sont situés dans des zones d'aquifère rocheux fracturé localement productif, et souvent exploité par d'autres puits de pompage voisins. En ce sens, les drainages forcés par les pompages municipaux permanents mobilisent des masses d'eau plus « jeunes » par rapport aux conditions naturelles. Dans cette thèse, seul le puits de Châteauguay (un puits d'observation du MELCC) représente un exemple de conditions naturelles pour l'écoulement puisque ce dernier puits n'apparaît pas influencé par des pompages voisins. Pour ce puits, représentant des conditions naturelles d'écoulement, on constate cependant peu ou pas de stratification hydrogéochimique de l'eau souterraine selon la profondeur, tant du point de vue de la composition ionique de l'eau que des temps de résidence.

Échantillonneurs passifs gazeux :

La majorité des résultats des gaz rares présentés ont été obtenus grâce à des échantillonneurs passifs gazeux. Dans le cadre de cette thèse, l'usage de ce type d'échantillonneurs avait au départ été principalement envisagé pour l'échantillonnage des gaz anthropiques pour datation (SF_6 et CFCs). Une discussion concernant l'échantillonnage de ces gaz anthropiques est donnée dans la section relative aux perspectives de recherche (section 4.5). L'échantillonnage des gaz rares a été effectué car il était nécessaire pour les calculs d'excès d'air pour fin de datation SF_6 , CFCs. Ces données ont été utilisées pour le calcul des âges $^3H / ^3He$, des mesures concernant le tritium ayant été intensifiées au cours de la thèse. La majorité des analyses

actuellement disponibles pour les gaz rares concernent seulement l'hélium et le néon collectés à l'aide d'échantillonneurs gazeux. L'ensemble des résultats pour ces échantillons gazeux montre des rations isotopiques $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ qui sont enrichis au-delà du ratio à l'équilibre avec l'atmosphère ($^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne} > 9.78$). De tels enrichissements suggèrent un fractionnement isotopique induit par l'utilisation des échantillonneurs gazeux. La nature et la caractérisation de ce fractionnement ne peuvent pas être comprises en l'état de la disponibilité des analyses. Pour pouvoir cerner la nature du fractionnement observé pour le néon, il faudrait disposer 1) d'analyse de gaz rares incluant les gaz les plus lourds pour des échantillonneurs gazeux, et 2) disposer d'analyse de gaz rares complète en doublon des échantillonneurs gazeux, mais prélevés de manière usuelle, soit par l'échantillonnage de l'eau. Une telle série d'échantillons gazeux a été prélevée pour l'analyse complète des gaz rares pour le puits de Châteauguay, mais ces résultats ne sont pas encore disponibles. Ces analyses de gaz rare complètes pourront également être comparées aux trois analyses disponibles qui ont été effectuées à partir de l'échantillonnage de l'eau (section 3.3 du manuscrit présenté au chapitre III). Mais en l'état actuel, des limitations sont émises concernant les résultats en gaz rares et pour les gaz anthropiques trace (annexe C) obtenus pendant la thèse. Concernant les gaz rares, ces réserves concernent autant la quantification de l'excès d'air que les âges calculés par la méthode $^3\text{H}/^3\text{He}$;

Limitations sur les âges ^{14}C :

Mis à part pour le puits de Napierville P6 (âges ^{14}C de l'ordre de 16 000 ans, mais avec des réserves sur la signification de cet âge, section 4.5 du manuscrit présenté au chapitre III), l'interprétation concernant la datation radiocarbone donne des âges relativement jeunes pour les masses d'eau investiguées, soit de quelques centaines d'années au plus. Ces âges ne sont pas particulièrement significatifs vis-à-vis de la gamme d'âge ^{14}C qui concerne plutôt la gamme de plusieurs milliers d'années. L'interprétation des âges ^{14}C selon différents modèles montre cependant une grande

sensibilité vis-à-vis de la composition isotopique du ^{13}C du CO₂ du sol. Or, les compositions du ^{13}C du CO₂ du sol n'ont pas été mesurées à chaque site, et les datations ^{14}C présentées dans la thèse restent basées sur la composition utilisée en référence au Québec ($\delta^{13}\text{C}_g = -23\text{\textperthousand}$ VPDB, végétation métabolisme C3). Une incertitude non négligeable subsiste ainsi sur les âges ^{14}C , qui gagneraient à être contraint avec la mesure du ^{13}C du CO₂ du sol collecté en zone vadose correspondant à chaque site. Des perspectives en ce sens sont mentionnées en section 4.5.

4.4 Recommandations concernant les investigations dans le cadre d'études régionales

L'investigation détaillée réalisée pour chaque puits dans cette thèse représente un échantillon très faible (21 puits en diagraphe, Chapitre 2; 10 puits pour l'hydrogéochimie, Chapitre 3), ce qui ne permet à peine d'initier un portrait pour la stratification verticale des aquifères fracturés des Basses-Terres. Des caractérisations détaillées seraient ainsi requises dans le futur pour un plus grand nombre de puits afin de pouvoir offrir un portrait plus général des conditions physiques et hydrogéochimiques des aquifères rocheux fracturés, et de pouvoir utiliser des statistiques de leurs propriétés.

Critère de purge pour l'échantillonnage d'eau souterraine dans les puits :

Dans le cadre des projets PACES, l'échantillonnage « conventionnel » des puits est réalisé. Celui-ci concerne la collecte du mélange d'eau pompé au puits, dont les proportions en mélange sont au prorata du nombre et de la productivité des différentes zones productives dans le puits. Dans le cas de l'échantillonnage « usuel », la purge recommandée est habituellement de trois fois le volume de la colonne d'eau. Dans le cas des aquifères rocheux fracturés interceptés pour de longs intervalles, l'homogénéisation complète de la colonne d'eau peut fort bien nécessiter bien plus que trois fois le volume du puits. Dans ce cas, le critère du volume purgé en fonction

du volume total de la colonne d'eau apparaît inadapté. En considérant une pompe placée en haut du puits, l'homogénéisation de l'ensemble de la colonne d'eau se produit quand l'eau des fractures les plus profondes atteint finalement le haut du puits pompé, et qu'elle soit incluse dans le mélange collecté à l'exutoire du pompage (exemple au tableau 3.1). En contexte d'aquifère rocheux fracturé, le temps de purge reste au cas par cas vu la distribution et la productivité des fractures qui sont a priori différentes d'un puits à l'autre. Dans le cas de l'échantillonnage pour l'analyse des ions majeurs, le critère de purge basé la stabilisation de la conductivité électrique est plus pertinent qu'un critère basé sur un volume prédéterminé de purge. Par contre, sans repérage diagraphique préalable pour identifier la position des fractures, il est impossible de déterminer « à priori » quelle proportion des zones productives va être échantillonnée selon un temps de purge (et un débit de pompage) donné. Le temps (et volume) de purge basé sur le suivi de la conductivité électrique a été réalisé pendant les projets PACES et apparaît ainsi le plus pertinent. Dans le cadre de cette problématique de purge, la diagraphie thermique, robuste est relativement rapide, reste l'une des méthodes accessible pour déterminer la position des différentes zones productives dans le puits. Ces relevés permettraient également d'optimiser la position de la pompe dans le puits pour assurer une purge plus rapide de la colonne d'eau. À noter également que la méthode préconisée ci-dessus concernant le suivi de la conductivité électrique s'applique à l'échantillonnage des ions. Pour fin de datation, le suivi de la conductivité électrique du mélange pompé apparaît en revanche beaucoup moins pertinent que pour l'échantillonnage des ions. Ceci car des masses d'eau d'âges différents pourraient très bien avoir des compositions minérales (et donc des conductivités électriques) similaires. Dans ce dernier cas, et pour fin de datation, la diagraphie (thermique, la plus rapide) apparaît également pertinente pour pouvoir anticiper le temps de purge nécessaire pour le puits.

Recommandations concernant le choix des puits à investiguer de manière plus détaillée :

Il apparaît pertinent d'intensifier dès à présent les investigations détaillées aux puits incluant des mesures diagraphiques et des échantillonnages séquentiels puisque ce type de données reste rare. Lors d'une caractérisation régionale, il reste cependant difficile d'estimer quel pourcentage des puits devrait être investigué de manière détaillée. Un critère non scientifique, mais incontournable, est le temps et les coûts associés aux investigations verticales détaillées. L'investigation physique et hydrogéochimique complète d'un puits peut être au moins 10 fois plus longue comparée à l'échantillonnage conventionnel du mélange pompé. En effet, l'échantillonnage conventionnel peut nécessiter deux heures, soit l'échantillonnage de trois à quatre puits par jour. Pour l'investigation complète, deux à trois jours de terrain sont requis pour un seul puits, comprenant : 1) une étape de diagraphie préalable en condition statique puis dynamique (pompage); 2) l'installation d'un micropompage pour contraindre des flux dans la colonne d'eau; 3) la pose et le relevage d'échantilleurs passifs à différentes profondeurs incluant deux visites sur site. Cette section présente des suggestions concernant quels autres critères spécifiques seraient à considérer pour décider de l'investigation détaillée d'un puits plutôt qu'un autre :

1. L'investigation verticale, telle que présentée dans la thèse en incluant la diagraphie, est a priori plus adaptée pour les aquifères rocheux fracturés. Ceci car les puits installés dans le roc fracturé interceptent généralement des épaisseurs bien plus importantes comparées aux longueurs assez restreintes (quelques mètres maximum) des crépines installées en aquifère granulaire. Les aquifères granulaires pourraient cependant également être investigués selon des échantillonnages passifs, advenant que des piézomètres installés à différentes profondeurs soient accessibles ;

2. L'investigation verticale serait donc à prioriser pour les puits les plus profonds dans le roc, en commençant par des mesures diagraphiques. Cette première étape permet d'identifier la distribution des fractures hydrauliques actives, ainsi que d'estimer si des écoulements « passifs » (naturel ou induits par des activités anthropiques voisines) sont présents;
3. En second lieu, l'investigation hydrogéochimique serait à prioriser pour les puits profonds montrant une distribution des fractures actives relativement bien réparties sur toute la profondeur. La présence de fractures bien distribuées les unes par rapport aux autres favorise un placement plus facile des échantillonneurs à mi-distance entre chaque fracture. Cette configuration favorise la caractérisation et l'identification de stratification hydrogéochimique naturelle, le cas échéant;
4. L'échantillonnage de puits non influencés par des pompages voisins est à privilégier pour mettre à jour les stratifications naturelles de l'aquifère, permettant éventuellement la mise à jour de masses d'eau les plus « anciennes » avec la profondeur;
5. Selon les données collectées durant ces travaux de thèse, il n'est pas possible de privilégier a priori le choix d'un traceur pour datation plutôt qu'un autre selon la profondeur dans l'aquifère fracturé. Les résultats ayant en effet montré la présence d'eau « récentes » et « anciennes » en mélange, mais sans qu'il y ait prévalence graduelle de l'une ou l'autre en fonction de la profondeur. Selon les âges hydrauliques théoriques, la logique en contexte d'aquifère libre suggérerait d'intensifier les traceurs pour les masses d'eau « récentes » plus faible profondeur (i.e ^3H , ^{85}Kr , SF_6 et CFCs) et ceux pour les portions plus « anciennes » en profondeur (c.-à-d. ^{39}Ar , ^{14}C). Pour les contextes en aquifère captif, les traceurs pour les eaux « plus anciennes » seraient théoriquement plus adaptés, mais ceci n'est également pas corroboré selon les données collectées pendant ces présents travaux;
6. En termes de ressource en eau, les investigations verticales détaillées seraient à privilégier pour les Groupes stratigraphiques les plus anciens de la séquence

sédimentaire des Basses-Terres (c.-à-d. Groupes de Potsdam, Beekmantown, Chazy, Trenton), qui apparaissent les plus productifs et sont généralement associés à une bonne qualité naturelle de l'eau. Les Groupes les plus récents des Basses-Terres (p. ex. Groupes de Queenston, Lorraine et shales d'Utica) bénéficierait également d'investigations verticales plus détaillées pour la recherche en général, mais représentent un potentiel moins intéressant pour la ressource en termes de productivité ou de qualité de l'eau. Dans le cadre de la thèse, les roches cristallines du Bouclier canadien ont été très peu investiguées (un seul puits a été diagraphié à Saint-Basile, Annexe A). Bien que considérés comme moins productifs, ces aquifères cristallins fracturés mériteraient cependant d'être caractérisés verticalement de manière extensive car ces derniers sont largement exploités par l'intermédiaire de puits individuels dans les régions rurales ou éloignées.

Recommandations et alternatives concernant l'échantillonnage séquentiel :

Les échantilleurs passifs pour l'eau ont été utilisés dans le cadre de la thèse car ils étaient simultanément couplés à des échantilleurs passifs pour les gaz. Une alternative pour l'échantillonnage séquentiel de l'eau serait d'utiliser des échantilleurs à clapet. De tels échantilleurs peuvent être placés ouvert à la profondeur souhaitée, puis fermés selon un mécanisme déclencheur dédié (câble ou poids tombant). Comme pour l'échantillonnage passif, l'échantilleur doit être idéalement placé en condition de flux circulant. Il serait préférable d'utiliser un échantilleur à clapet ouvert à chaque extrémité afin de s'assurer que l'eau échantillonnée représente bien celle de la colonne d'eau à profondeur donnée. L'usage d'échantilleur à clapet, utilisé tour à tour à chaque profondeur souhaitée permettrait ainsi la collecte de l'eau pendant le pompage du puits, sans temps d'équilibration. Comme pour l'échantillonnage passif, un temps d'équilibration serait

en revanche requis pour les zones d'eau stagnante, car la descente d'un ou plusieurs échantillonneur(s) pourrait perturber la composition de la colonne d'eau.

4.5 Perspectives de recherche

Usage des relevés thermiques pour les zones fracturées diffuses ou pour les aquifères granulaires :

Dans le cadre de la thèse, les relevés thermiques ont concerné les aquifères rocheux fracturés. Ces mesures ont mis en évidence que la majorité des fractures productives étaient discrètes. L'interprétation et la modélisation thermique apparaissent plus faciles pour les venues d'eau provenant de fractures discrètes. Ceci est dû au fait que plus les fractures discrètes sont espacées les unes des autres, plus il y a de chances que leur écart en température soit important, rendant ainsi le signal thermique mesuré dans la colonne d'eau distinct et explicite. Ceci n'empêche pas que les intervalles productifs fracturés ne soient également bien mis en évidence par les relevés thermiques. Mais par rapport aux fractures discrètes, la modélisation thermique de la distribution de la température des arrivées d'eau à l'intérieur d'intervalles productifs devient plus ardue et incertaine. Un tel exemple est par exemple donné pour le puits F3 (Annexe A2), où les températures des arrivées d'eau à l'intérieur de la zone productive restent plus difficiles à déterminer. Cependant, des venues d'eau situées dans le même intervalle ne devraient pas avoir des températures très différentes les unes par rapport aux autres. Et dans ce cas, rien n'empêche pour fin de modélisation thermique, de considérer une température unique correspondant à l'intervalle fracturé considéré. Lors de ces travaux de thèse, aucune mesure thermique n'a été réalisée en contexte d'aquifère granulaire. Ceci n'est pas à cause d'un manque d'intérêt pour les aquifères granulaires, mais parce que les investigations de cette thèse visaient la stratification verticale, et il était a priori plus judicieux de cibler de longs intervalles (puits en aquifère rocheux fracturé), plutôt que des intervalles courts (crépines en aquifère granulaire). Considérant les travaux réalisés dans le cadre cette thèse et les

remarques précédentes dans ce paragraphe, il est suggéré que les relevés thermiques puissent également représenter un intérêt en aquifère granulaire. Dans ce type d'aquifère à matrice poreuse primaire, les zones productives sont a priori beaucoup plus diffuses qu'en aquifère rocheux fracturé. Les profils thermiques devraient ainsi être beaucoup plus lisses comparé aux fractures discrètes. Ceci rendrait probablement la lecture moins nette, mais n'empêche pas de distinguer des zones productives, ni l'évolution des températures au cours du pompage. Pour fin de modélisation thermique, différents intervalles d'aquifère granulaire pourraient être définis, et traités de la même façon que pour les fractures discrètes.

Traçage thermique pour appréhender l'extension des réseaux de fracture :

Les relevés thermiques haute résolution et leur interprétation revêtent un intérêt particulier quant à la détermination de l'origine de l'eau souterraine dans l'aquifère. La température, paramètre intrinsèque dans l'aquifère, représente ainsi un traceur « gratuit ». L'aspect traçage quantitatif en température est abordé à l'échelle des forages dans cette thèse (Sections 2.4 et 2.5), soit de l'évolution de la température des arrivées d'eau pendant les pompages, suggérant des drainages plus ou moins profonds d'eau souterraine au sein de l'aquifère. Or, le traçage thermique n'est qu'initié ici car il n'inclut qu'une portion limitée de l'aquifère autour du forage. À l'heure actuelle, il n'existe pas de modèle analytique visant à reproduire les réponses thermiques des fractures depuis les zones de recharge. Des travaux publiés et explicitement dédiés à ce dernier aspect existent, mais utilisent une modélisation numérique distribuée (Lewis & Beck, 1977). De futurs travaux, utilisant le même type de bilan thermique analytique utilisé dans cette thèse, mais cette fois-ci appliqués à l'extension de réseaux de fractures autour du puits, pourraient permettre d'apporter des informations quantitatives sur le comportement thermique des écoulements, en associant une longueur de drainage du réseau de fractures depuis la zone de recharge, ainsi que des surfaces d'échange spécifique selon l'aquifère et la nature de la fracturation.

Calibration des modèles numériques d'écoulement à l'aide de traceurs environnementaux pour la délimitation des aires de protection des captages (matrice poreuse):

Comme mentionné à l'introduction, une motivation initiale de l'investigation verticale des aquifères réalisée dans le cadre de la thèse était liée à des enjeux concernant la bonification de la délimitation des aires de protection des captages à l'aide de traceurs environnementaux. Selon le Règlement actuel sur le Prélèvement des Eaux et leur Protection (Québec, 2014), les aires de protection intermédiaire sont en effet définies selon des temps de séjour de l'eau souterraine (c.-à-d. 200 et 550 jours pour les aires de protection intermédiaire bactériologique et virologique), ce qui n'est pas mesuré en pratique à l'aide de traceurs.

Une première possibilité de calage d'un modèle numérique d'écoulement concerne un multitraçage détaillé du mélange pompé au puits (Figure 4.2 (a)). Dans ce cas, l'utilisation de traceurs pertinents selon des gammes d'âges distinctes (c.-à-d. 40 à 50 ans pour $^3\text{H}/\text{SF}_6/\text{CFCs}$, quelques centaines d'année pour ^{39}Ar et plusieurs milliers d'années pour le ^{14}C), permet théoriquement d'obtenir la distribution des temps de résidence de l'eau souterraine de manière détaillée. Cette distribution mesurée peut servir à calibrer le modèle numérique d'écoulement dans l'aire d'alimentation du captage. La délimitation des aires de protection intermédiaire est ensuite obtenue, en interpolant du modèle calibré, les contributions de la recharge correspondant au temps de résidence des aires de protection intermédiaires définie par la réglementation. Dans ce cas de figure, on considère que l'aquifère est à matrice poreuse primaire, on utilise des traceurs relativement coûteux, mais nécessaires (c.-à-d. ^{39}Ar pour les aires éloignées), et la dépendance des temps de résidence selon la profondeur n'intervient pas dans le calcul de l'aire de protection.

Le deuxième cas (Figure 4.2 (b)), est celui qui est anticipé s'il y a existence d'une stratification verticale des âges. Ceci consiste à mesurer séquentiellement en fonction de la profondeur des concentrations en traceurs récents (i.e. SF₆, CFCs, ³H). Dans ce cas, le calage du modèle numérique inclut une composante verticale, et les aires de protection sont interpolés exclusivement, et de manière plus détaillée, à partir de traceurs récents. Le bénéfice anticipé dans ce cas est d'utiliser des traceurs moins coûteux, de mieux contraindre la composante verticale des écoulements, et d'utiliser des traceurs pour lesquels la gamme d'âge utilisable est plus proche (bien que restant relativement différente) de celle des aires de protection intermédiaire, telles que définies par la réglementation.

Dans le cadre de la thèse, en aquifère rocheux fracturé, un multitraçage séquentiel selon la profondeur a été effectué avec des traceurs pour les eaux « récentes » (c.-à-d. ³H/³He, SF₆, CFC-12) et « anciennes » (c.-à-d. ¹⁴C) (Figure 4.2 (c)). Les observations rapportent plusieurs aspects : 1) il n'y a pas de stratification verticale graduelle selon la profondeur, 2) les temps de résidence peuvent être hétérogènes selon la profondeur, soit qu'une zone productive profonde apparaisse plus « récente », qu'une zone productive située moins profondément, 3) les venues d'eau associées à chaque fracture peuvent être mélangées, soit contenir des proportions variables d'eaux « récentes » et « anciennes ». Selon ces constatations, l'investigation séquentielle selon la profondeur avec les traceurs récents (Figure 4.2 (b)) n'apparaît pas pertinente par rapport au premier cas (Figure 4.2 (a)). La datation du mélange pompé présente l'avantage d'être plus simple en termes de collecte de données. Ce type de procédure, s'il concerne un seul multitraçage avec des traceurs récents (³H/³He, SF₆, CFCs) et un traceur ancien (¹⁴C), est plus rapide et engendre un coût moindre comparé à un multitraçage séquentiel selon la profondeur.

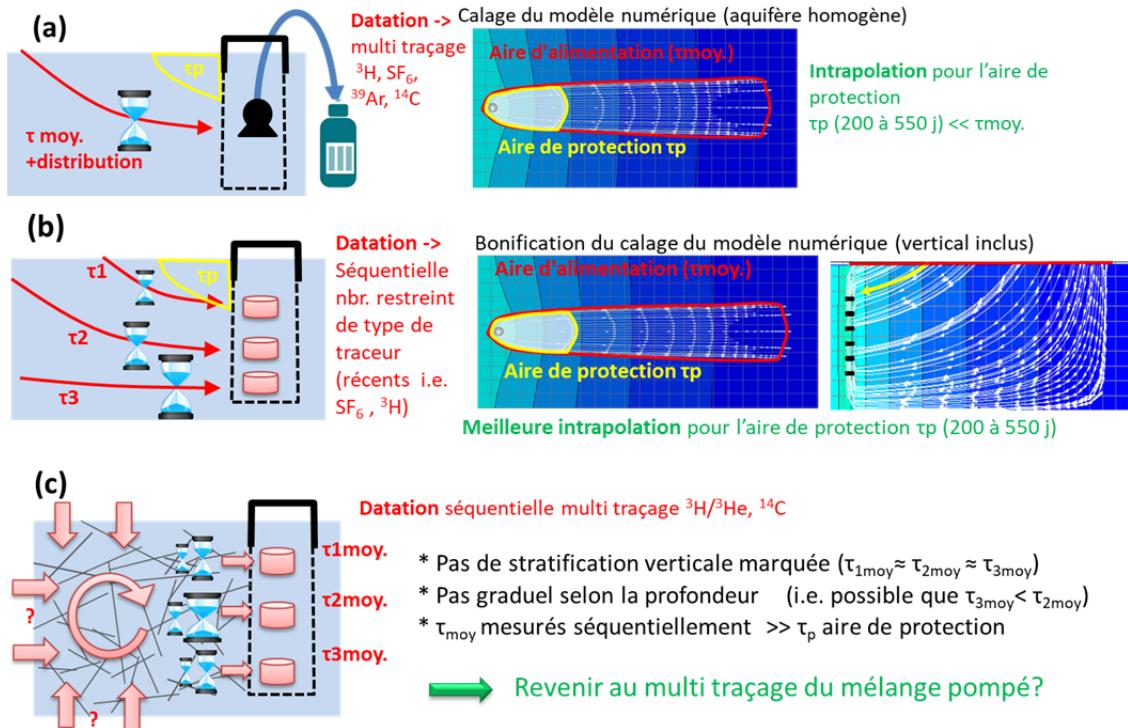


Figure 4.2 : Portrait conceptuel concernant le calage de modèles numériques d'écoulement pour la délimitation des aires de protection avec des traceurs environnementaux : (a) multitraçage détaillé du mélange pompé, (b) traçage séquentiel uniquement avec des traceurs récents (cas anticipé en cas de stratification verticale), (c) Contexte d'aquifère rocheux fracturé (observations découlant de la thèse)

Délimitation des aires de protection en contexte d'aquifère rocheux fracturé (implicitement hétérogène) :

L'investigation verticale physique (diagraphies), telle que réalisée dans la thèse, reste pertinente pour la modélisation numérique en considérant que l'aquifère est une matrice poreuse relativement homogène (section ci-dessus). Les diagraphies sont au moins utiles pour fixer l'épaisseur de l'aquifère sollicité selon la profondeur des zones productives identifiées, voire de répartir les conductivités hydrauliques selon la profondeur.

Les informations diagraphiques collectées pendant la thèse montrent une distribution verticale hétérogène des fractures hydrauliquement actives, et montrent que la

majorité des zones productives sont constituées par des fractures discrètes. Puisque la densité des réseaux des fractures identifiées aux puits apparaît faible, il n'est a priori pas pertinent de considérer l'aquifère rocheux fracturé comme se comportant comme un aquifère ayant une porosité primaire relativement homogène. Ces constatations suggèrent que les modèles d'écoulement considérant une porosité primaire relativement homogène (matrice poreuse) ne sont a priori pas adaptés pour représenter la fracturation observée par diagraphe. L'utilisation de modèles numériques à fractures discrètes (modèles « Discrete Fracture Network », i.e. Hyman et al. (2015)) seraient ainsi plus pertinente. Des logiciels puissants sont disponibles à l'heure actuelle, mais le défi d'une telle modélisation demeure entier car l'architecture des réseaux fractures doit être discrétilisée jusqu'aux zones de recharge. Comme mentionné plus haut, des pistes de recherche concernent l'utilisation de la thermique afin d'appréhender l'extension et la nature des réseaux de fractures autour du forage. Mais en l'état actuel, l'architecture étendue des réseaux de fractures demeure inconnue pour les puits investigués. La nature discrète appréhendée pour les réseaux de fractures demeure problématique pour la délimitation de toutes les aires de protection (intermédiaire et éloignée). Il ne peut en effet pas être exclu que la géométrie des aires de protection dans un tel contexte d'aquifère fracturé soit très différente des paraboles que l'on obtient habituellement en considérant des aquifères à matrice poreuse primaire et relativement homogène.

Traceurs environnementaux à explorer dans le cadre de la délimitation des aires de protection et de la vulnérabilité de l'eau souterraine :

Concernant la datation, les eaux « modernes » sont contraintes ici avec des traceurs ayant typiquement la même gamme d'âge (c.-à-d. 40 à 50 ans pour ${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$, incluant quelques analyses SF₆ et CFC-12 pour le puits de Châteauguay). Mais compte tenu des temps de résidence relativement courts pour les aires de protection intermédiaire (200 et 550 jours), il y aurait un intérêt à mieux contraindre les portions de masses

d'eau encore plus « récentes » (soit de l'ordre de l'année) avec d'autres traceurs ou selon d'autres protocoles. Ceci est d'autant plus justifié que la majorité des puits influencés par des pompages voisins indiquent une sollicitation de masses d'eau plus jeunes que par rapport à l'état naturel (puits de Mirabel, Ormstown, Saint-Roch et Napierville). Les techniques pourraient par exemple concerner des essais selon une fréquence d'échantillonnage très élevée (c.-à-d. au minimum hebdomadaire) pour ^{18}O et ^2H ou encore l'usage de traceurs radioactifs avec décroissance très rapide (c.-à-d. demi vie de 35 jours pour ^{37}Ar). De telles caractérisations requerraient cependant une technicité plus élevée liés à la fréquence (^2H , ^{18}O) ou à la nature des analyses (^{37}Ar). Concernant les aires éloignées, les contributions pour les eaux « anciennes » sont également relativement mal contraintes ici vu les gammes d'âges très différentes impliquées entre les traceurs récents utilisés (c.-à-d. $^3\text{H}/^3\text{He}$, SF_6 et CFC-12 ci-dessus) et le ^{14}C (c.-à-d. âges significatifs > 1000 ans). L'usage d'un traceur pour une gamme d'âge intermédiaire (c.-à-d. ^{39}Ar , gamme de datation de plusieurs centaines d'années) permettrait de mieux contraindre les proportions d'eau « anciennes /intermédiaire» en présence.

Au regard des enjeux importants liés à la vulnérabilité de la ressource en eau vis à vis des sources anthropiques contemporaines (c.-à-d. depuis l'intensification des activités industrielles et agricoles), il y aurait un intérêt à poursuivre l'emphase mise sur la caractérisation des masses d'eau « modernes » (i.e. post 1960), soit en multitraçage avec les traceurs environnementaux « récents » (c.-à-d. $^3\text{H}/^3\text{He}$, SF_6 , CFCs et ^{85}Kr) afin de déterminer les proportions et l'âge moyen des eaux récentes. D'autres traceurs anthropiques persistants (c.-à-d. caféine, édulcorants, composés perfluorés) pourraient amener une amélioration de la compréhension des systèmes d'écoulement et des pollutions « modernes », mais dans certains cas seulement, car ces composés n'ont a priori pas une distribution homogène (spatiale et temporelle) dans l'environnement.

Recherche concernant le développement et l'usage d'échantillonneurs passifs gazeux :

Des limitations sont exprimées (Section 4.3) concernant les résultats obtenus pour les gaz rares et les gaz anthropiques trace collectés par échantillonnage passif gazeux. Cependant, un modèle mathématique complet a été élaboré dans le cadre de la thèse pour simuler, selon une base physique, la rééquilibration de l'échantillonneur gazeux avec l'environnement dans lequel est placé (Annexe C). Comme le modèle à base physique est disponible, une piste de recherche consisterait à modéliser le comportement de l'échantillonneur gazeux à l'aide d'analyses complètes de gaz rares. Des recherches antérieures ont été réalisées sur ce type d'échantillonneurs pour les gaz rares (Gardner & Solomon, 2009), mais ils concernent des tailles d'échantillonneurs réduites (environ 1 mL) et avaient été modélisés à l'aide d'une solution analytique. L'avantage d'utiliser les gaz rares en conditions contrôlées pour phase de test c'est que leurs concentrations atmosphériques sont parfaitement connues et stables, que les propriétés physico-chimiques sont également très bien connues, et que la contrainte du modèle d'équilibration des échantillonneurs peut être validée avec un plus grand nombre de paramètres, soit pour les cinq gaz rares (He, Ne, Ar, Kr, Xe), et plusieurs isotopes de ces derniers (c.-à-d. au moins $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$, $^{36}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$). Même si des réserves quantitatives sont émises sur les résultats obtenus pendant le déroulement de cette thèse par l'échantillonnage passif gazeux, l'intérêt anticipé pour l'usage futur de tels échantillonneurs (c.-à-d. robustesse de l'utilisation sur le terrain, pas de dégazage nécessaire avant analyses en laboratoire) reste entier si validé en laboratoire. Les échantillonneurs initialement dédiés aux gaz anthropiques trace peuvent collecter de 18 à 53 mL de gaz et le modèle élaboré est distribué spatialement et reproduit des conditions transitoires. L'utilisation de tels échantillonneurs pourrait être envisagée pour l'échantillonnage d'autres gaz d'intérêt en géologie/hydrogéologie comme le CO₂, l'azote et le méthane.

Échantillonnage du CO₂ en zone vadose pour fins de datation radiocarbone :

L'échantillonnage du CO₂ en zone vadose apparaît très pertinent en recherche pour fins de datation radiocarbone (analyses ¹⁴C et ¹³C), de surcroît pour les sites où l'épaisseur de la zone non saturée est importante (Gillon et al., 2009; Gillon et al., 2012). Un tel échantillonnage requiert des temps de préparation et technicité significatifs, rendant la méthode plus difficilement et directement applicable en contexte industriel. Concernant la préparation, il faut en effet premièrement s'assurer, via par exemple des moyens de cartographie hydrogéologique, que la zone vadose échantillonnée pour le CO₂ du sol corresponde bien « à priori » à la zone de recharge de la venue d'eau échantillonnée en profondeur dans le puits en contexte d'aquifère fracturé. L'échantillonnage des gaz en zone vadose requiert également la mise en place d'une station d'échantillonnage spécifique. L'échantillon de gaz prélevé doit en effet représenter la composition collectée à une profondeur donnée. Une vigilance particulière concerne potentiellement le scellement inadéquat de la ligne selon la profondeur, la surpurge lors de l'échantillonnage ou un temps de rééquilibration insuffisant suite à l'installation de la ligne dans le sol pour éviter de biaiser la qualité et la représentativité de l'échantillon gazeux collecté.

ANNEXE A

DONNÉES RELATIVES AUX DIAGRAPHIES

ANNEXE A1

NOTE TECHNIQUE SUR LA THERMISTANCE D'UNE RÉSOLUTION DE $\pm 0.01^\circ\text{C}$

Le première thermistance utilisée jusqu'en 2017 (Photo 8, Annexe D) nécessitait une lecture directe (en ohm) et une calibration associée pour reporter la température. La lecture directe de la thermistance a été réalisée grâce à un ohmmètre ayant une résolution de $0,01\text{k}\Omega$ (Photo 9, Annexe D), déterminant la résolution absolue de la mesure évaluée à $0,01^\circ\text{C}$. La calibration de la précision de la thermistance a été réalisée en laboratoire en laissant thermistance et thermomètre haute précision placés à l'intérieur d'un thermos rempli d'eau avec glace fondante (Photo 9, Annexe D), puis de laisser la température augmenter lentement au cours du temps jusqu'à la température de pièce (Figure 1). Le système de mesure permettait de sélectionner différentes résistances incluses en série par rapport à la résistance de la thermistance afin d'évaluer le dérive possible de cette dernière en fonction du temps.

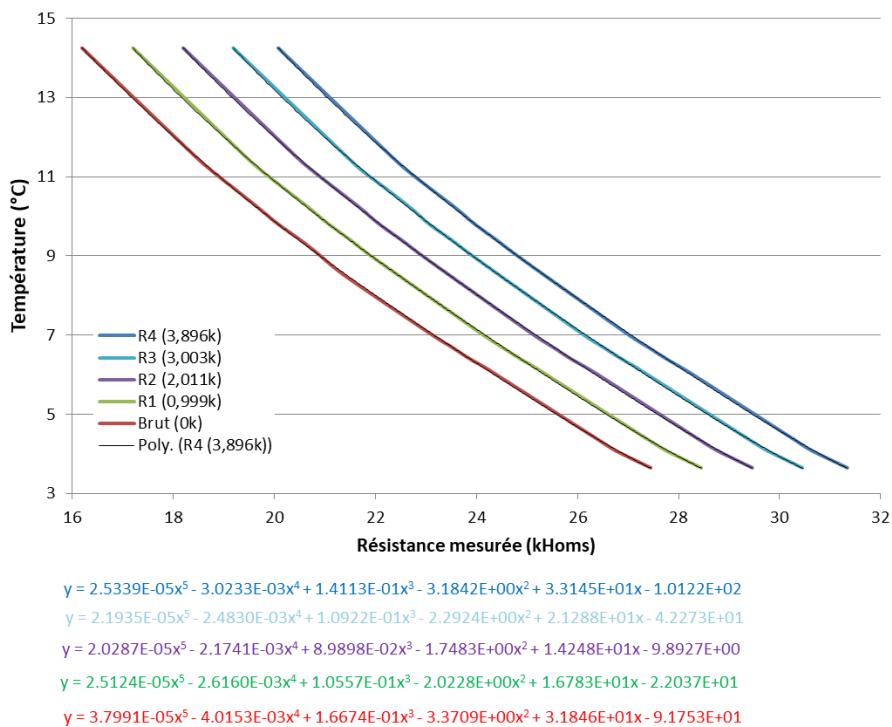


Figure 1: Calibration de la thermistance $0,01^\circ\text{C}$ utilisée jusqu'en 2017

ANNEXE A2

RELEVÉS DIAGRAPHIQUES 2016-2018

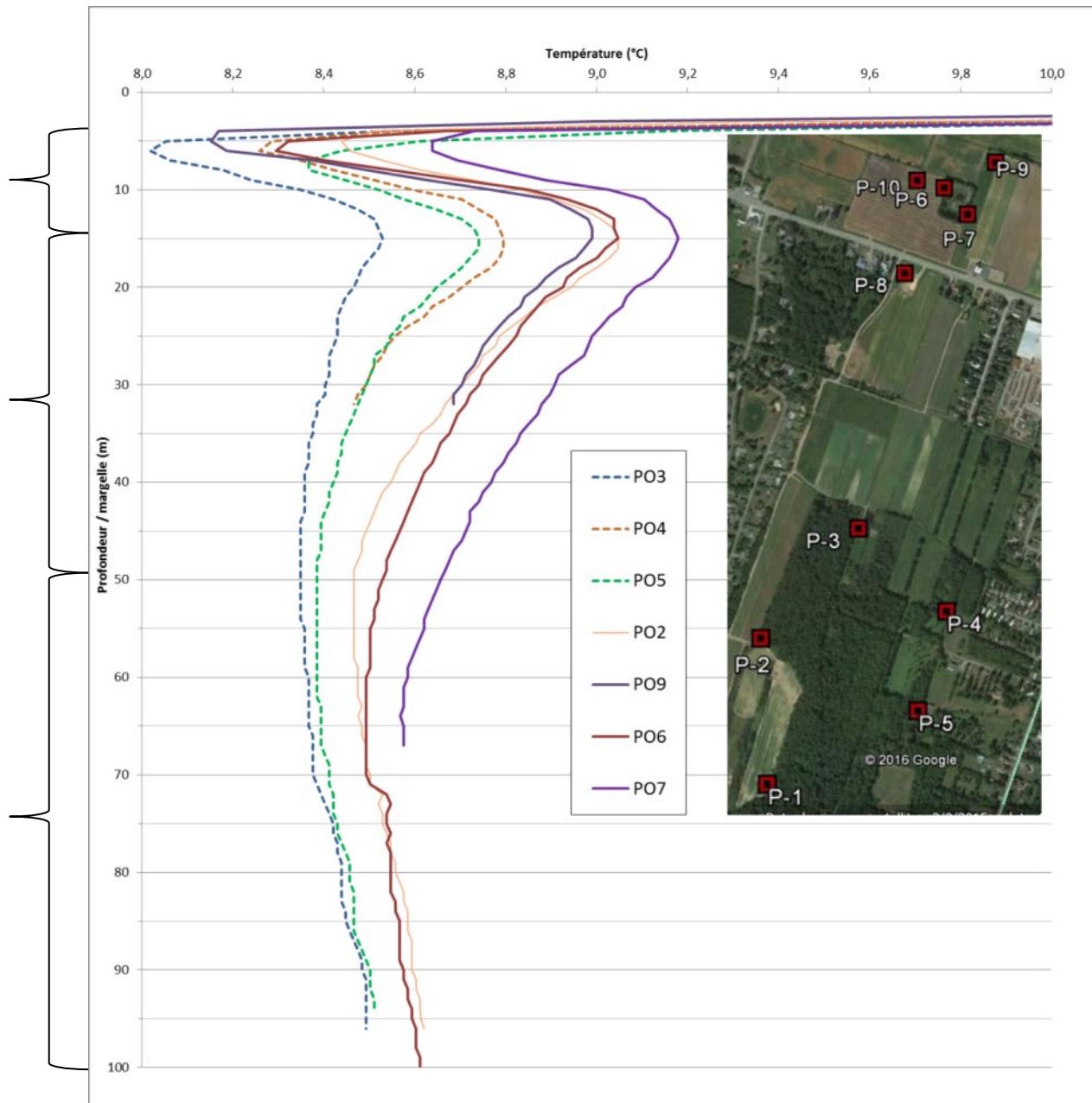
1) Relevés thermiques en statique

Exemple: Saint-Paul d'Abbotford (Schiste rouge)

Signal saisonnier annuel

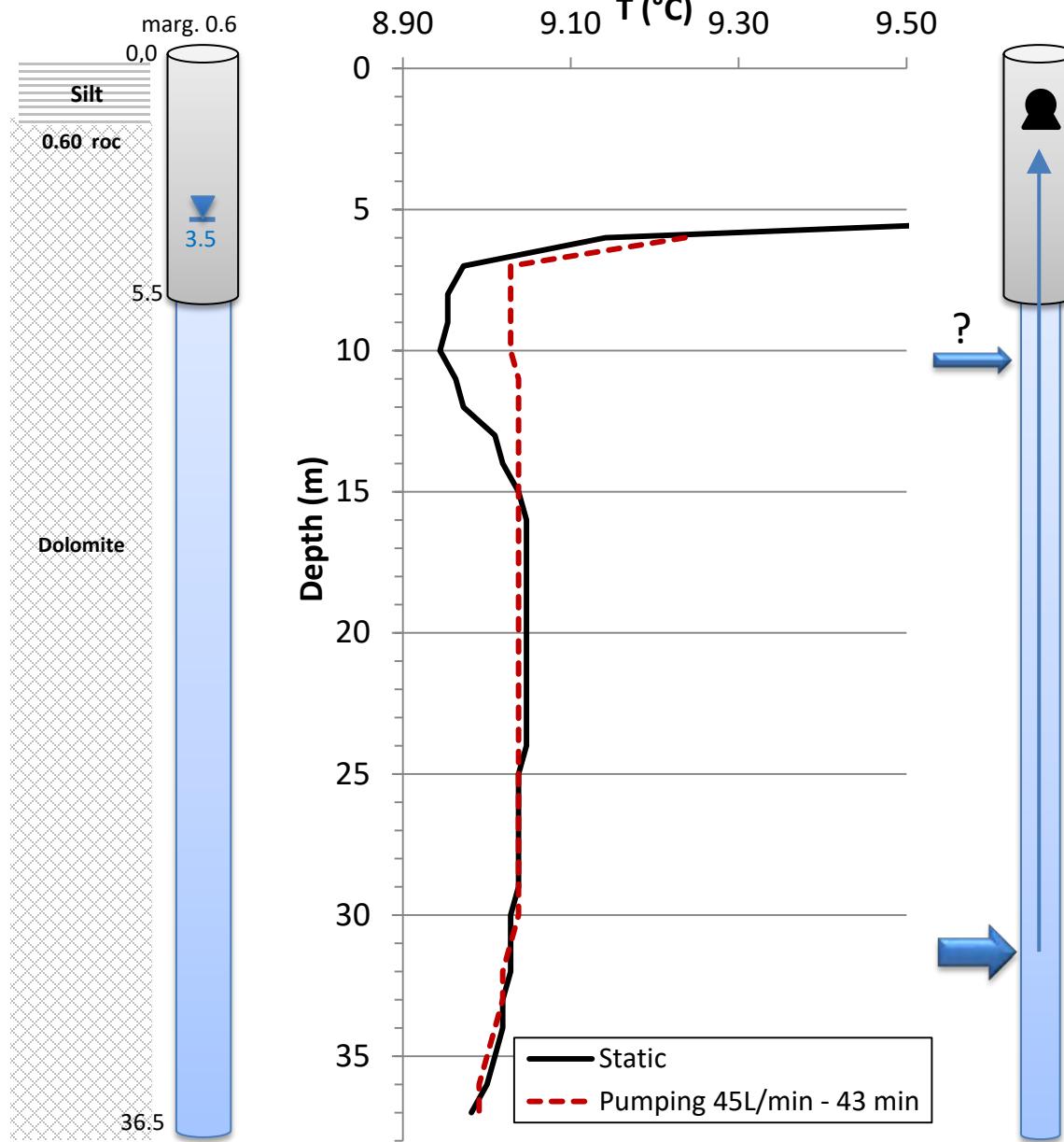
Signal climatique
(réchauffement 150-200 dernières
années)
i.e. Gosselin et Mareschal, 2003

Signal profond
(zone de transition avec le gradient
géothermique)

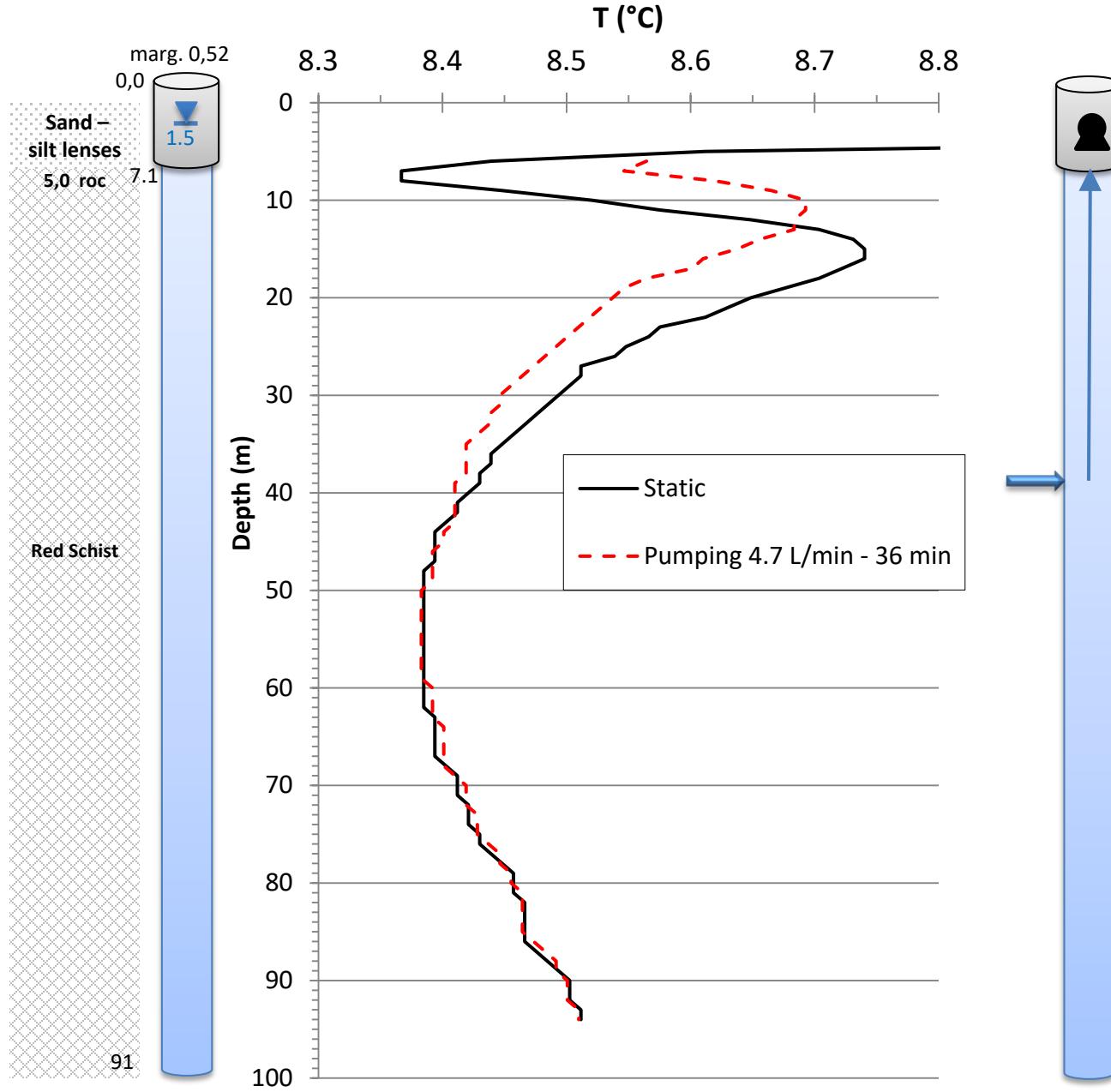


Hemmingford (P-Clermont) Passive flows identified

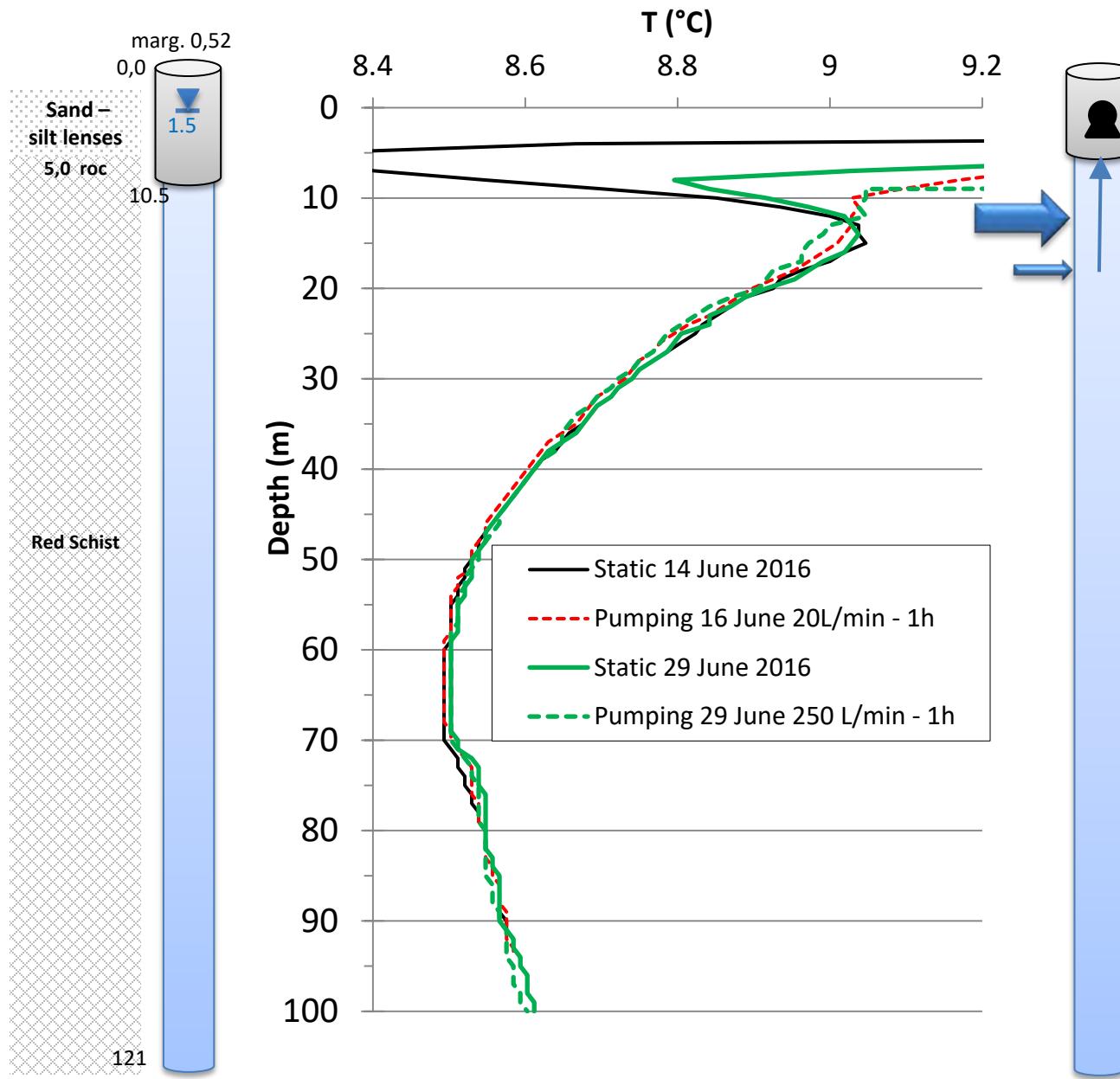
@ discharge
pH: 7,33
CE: 453 $\mu\text{S}/\text{cm}$



Saint-Paul-Abbotsford (PO-5) No passive flows identified

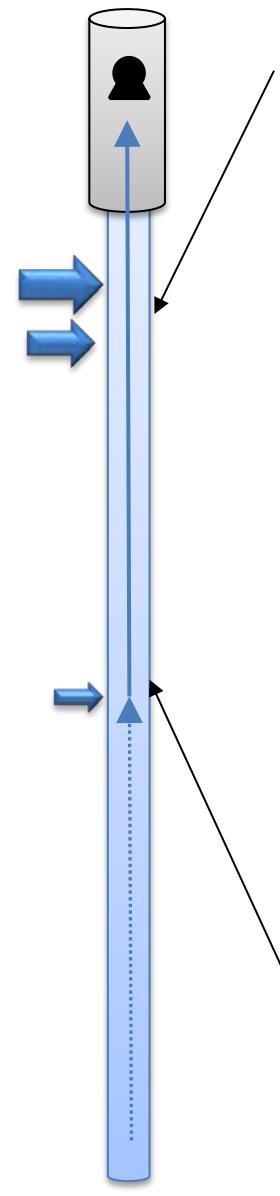
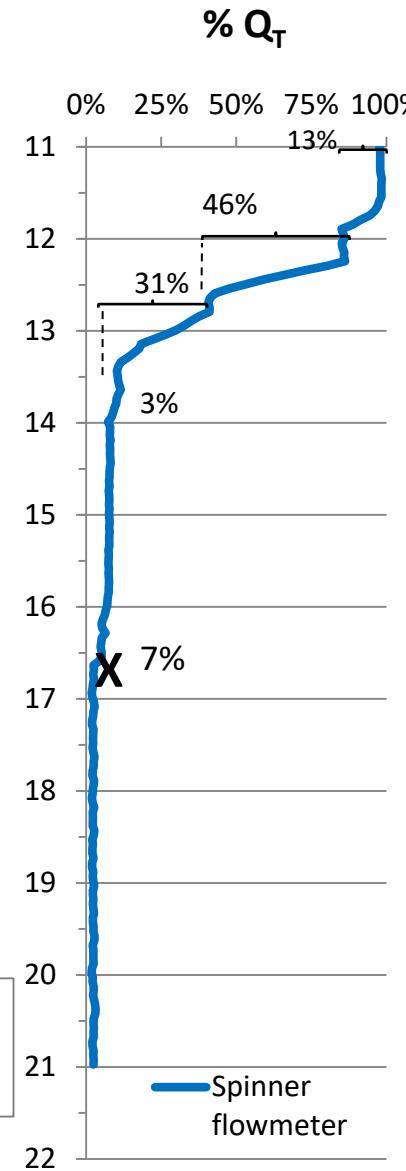
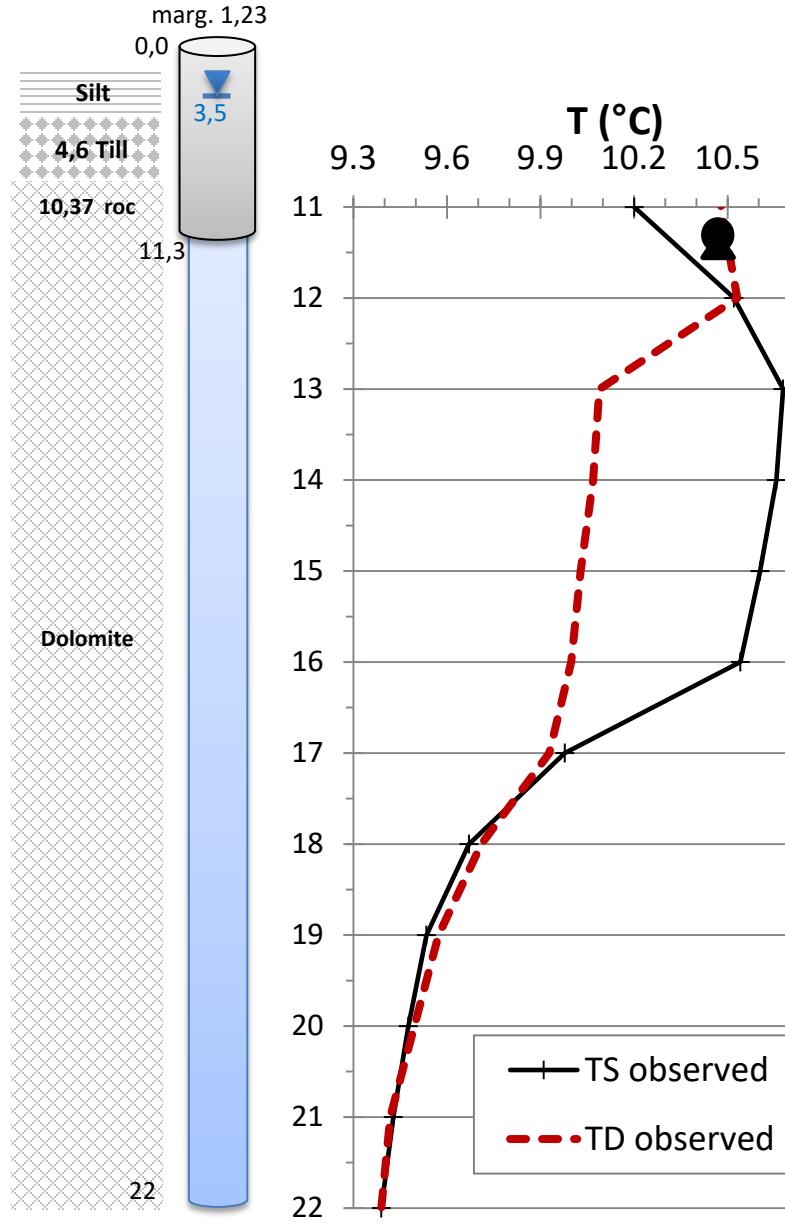


Saint-Paul-Abbotsford (PO-6) No passive flows identified



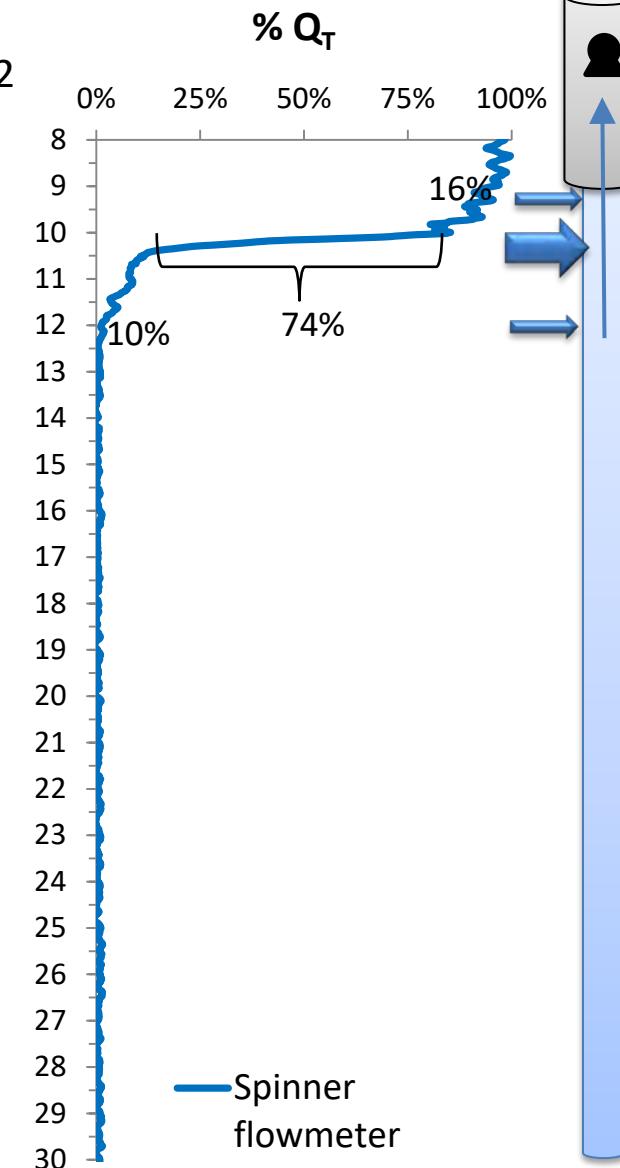
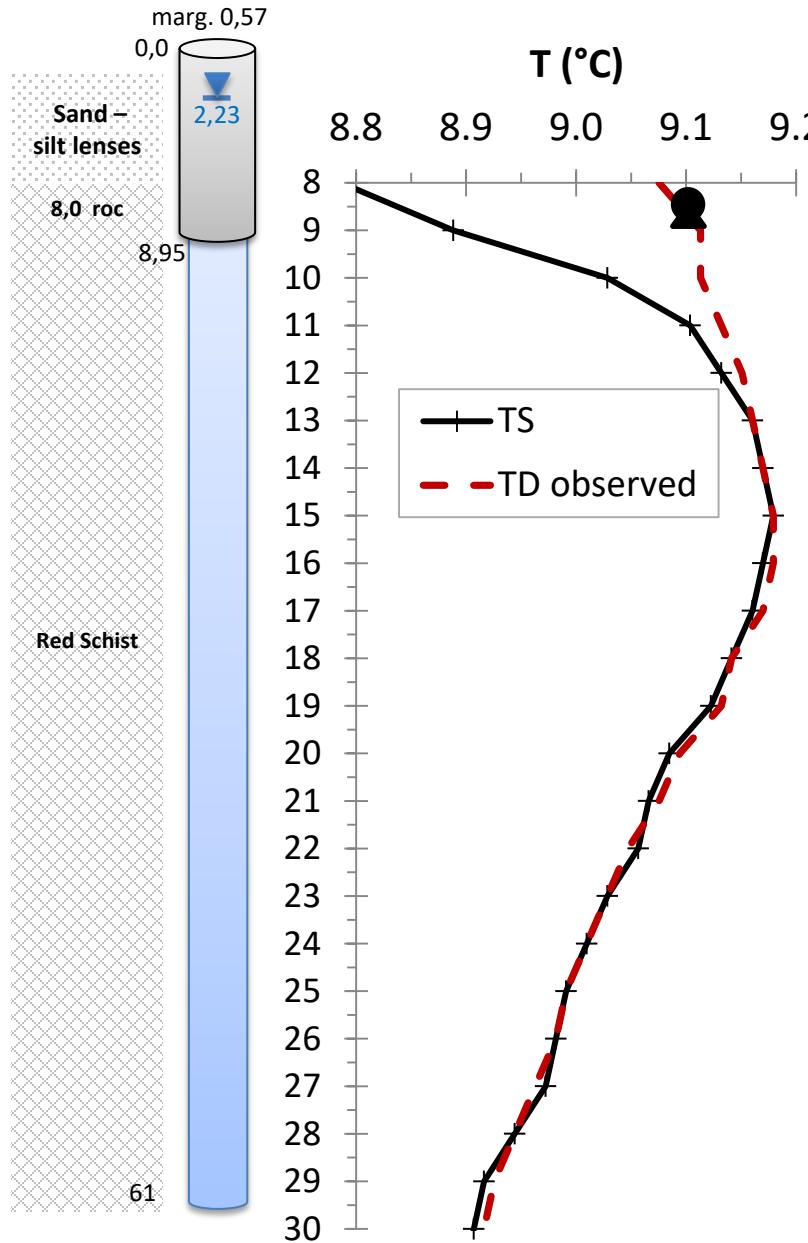
Coteau-du-Lac (PACES #F3)

Passive flows identified

@ discharge
pH: 7,47
CE: 1092 $\mu\text{S}/\text{cm}$ 

Saint-Paul-Abbotsford (PO-7)

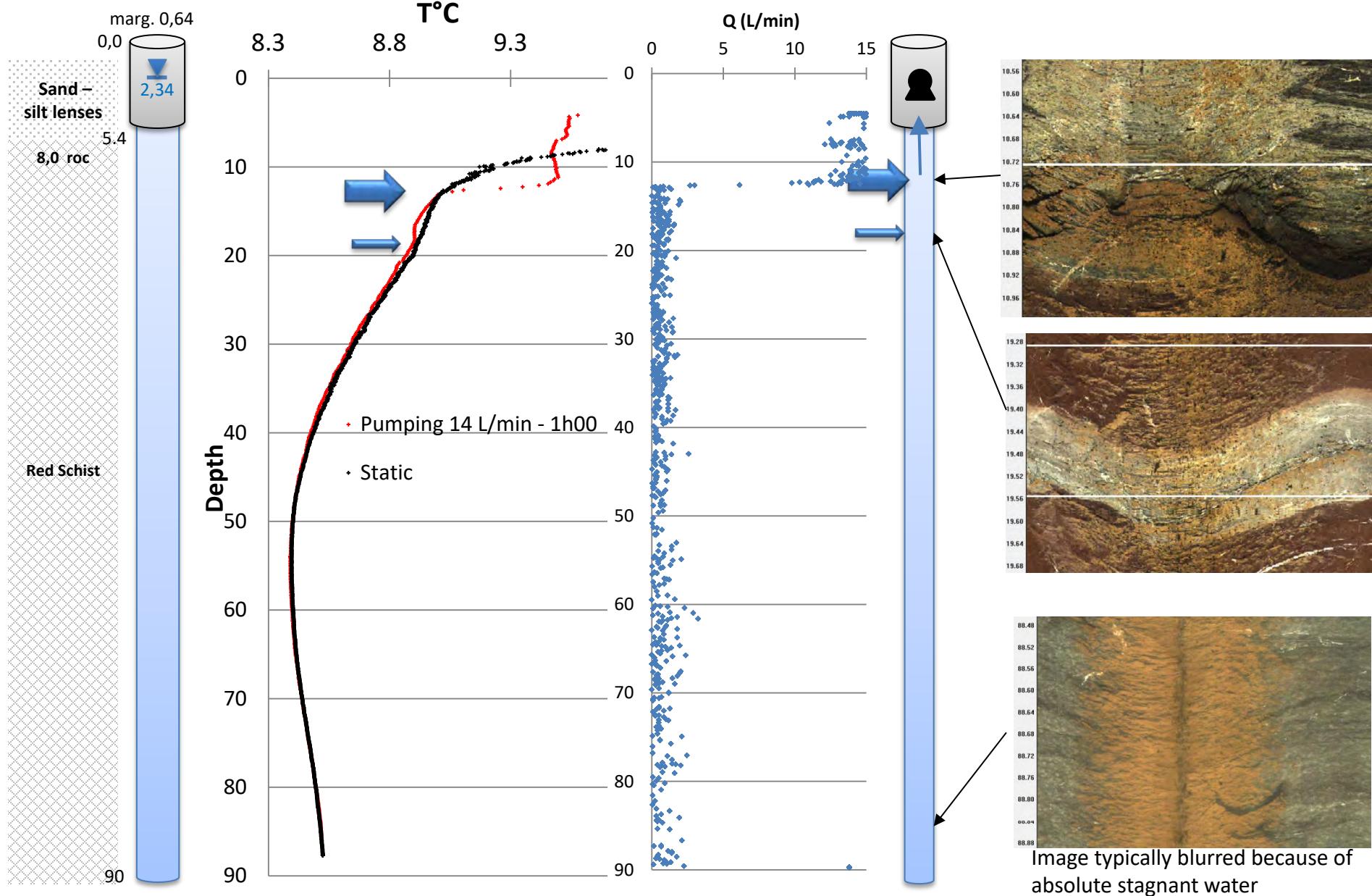
No passive flows identified



Discrete fracture 10,5 m

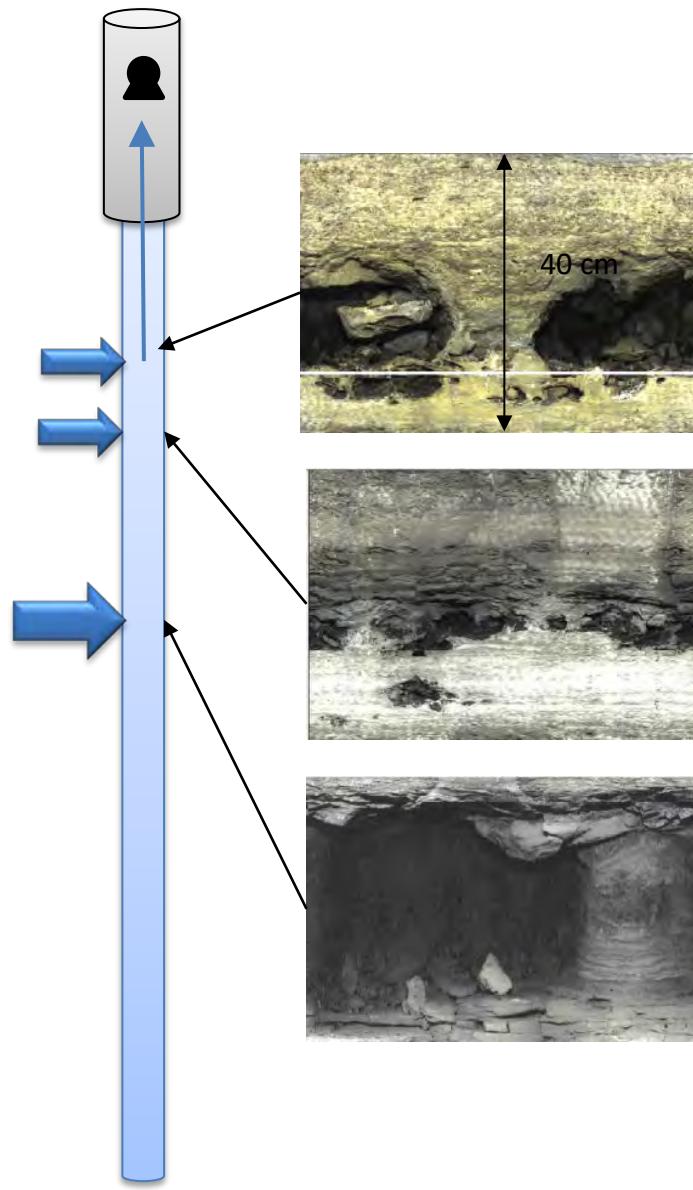
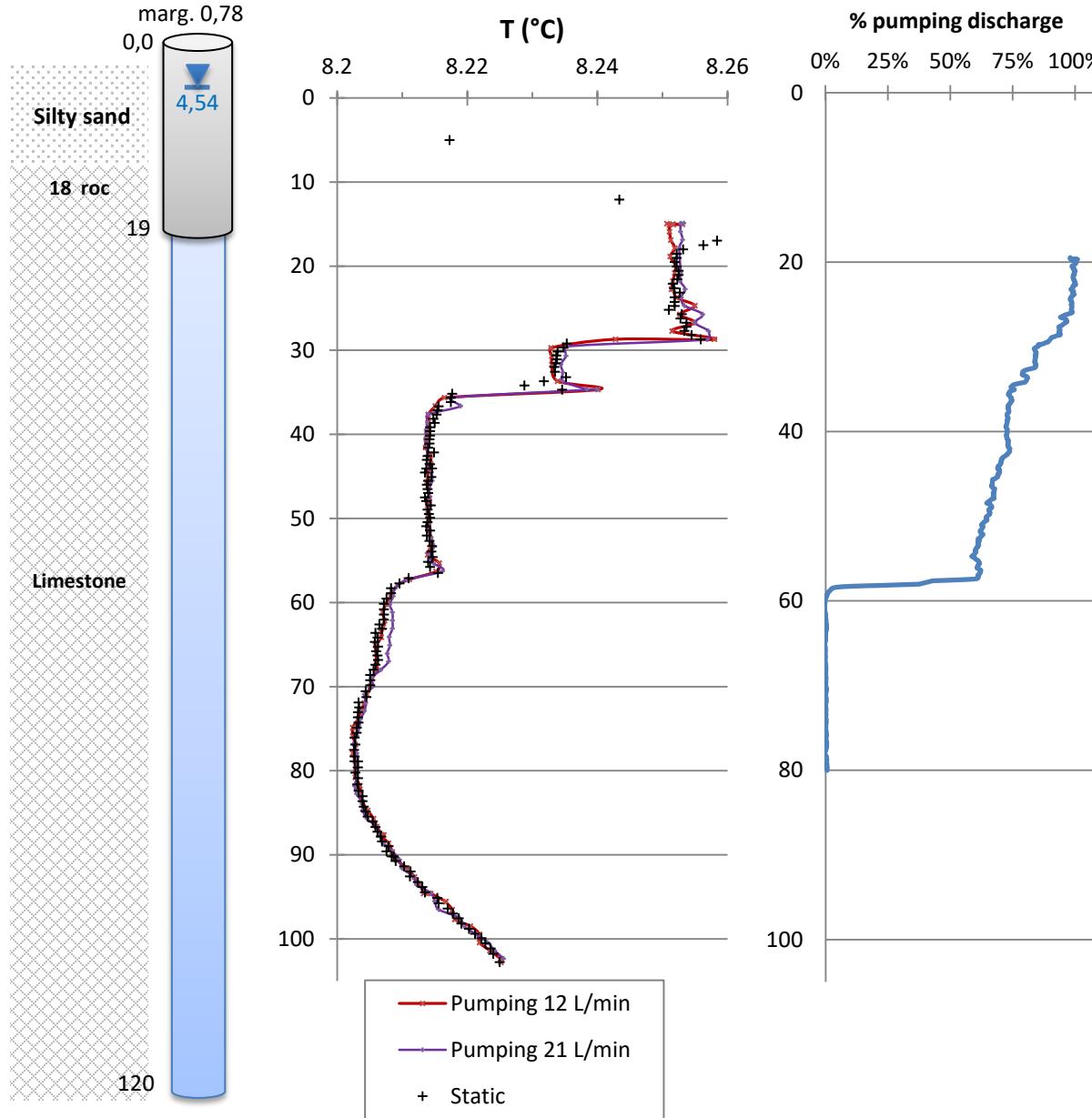
Saint-Paul-Abbotsford (PO2-2017)

No passive flows identified



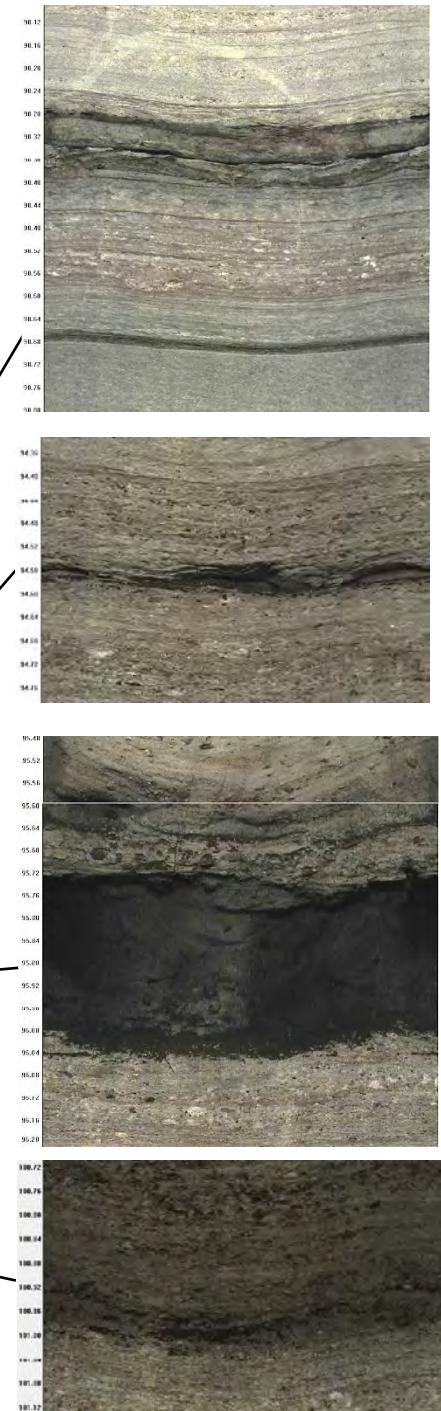
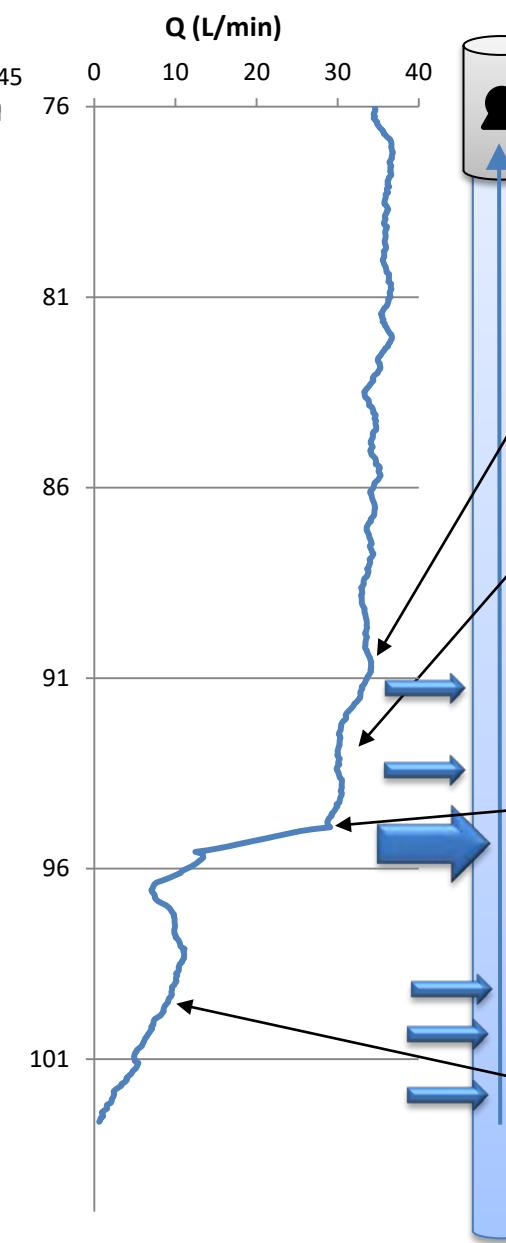
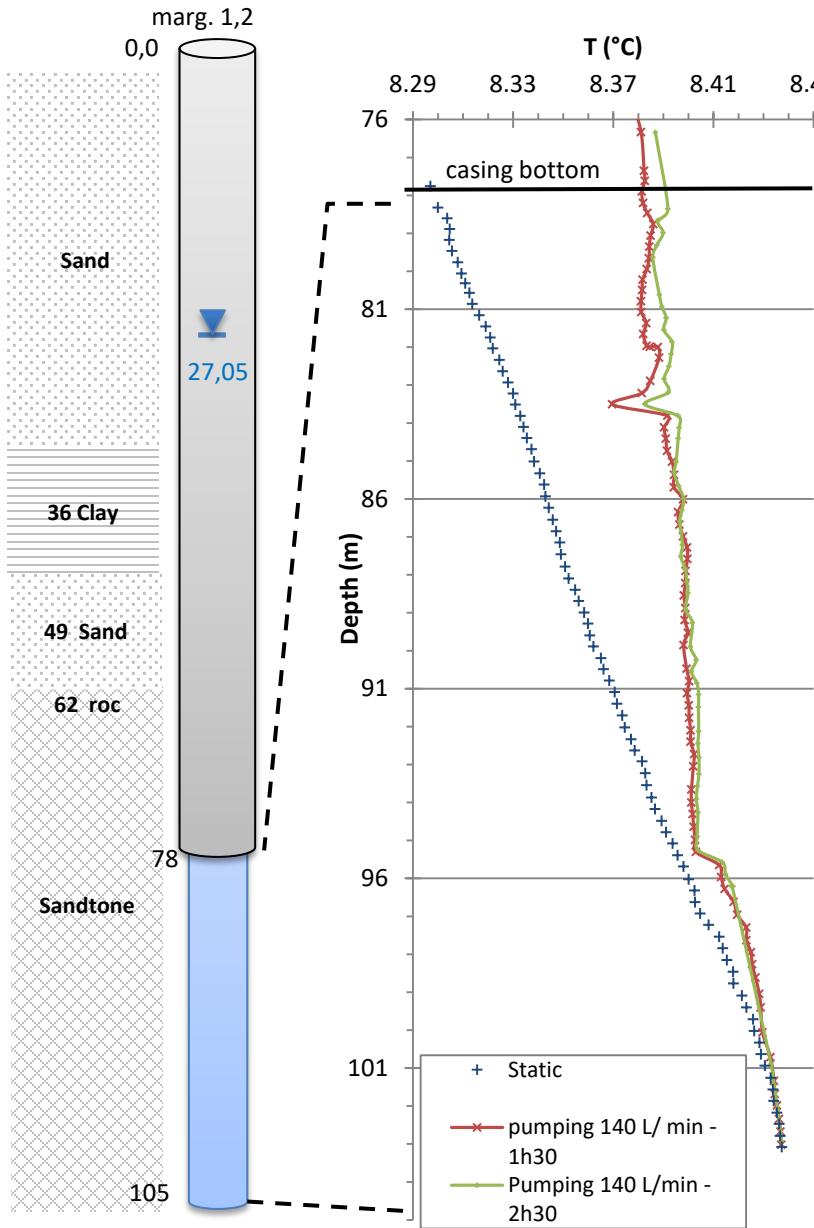
Napierville (PO-6)

Induced flows identified



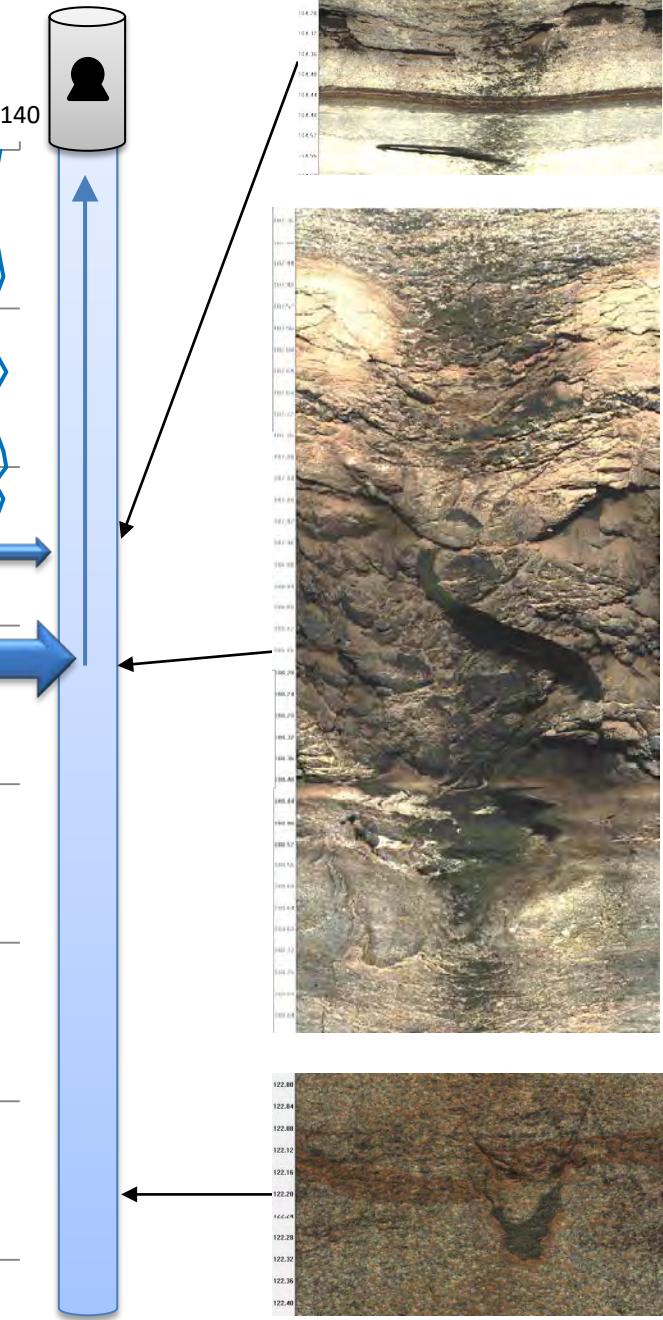
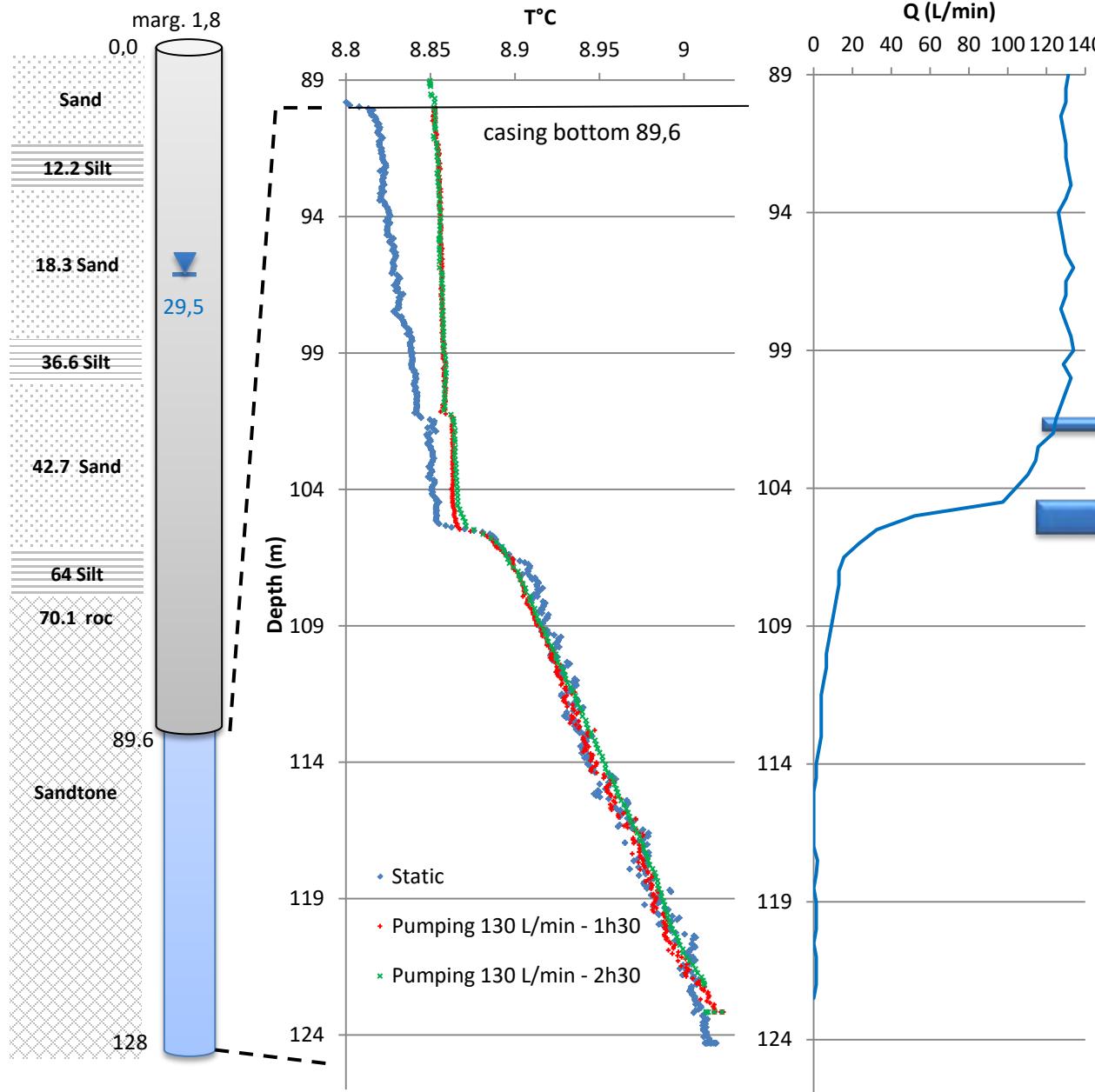
Saint-Lazare (P11)

Confined, no ambient flows



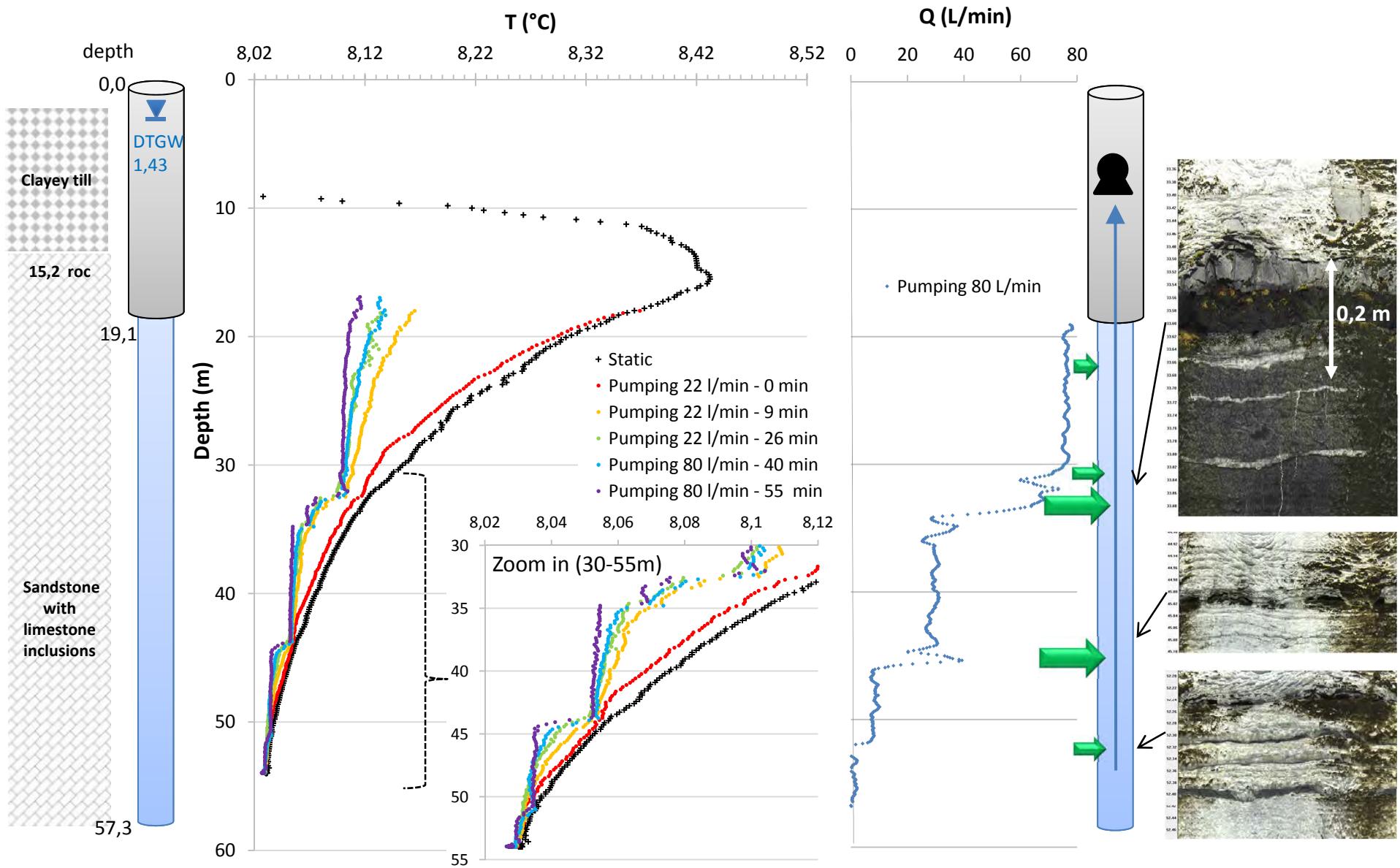
Saint-Lazare (P12)

Confined, Influenced by long term pumping at neighbouring site



Ste Clothilde de Chateauguay (MDDELCC #03090013)

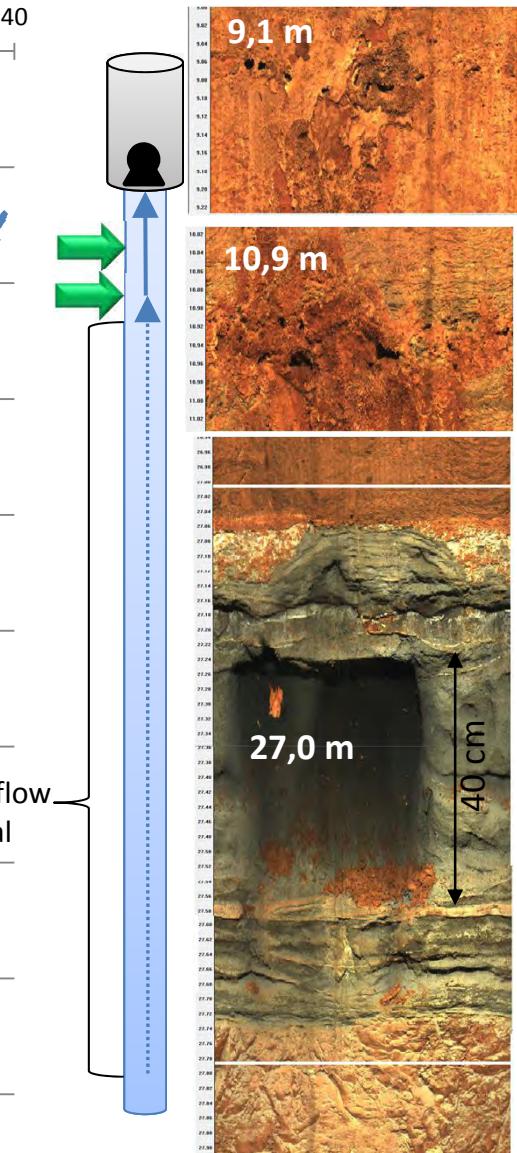
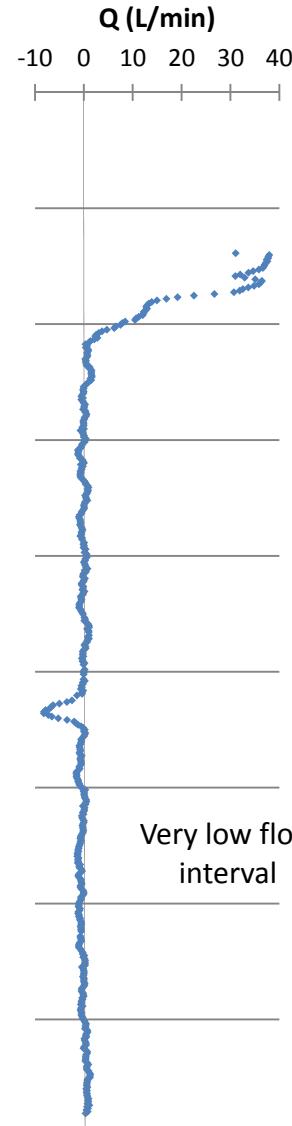
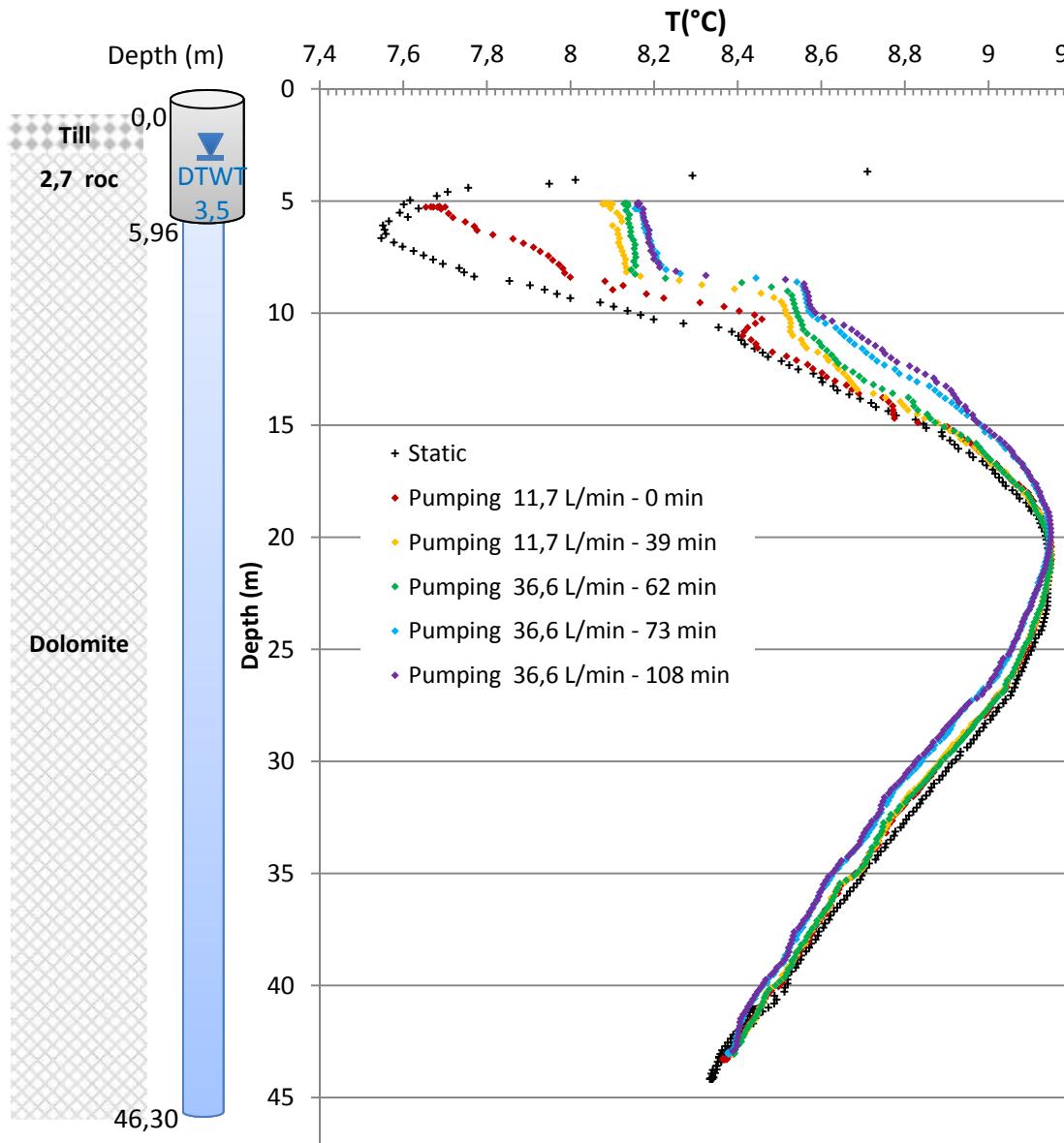
Not influenced, no passive flows



Mirabel (MDDELCC #04647011)

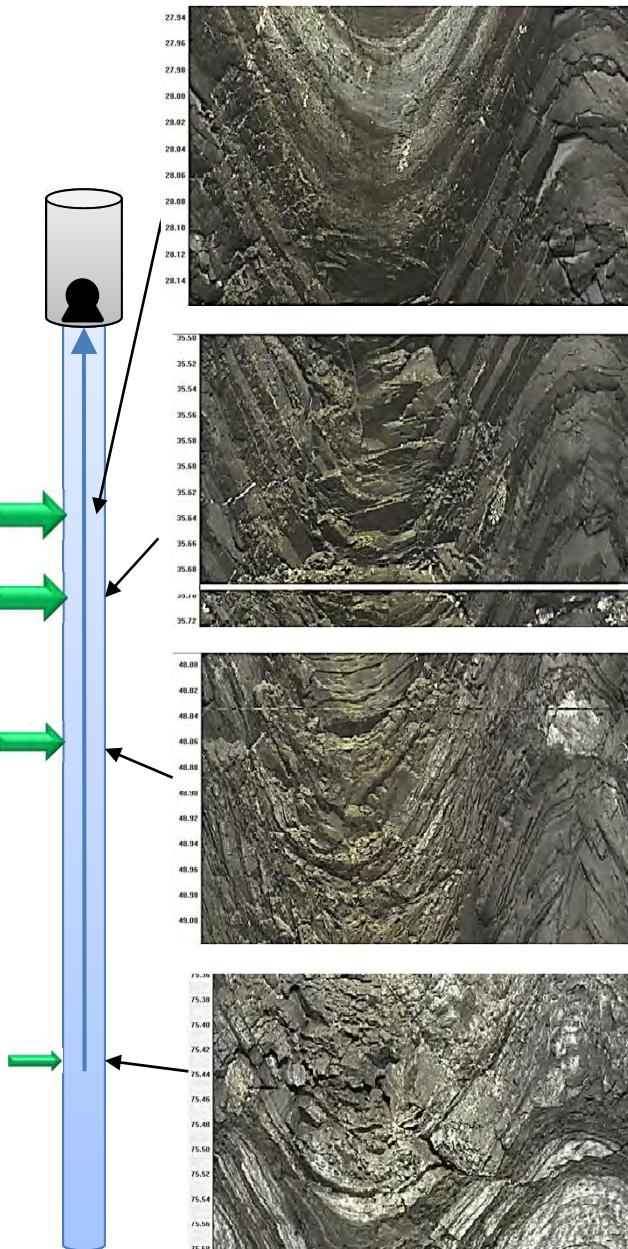
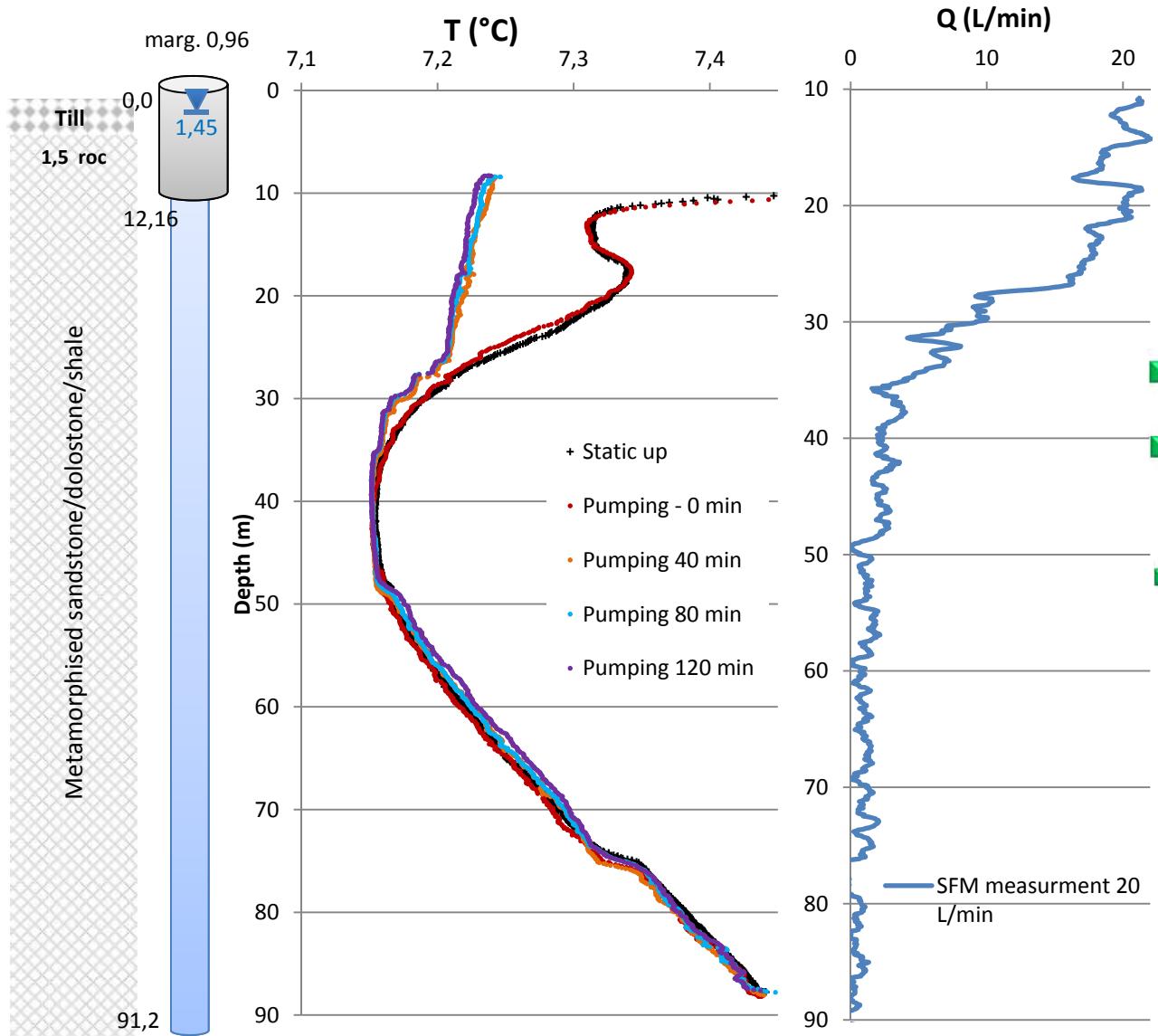
Not influenced by neighbouring pumping, no passive flows

@ discharge
pH: 7,01
CE: 1181 $\mu\text{S}/\text{cm}$



Saint-Appolinaire (PO)

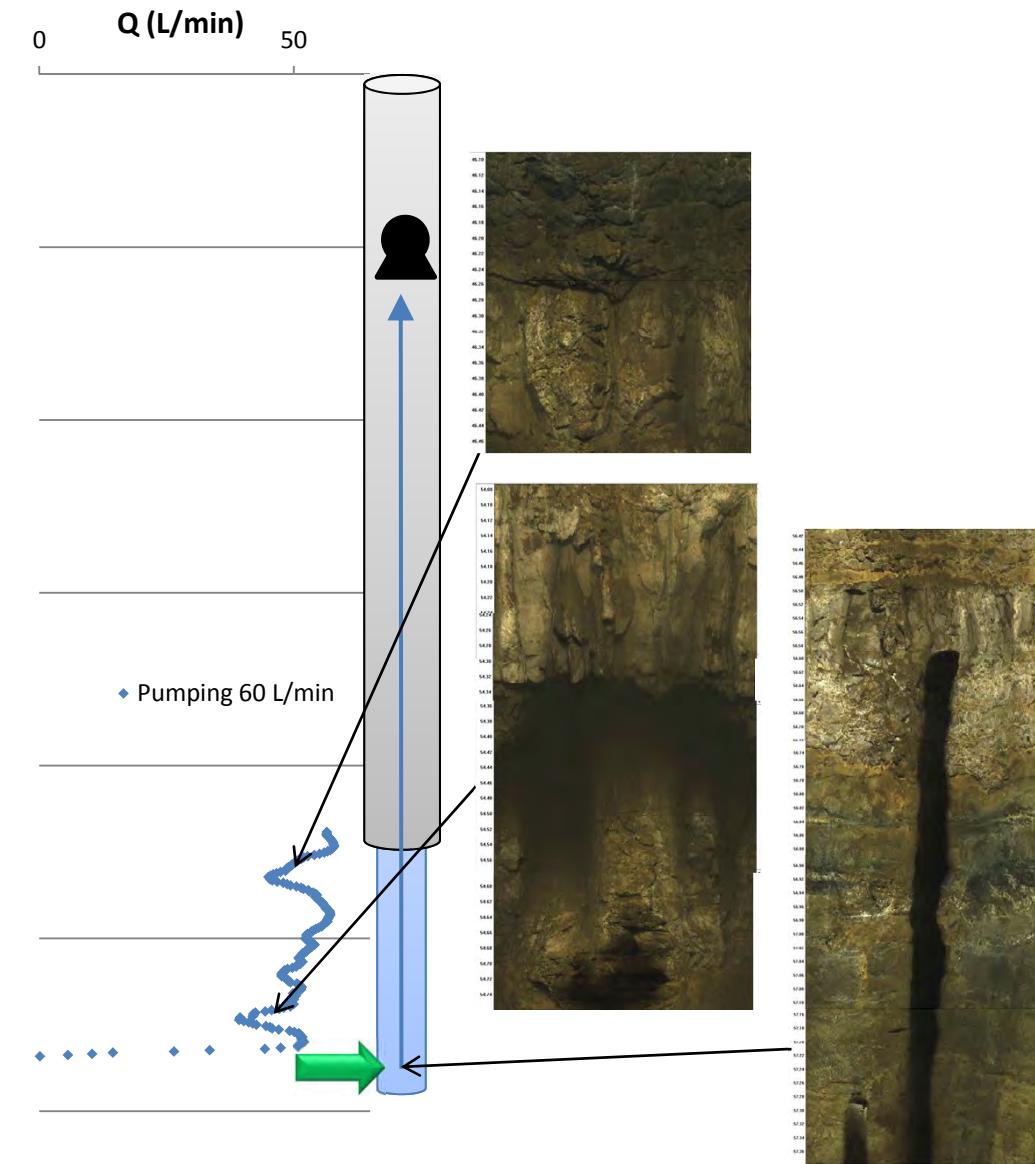
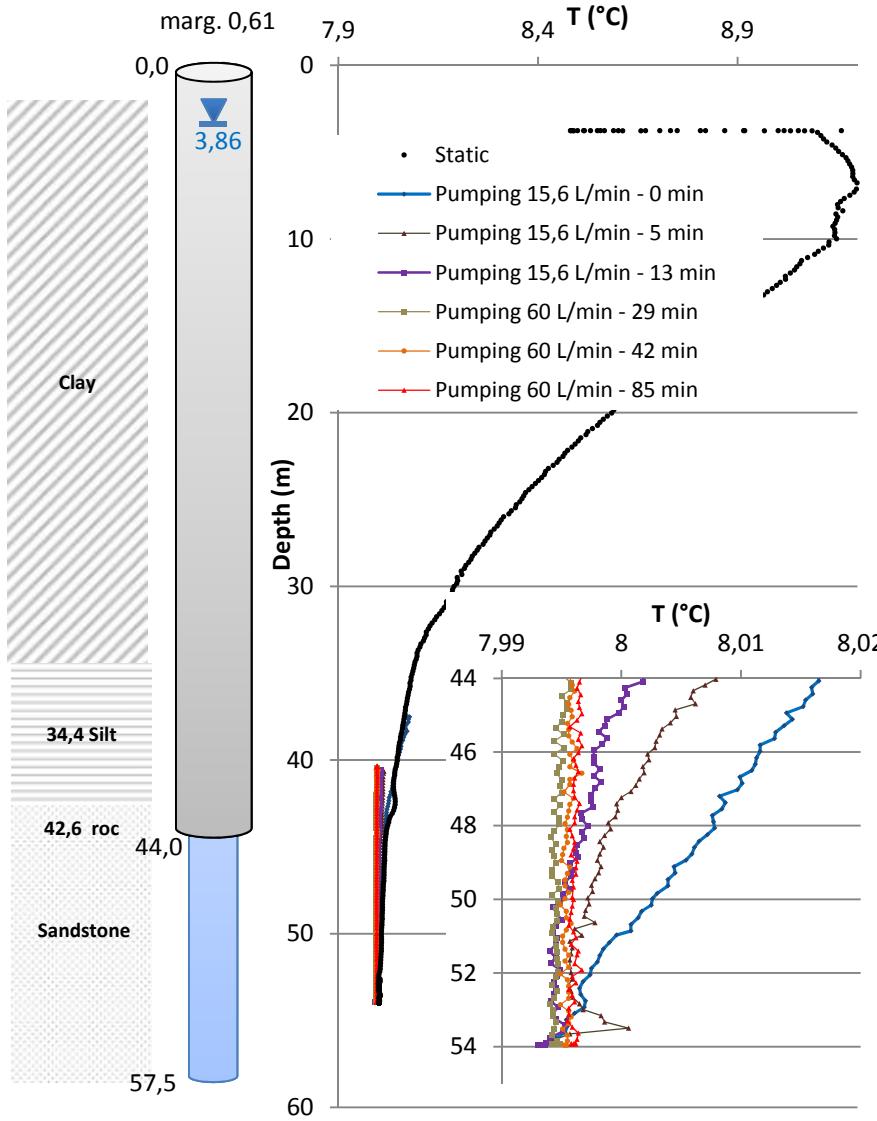
Not influenced by neighbouring pumping, passive flows?



St Hermas (MDDELCC #04017011)

Not influenced, no passive flows

@ discharge
pH: 7,97
CE: 690 $\mu\text{S}/\text{cm}$

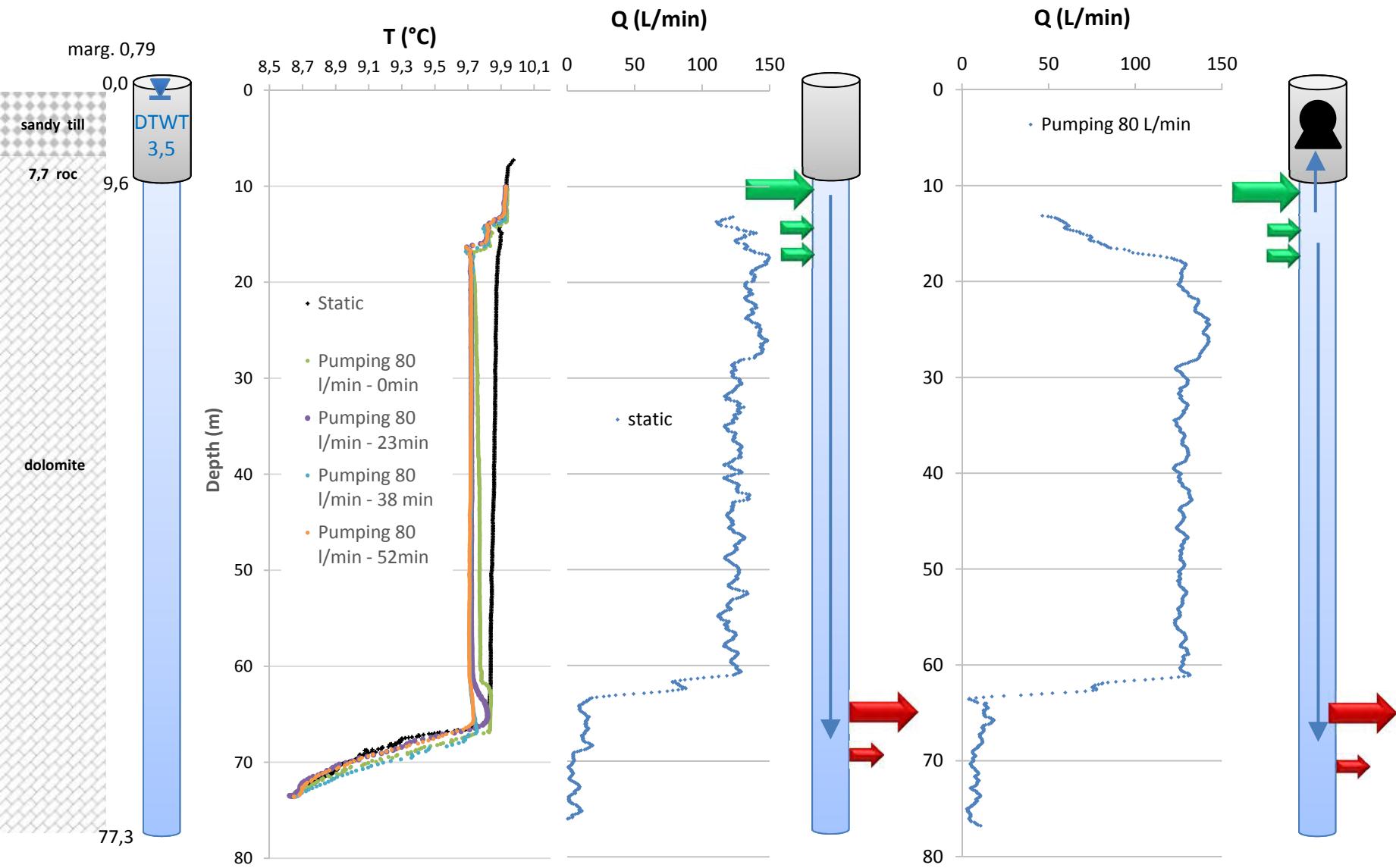


Mirabel (01-2018, rue Charles)

Important neighbouring pumping ($\approx 2\,000 \text{ L/min}$ @ 150 m)

pH: 7,00

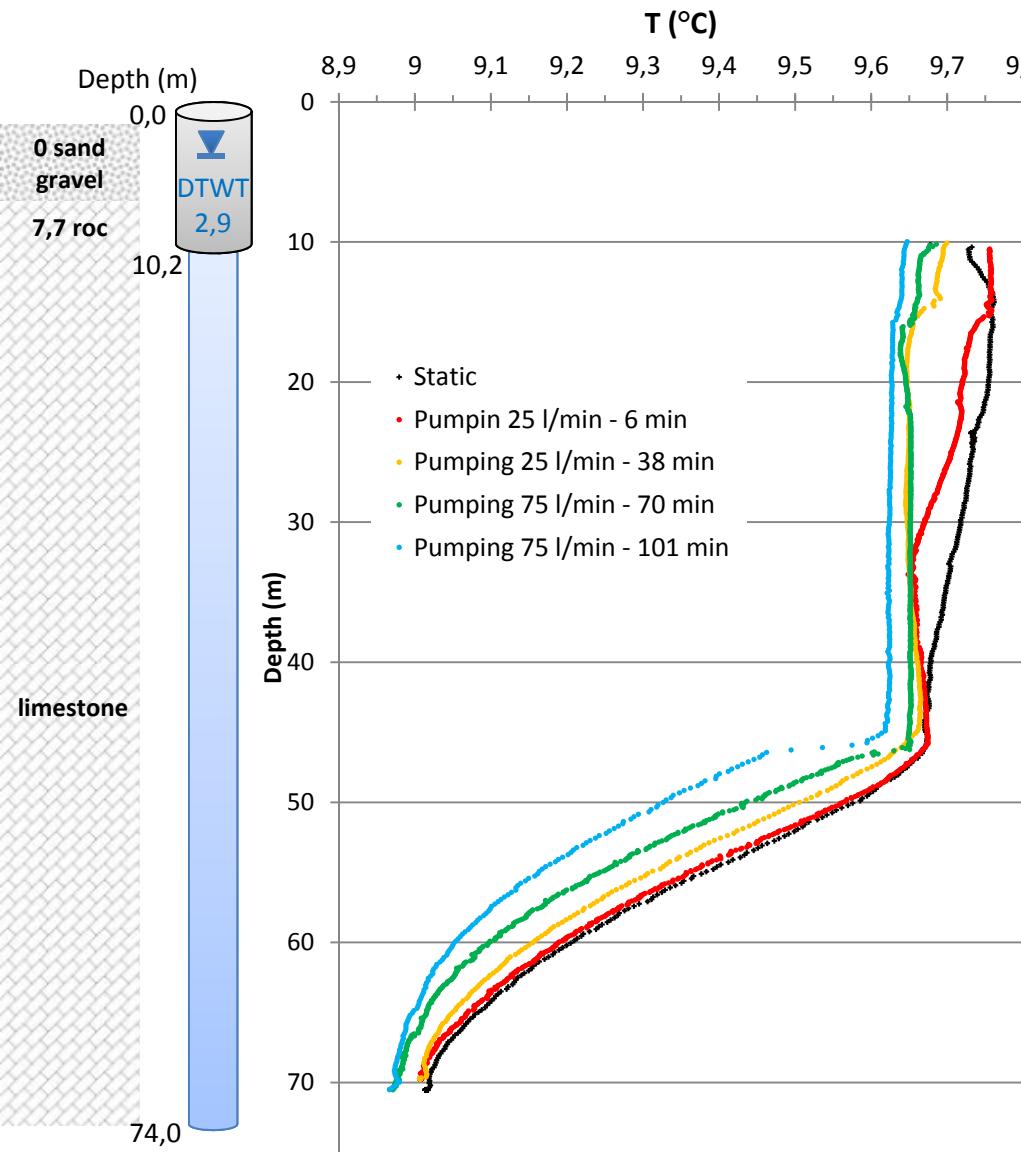
CE: 1362 $\mu\text{S/cm}$



St Roch de l'Achigan (PO 2017-04)

Influenced by neighbouring pumping

@ discharge
pH: 6,52
CE: 1373 µS/cm



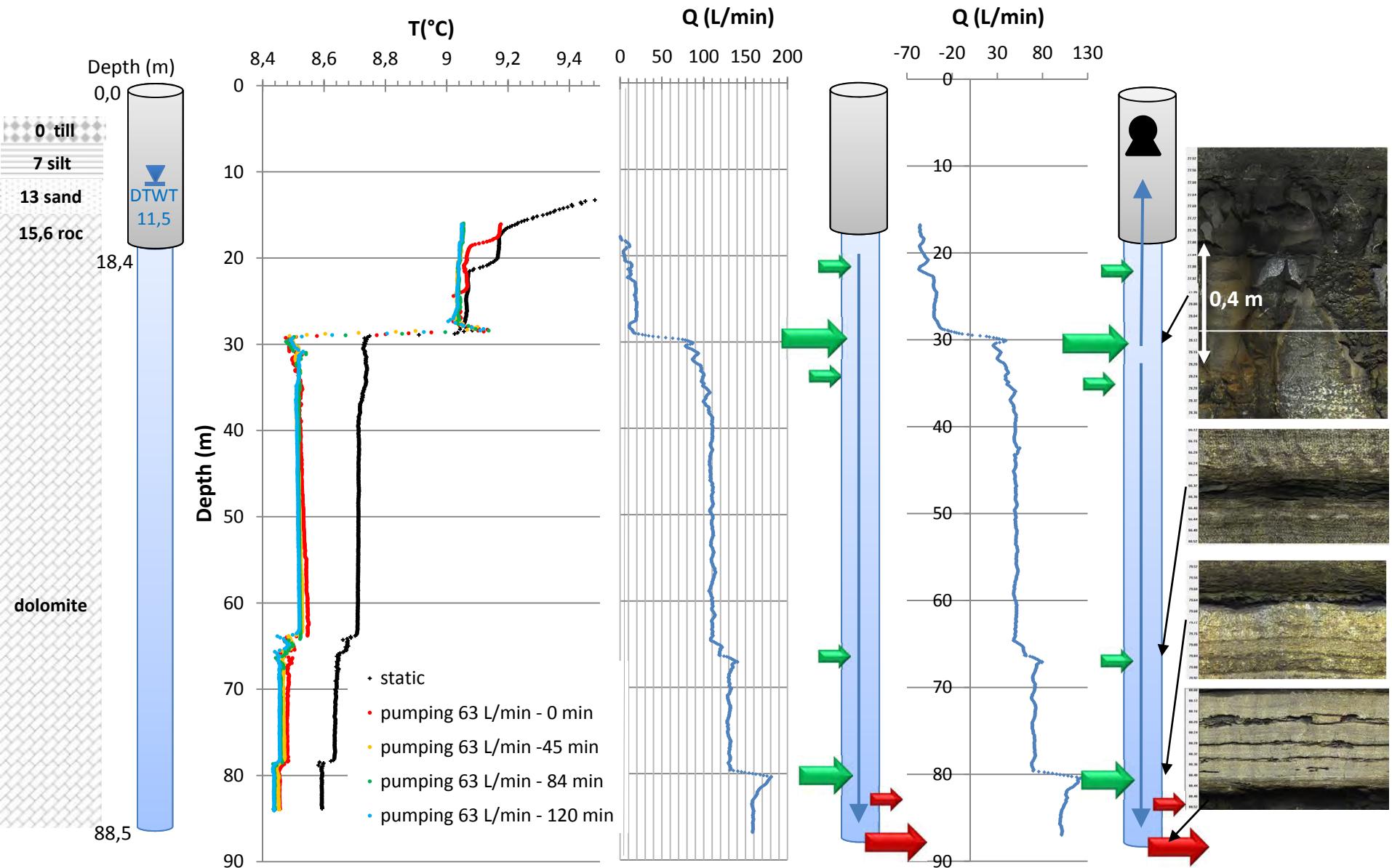
Napierville (PO2-2017)

Important neighbouring pumping (1500 L/min @ 100 m)

@ discharge

pH: 7,19

CE: 1115 $\mu\text{S}/\text{cm}$



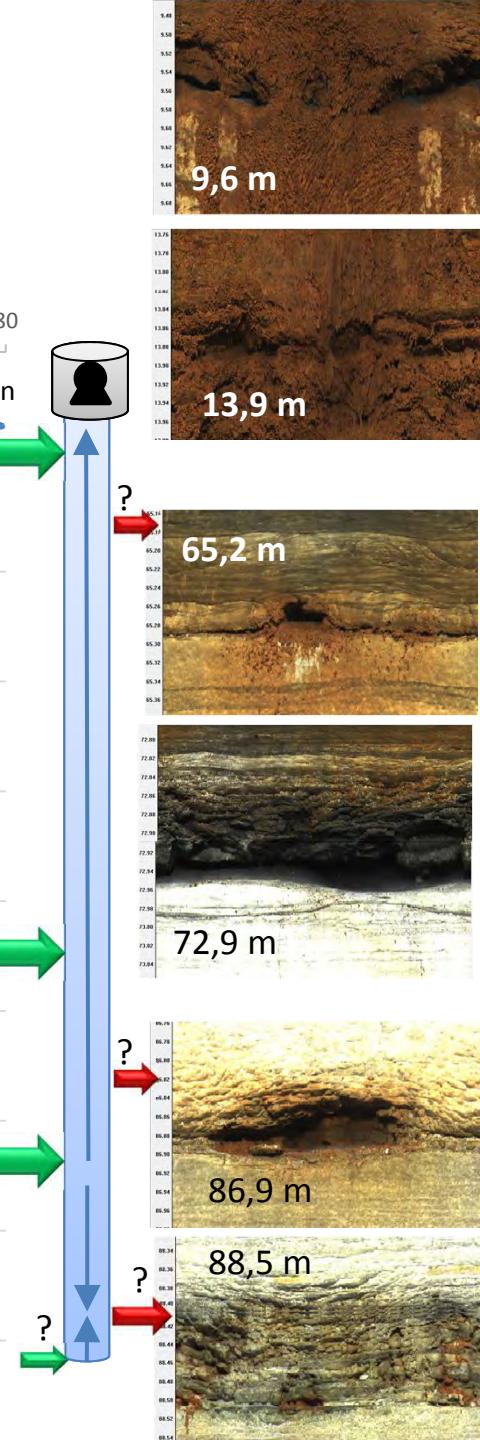
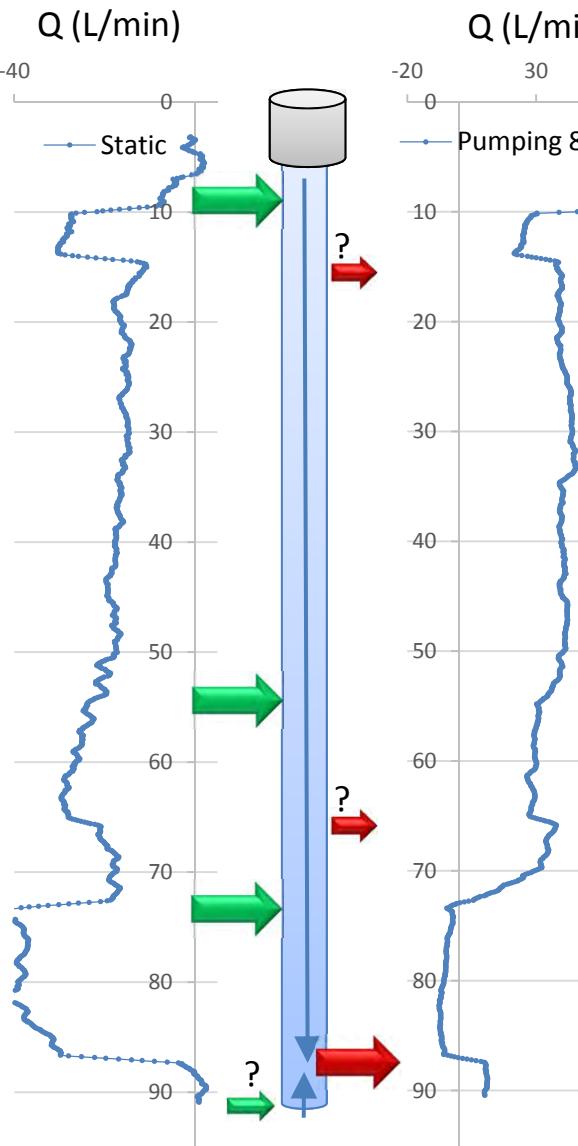
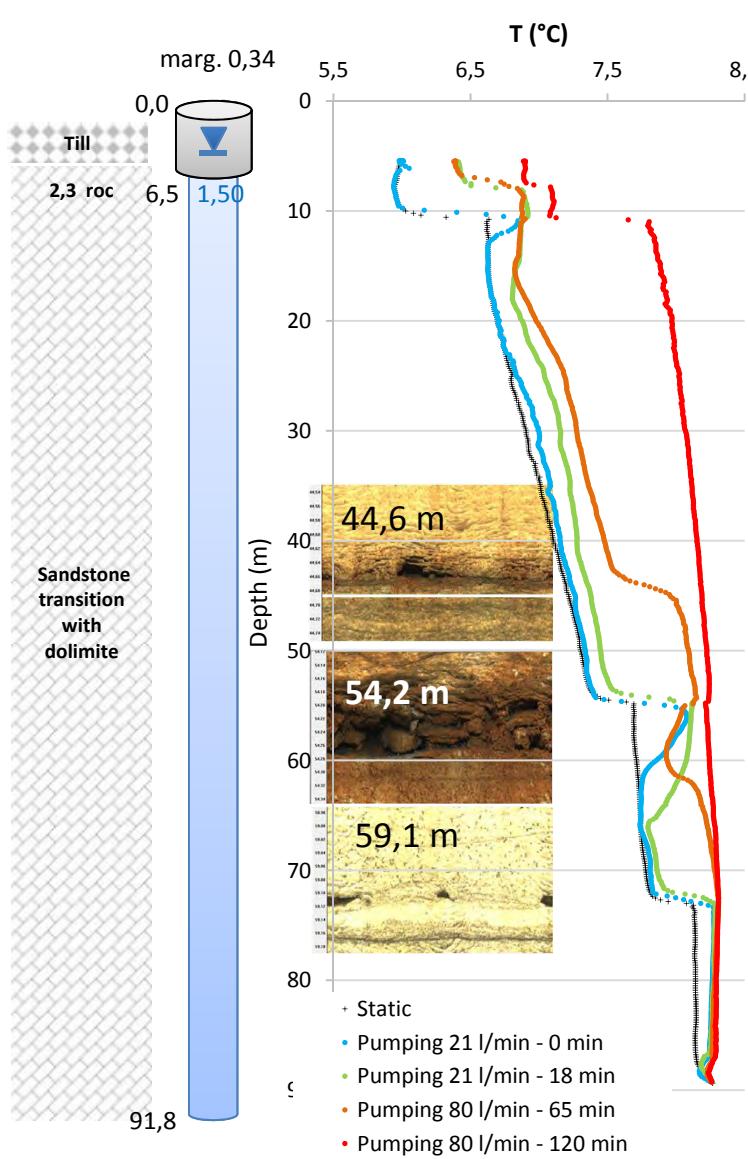
Dumas - Ormstown

Influenced by distant municipal pumping (500 m?)

@ discharge

pH: 6,92

CE: 586 μ S/cm



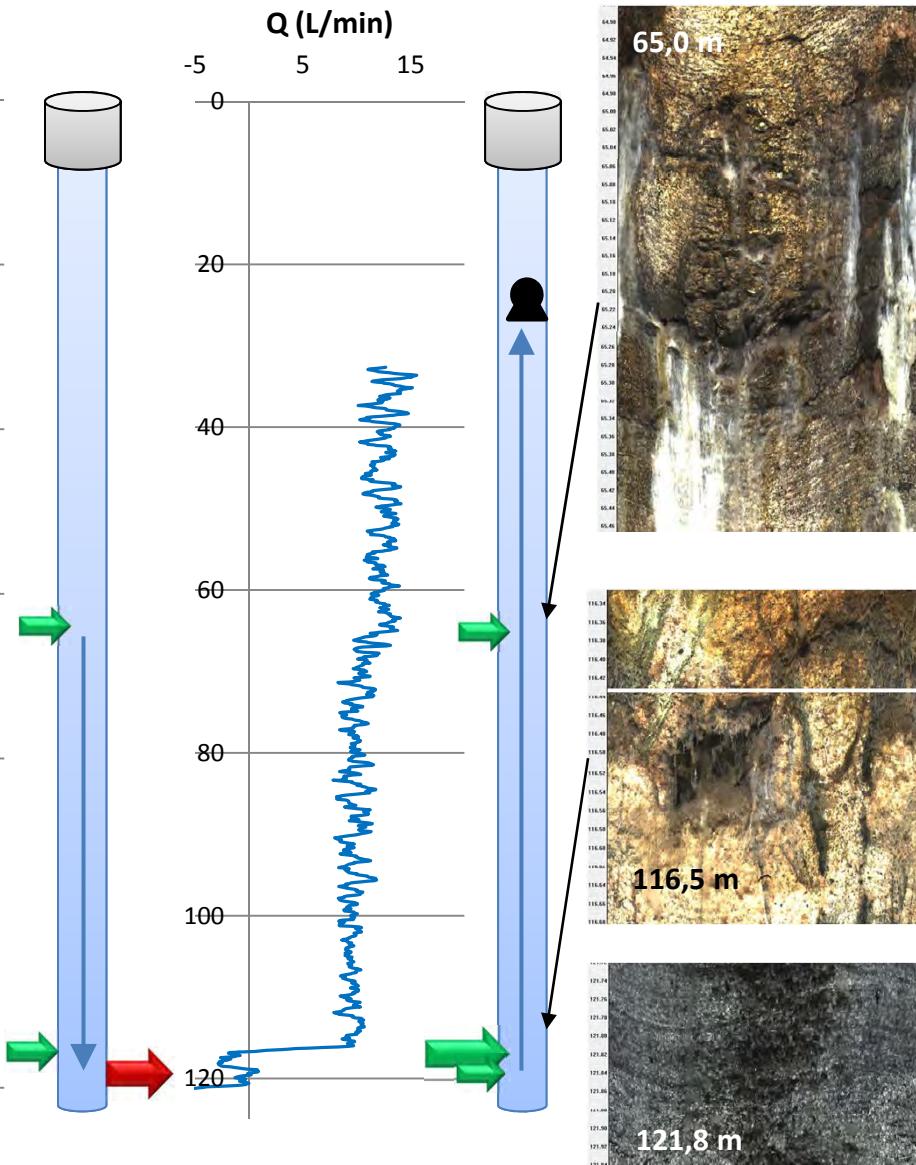
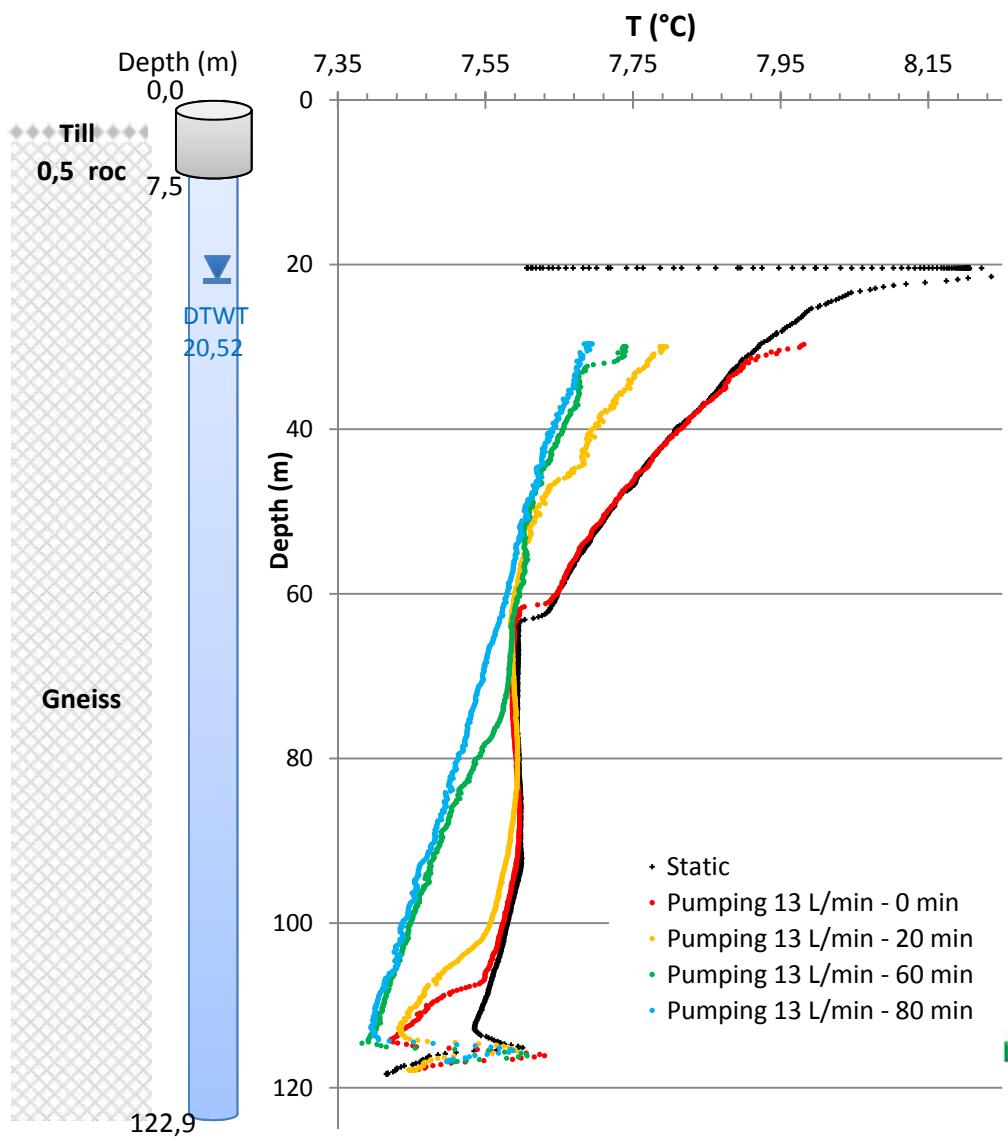
St-Basile

Influenced by neighbouring residential pumping (20 m)

@ discharge

pH: 6,80

CE: 533 $\mu\text{S}/\text{cm}$



ANNEXE A3

**COMPILATION DE LA DISTRIBUTION DES
TRANSMISSIVITÉS ET DES CONDUCTIVITÉS
HYDRAULIQUES DANS LES PUITS INVESTIGUÉS**

Lithology	Location	Wellbore	Total depth	Screened interval	T	Kmean wellbore	-Log K	-Log T	Apparent porosity %	Fracture type: Distributed Conduit/joint	Mean interval	Top fracture	Bottom fracture	bi measured/ distributed	n (distributed)	Fraction of surface	Contribution to tot porosity	t%	ti	ki	-log ti	-Log ki					
Dolomite	Coteau-du-lac	F3 PACES	22.0	10.7	3.73E-03	3.5E-04	3.5	2.4	3.8%	C	12.2	12.10	12.20	0.10	1	0.1	13.0%	4.9E-04	4.9E-03	3.3	2.3						
										D	12.5	12.30	12.60	0.3	0.25		0.075	46.0%	1.7E-03	5.7E-03	2.8	2.2					
	Napierville	PO-6								D	13.1	12.80	13.40	0.6	0.25		0.15	31.0%	1.2E-03	1.9E-03	2.9	2.7					
			120.0	101.0	7.63E-04	7.6E-06	5.1	3.1	0.46%	C	16.5	16.50	16.51	0.012		0.18	0.00216	7.0%	2.6E-04	2.2E-02	3.6	1.7					
										C	28.9	28.80	29.00	0.2		0.8	0.16	26.0%	2.0E-04	9.9E-04	3.7	3.0					
	Ste Clothilde de Chateauguay	MELCC								C	35.0	34.90	35.00	0.04		0.5	0.02	17.0%	1.3E-04	3.2E-03	3.9	2.5					
			57.3	38.2	1.71E-03	4.5E-05	4.3	2.8	0.60%	C	59.2	59.00	59.40	0.4		0.7	0.28	57.0%	4.3E-04	1.1E-03	3.4	3.0					
										D	21.1	21.00	21.10	0.1	0.25		0.025	2.6%	4.4E-05	4.4E-04	4.4	3.4					
										D	33.1	33.00	33.10	0.1	0.25		0.025	50.0%	8.5E-04	8.5E-03	3.1	2.1					
										D	35.1	35.00	35.10	0.1	0.25		0.025	10.3%	1.8E-04	1.8E-03	3.8	2.8					
	Mirabel	MELCC								C	45.0	45.00	45.01	0.01		0.5	0.005	26.9%	4.6E-04	4.6E-02	3.3	1.3					
			46.3	40.3	9.57E-04	2.4E-05	4.6	3.0	0.003%	C	52.1	52.00	52.15	0.15		1	0.15	10.3%	1.8E-04	1.2E-03	3.8	2.9					
										C	9.1	9.08	9.10	0.01		0.05	0.0005	65.5%	6.3E-04	6.3E-02	3.2	1.2					
										C	10.9	10.90	10.90	0.015		0.05	0.00075	34.5%	3.3E-04	2.2E-02	3.5	1.7					
										D	21.1	21.00	21.10	0.1	0.25		0.025	4.9%	4.03E-05	4.0E-04	4.4	3.4					
Napierville	PO2-2017									D	29.2	29.00	29.40	0.4	0.25		0.1	21.2%	1.75E-04	4.4E-04	3.8	3.4					
			88.5	70.1	8.24E-04	1.2E-05	4.9	3.1	2.2%	D	38.5	36.00	41.00	5	0.25		1.25	8.2%	6.79E-05	1.4E-05	4.2	4.9					
										C	66.0	66.00	66.03	0.03		1	0.03	6.2%	5.09E-05	1.7E-03	4.3	2.8					
										C	80.0	80.00	80.03	0.03		1	0.03	9.5%	7.82E-05	2.6E-03	4.1	2.6					
										C	87.9	87.85	87.93	0.08		1	0.08	50.0%	4.12E-04	5.2E-03	3.4	2.3					
Mirabel	01-2018									D?	10.0	9.90	10.00	0.1	0.25		0.025	40.5%	1.65E-02	1.6E-01	1.8	0.8					
										D?	15.0	14.90	15.00	0.1	0.25		0.025	4.5%	1.83E-03	1.8E-02	2.7	1.7					
										D?	16.0	15.90	16.00	0.1	0.25		0.025	5.0%	2.04E-03	2.0E-02	2.7	1.7					
										D?	65.0	64.90	65.00	0.1	0.25		0.025	50.0%	2.04E-02	2.0E-01	1.7	0.7					
Limestone	St Roch de l'Achigan	PO2017	74.0	63.8	1.43E-03	2.2E-05	4.6	2.8	0.6%	C	15.8	15.60	16.00	0.4		0.5	0.2	10.0%	1.4E-04	3.6E-04	3.8	3.4					
Red Schists	Saint Paul d'Abbotsford	PO7	61.0	52.1	4.20E-03	8.1E-05	4.1	2.4	0.9%	C	9.5	9.00	9.90	0.012		1	0.012	16.0%	6.7E-04	5.6E-02	3.2	1.3					
										C	10.4	10.30	10.50	0.023		0.35	0.00805	74.0%	3.1E-03	1.4E-01	2.5	0.9					
	P2-2017		90.0	84.6	2.10E-03	2.5E-05	4.6	2.7	0.02%	C	11.0	10.96	11.00	0.04		0.33	0.0132	99.0%	2.1E-03	5.2E-02	2.7	1.3					
										C	19.0	19.00	19.00	0.005		1	0.005	1.0%	2.1E-05	4.2E-03	4.7	2.4					
Sandstone	Saint Lazare	P11	105.0	27.0	1.67E-03	6.2E-05	4.2	2.8	4.0%	C	90.4	90.35	90.36	0.01		1	0.01	12.0%	2.0E-04	2.0E-02	3.7	1.7					
										C	94.6	94.54	94.56	0.02		0.4	0.008	1.3%	2.2E-05	1.1E-03	4.7	3.0					
										C	95.9	95.72	96.04	0.32		1	0.32	58.7%	9.8E-04	3.1E-03	3.0	2.5					
										D	102.0	99.00	105.00	3	0.25		0.75	27.9%	4.7E-04	1.6E-04	3.3	3.8					
	Saint Hermas	MELCC	128.0	38.4	1.46E-03	3.8E-05	4.4	2.8	0.55%	C	101.5	101.49	101.50	0.01		1	0.01	74.5%	1.1E-03	1.1E-01	3.0	1.0					
										D	104.6	104.20	105.00	0.8	0.25		0.2	25.4%	3.7E-04	4.6E-04	3.4	3.3					
	Ormstown	Dumas 9	57.5	13.5	1.12E-03	8.3E-05	4.1	3.0	2.96%	C	56.9	56.30	56.70	0.4		1	0.4	100.0%	1.1E-03	2.8E-03	3.0	2.6					
			91.8	85.3	2.72E-03	3.2E-05	4.5	2.6	0.22%	C	9.6	9.57	9.60	0.03		0.5	0.015	23.5%	6.40E-04	2.1E-02	3.2	1.7					
										C	13.9	13.86	13.90	0.04		0.8	0.032	13.4%	3.66E-04	9.1E-03	3.4	2.0					
										C	54.2	54.12	54.20	0.08		0.6	0.048	9.2%	2.51E-04	3.1E-03	3.6	2.5					
										C	72.9	72.86	72.90	0.04		1	0.04	18.5%	5.03E-04	1.3E-02	3.3	1.9					
										C	86.9	86.84	86.90	0.06		0.5	0.03	31.1%	8.46E-04	1.4E-02	3.1	1.9					
Appalachian	Saint-Appolinaire	P11	91.2	79.0	1.39E-04	1.8E-06	5.8	3.9	0.6%	D	90.6	90.35	90.85	0.5	0.25		0.125	12.0%	1.7E-05	3.3E-05	4.8	4.5					
										D	94.8	94.54	95.04	0.5	0.25		0.125	1.3%	1.9E-06	3.7E-06	5.7	5.4					
										D	96.0	95.72	96.22	0.5	0.25		0.125	58.7%	8.2E-05	1.6E-04	4.1	3.8					
										D	99.3	99.00	99.50	0.5	0.25		0.125	27.9%	3.9E-05	7.8E-05	4.4	4.1					
Gneiss	Saint-Basile	PO	122.9	115.4	9.51E-06	8.2E-08	7.1	5.0	0.1%	C	65.0	64.97	65.00	0.03		0.8	0.024	23.0%	2.2E-06	7.3E-05	5.7	4.1					
										C	116.5	116.44	116.50	0.06		0.3	0.018	54.0%	5.1E-06	8.6E-05	5.3	4.1					
										?	121.8	121.70	121.80	0.1	0.25		0.025	23.0%	2.2E-06	2.2E-05	5.7	4.7					
Observations			15	15										52		0											
Mean			82.2	59.1										50.1		0.3		0									
Geometric mean																	0		2.3E-04	2.3E-03							
Minimum			22.00	10.70										9.09	9.00	9.10	0.01		0		1.9E-06	3.7E-06					
Maximum			128.00	115.40										121.75	121.70	121.80	5.00		0		2.0E-02	2.0E-01					
Std Deviation														36.24		0.81		0		3.6E-03	4.3E-02						

ANNEXE B

DONNÉES GÉOCHIMIQUES

ANNEXE B1 : DONNÉES HYDROGÉOCHIMIQUES

Note concernant les profondeurs : **gras** : prof. échantillon zone de mélange; souligné : prof. des fractures (déconvoluées); **gris** : prof. échantillon en zone stagnante; normal : prof. fractures hors zone de mélange

Note concernant les nitrates : tous les échantillons ont été analysés pour les nitrates. Tous les résultats reportent des non-détections (<0.02 mg/L N-NO₃)

Lithologie	Localisation	Puits	Prof. (m)	T (°C)	pH	CE $\mu\text{S}/\text{cm}$	Type d'eau	Ca mg/L	Mg mg/L	Na mg/L	K mg/L	HCO ₃ mg/L	Alk.	Cl mg/L	SO ₄ mg/L	Mn mg/L	Fe mg/L	Ba mg/L	F mg/L	Br mg/L	Si mg/L
Schiste	Saint-Paul d'Abbotsford	PO5	10	8.5	8.2	794	Na.Mg - Cl.HCO ₃	27	29	110	3.1	181	150	31	0.18	<LDR	0.24	0.2	<LDR	3.6	
			40	8.4	8.3	807	Na.Mg - Cl.HCO ₃	26	30	120	0.3	157	150	32	0.10	<LDR	0.17	0.2	<LDR	4.9	
			75	8.4	8.1	2910	Na.Mg - Cl	120	120	330	0.6	99	910	9	0.48	<LDR	0.95	0.1	2.0	3.7	
			95	8.5	8.2	3210	Na.Mg - Cl	150	140	370	0.6	87	1100	6	0.47	<LDR	1.10	0.1	3.0	4.2	
		PO7	10	9.0	7.9	675	Ca - HCO ₃ .Cl	95	11	43	1.5	254	69	29	0.47	<LDR	0.32	0.2	<LDR	6.2	
			40	8.8	7.8	739	Ca.Na - HCO ₃ .Cl	95	14	58	1.3	254	89	34	0.49	<LDR	0.32	0.1	<LDR	7.0	
			60	8.7	7.8	1026	Na.Ca - Cl.HCO ₃	64	17	160	1.2	266	170	42	0.36	<LDR	0.21	0.2	<LDR	6.6	
	Hemmingford	P-Cl	30	9.0	7.2	456	Ca.Mg - HCO ₃	37	20	28	3.2	242	8.9	31	0.35	<LDR	0.14	0.1	<LDR	5.6	
Grès	Saint-Lazare	P11	79	8.3	7.9	279	Ca.Mg - HCO ₃	32	11	8.2	2.2	181	0.6	0.5	0.08	-	0.23	-	-	-	
			95	8.4	7.7	274	Ca.Mg - HCO ₃	32	12	8.9	2.3	181	0.6	0.5	0.07	-	0.48	-	-	-	
	Ormstown	Dumas 10	10	8.2	7.5	699	Ca - SO ₄ .HCO ₃	100	21	16	4.9	187	14	210	0.20	3.20	0.21	0.2	0.1	4.0	
			60	8.2	7.5	680	Ca - SO ₄ .HCO ₃	110	19	15	4.7	199	12	220	0.19	1.80	0.19	0.2	0.1	4.0	
			80	8.2	7.4	752	Ca - SO ₄ .HCO ₃	120	20	15	4.6	168	13	270	0.20	0.76	0.11	0.2	0.1	3.6	
Dolomie	Napierville	P6	18	8.3	7.4	2730	Ca.Mg - SO ₄	360	120	200	8.5	193	96	1400	0.05	-	<LDR	-	-	-	
			43	8.2	7.2	2840	Ca.Mg - SO ₄	390	120	200	8.3	205	99	1500	0.04	-	<LDR	-	-	-	
			68	8.2	7.2	2910	Ca.Mg - SO ₄	380	130	210	8.3	217	110	1500	0.02	-	<LDR	-	-	-	
			98	8.2	7.1	2840	Ca.Mg - SO ₄	390	130	210	8.6	205	110	1500	0.03	-	<LDR	-	-	-	
		PO2	21	9.1	7.0	1115	Ca - HCO ₃ .SO ₄	160	37	30	4.8	395	64	230	0.30	0.44	0.07	0.1	<LDR	7.1	
			45	8.7	7.2	1554	Ca.Mg - SO ₄ .HCO ₃	190	47	43	5.1	291	43	560	0.14	0.63	0.04	0.5	<LDR	6.6	
			70	8.6	7.2	1460	Ca - SO ₄ .HCO ₃	210	47	47	5.3	317	47	510	0.14	0.87	0.04	0.5	<LDR	6.5	
			83	8.6	7.2	1465	Ca.Mg - SO ₄ .HCO ₃	200	50	49	5.4	301	44	590	0.22	0.00	0.03	0.5	<LDR	5.7	
	Ste Clothilde Châteauguay	MELCC 03090013	21	8.3	7.9	507	Mg.Ca.Na - HCO ₃	43	29	37	5.1	339	8.9	6	0.04	0.19	0.27	0.2	<LDR	5.5	
			33-35	8.2	7.7	667	Ca.Mg.Na - HCO ₃	51	30	53	5.1	304	44	55	0.14	0.86	0.20	0.2	0.2	5.0	
			45	8.1	7.7	679	Ca.Mg.Na - HCO ₃	52	29	51	4.9	305	44	57	0.10	0.15	0.19	0.2	0.2	5.0	
			52	8.1	7.7	715	Ca.Mg.Na - HCO ₃	55	32	55	5.5	314	50	63	0.13	0.22	0.20	0.2	0.1	4.8	
			55	8.0	7.5	745	Ca.Mg.Na - HCO ₃	54	32	59	5.5	304	67	60	0.14	0.00	0.19	0.2	0.2	4.6	
	Mirabel	Charles	10	9.9	6.9	1015	Ca.Mg - HCO ₃ .SO ₄	110	43	57	4.1	355	100	180	0.21	0.00	0.10	0.1	<LDR	5.8	
Calcaire	Saint-Roch	2017-04	11	9.8	6.9	1280	Ca. Mg - Cl.HCO ₃	120	59	41	8.1	353	230	68	0.06	1.30	0.12	0.2	0.1	13.0	
			71	9.2	7.2	1417	Ca. Mg - Cl.HCO ₃	110	60	85	9.1	297	290	68	0.02	<LDR	0.34	0.3	<LDR	11.0	
<i>Limite de détection</i>								0.3	0.1	0.1	0.1	1	0.05	5.0	0.0004	0.06	0.002	0.1	0.1	0.02	

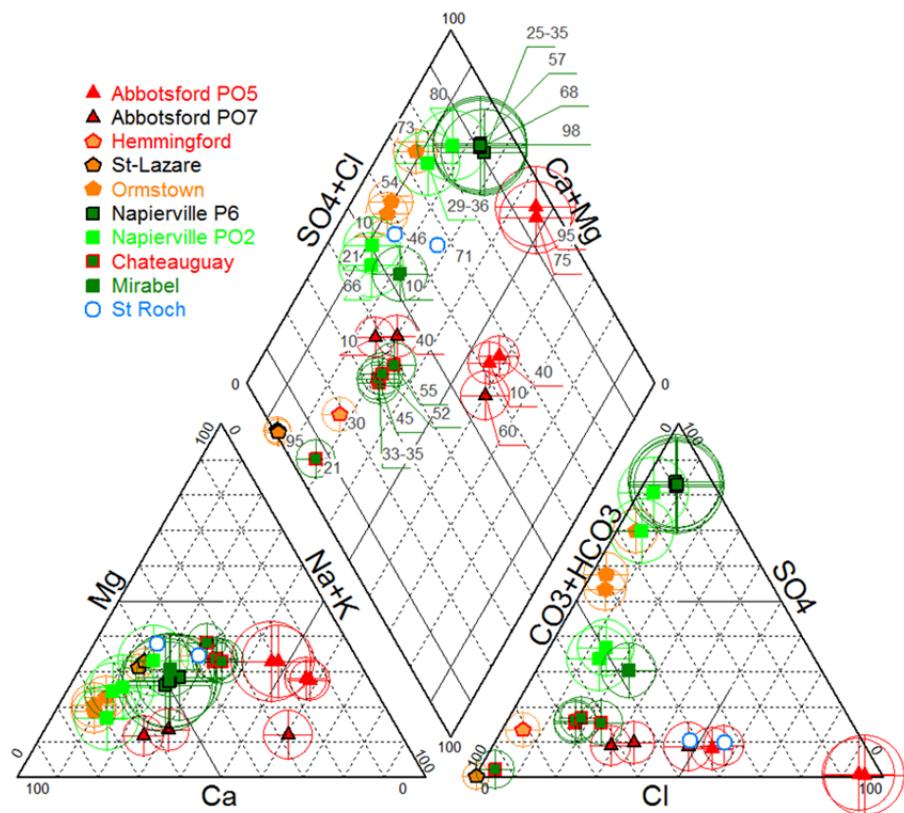
Note concernant les profondeurs : **gras** : prof. échantillon zone de mélange; souligné : prof. des fractures (déconvoluées); gris : prof. échantillon en zone stagnante; normal : prof. fractures hors zone de mélange

Lithologie	Localisation	Puits	Prof. (m)	T (°C)	pH	CE μS/cm	² H ‰SMOW	¹⁸ O ‰SMOW	³ H TU	¹³ C ‰PDB	¹⁴ C pMC
Schiste	Saint-Paul d'Abbotsford	PO5	10	8.5	8.2	794	-78.18	-11.31			
			40	8.4	8.3	807	-78.16	-11.32			
			75	8.4	8.1	2910	-84.85	-11.98			
			95	8.5	8.2	3210	-86.00	-12.12			
		PO7	10	9.0	7.9	675	-77.14	-11.16			
			40	8.8	7.8	739	-77.18	-11.22			
			60	8.7	7.8	1026	-77.37	-11.22			
	Hemmingford	P-Cl	30	9.0	7.2	456	-79.72	-11.49			
Grès	Saint-Lazare	P11	79	8.3	7.9	279	-81.79	-11.95	<0.8	-5.9	31.4
			95	8.4	7.7	274	-81.80	-12.07	<0.8	-6.6	33.5
	Ormstown	Dumas 10	10	8.2	7.5	699	-82.83	-12.12	2.7	-12.9	63.4
			60	8.2	7.5	680	-83.49	-11.71	2.0		
			80	8.2	7.4	752	-83.14	-12.23	1.6		
Dolomie	Napierville	P6	18	8.3	7.4	2730	-72.43	-10.21	7.5	-7.2	4.0
			43	8.2	7.2	2840	-72.81	-10.38		-7.3	3.7
			68	8.2	7.2	2910	-73.01	-10.50		-7.3	2.9
			98	8.2	7.1	2840	-73.23	-10.21			
		PO2	21	9.1	7.0	1115	-72.05	-10.67	9.2		
			45	8.7	7.2	1554	-72.25	-10.64	4.9		
			70	8.6	7.2	1460	-72.54	-10.50	5.1		
			83	8.6	7.2	1465	-71.89	-10.70	6.1		
	Ste Clothilde Châteauguay	MELCC 03090013	21	8.3	7.9	507	-73.92	-10.72	2.6	-13.7	59.0
			<u>33-35</u>	8.2	7.7	667	-74.96	-10.89	1.8	-13.4	57.3
			45	8.1	7.7	679	-74.92	-10.85	3.0	-13.3	57.7
			52	8.1	7.7	715	-74.74	-11.02	3.4	-13.3	60.0
			55	8.0	7.5	745	-75.06	-10.93	4.2	-13.1	58.8
	Mirabel	Charles	10	9.9	6.9	1015	-61.09	-8.99	13.8	-14.1	75.7
Calcaire	Saint-Roch	2017-04	11	9.8	6.9	1280	-70.19	-10.53	9.3	-11.9	64.0
			71	9.2	7.2	1417	-71.45	-10.31			

*Erreur
analytique* ± 0.5 ± 0.4 ± 0.8 ± 0.1 ± 0.2

ANNEXE B2 : DIAGRAMME DE PIPER

Échantillons prélevés par échantillonnage passif



Les profondeurs (m) sont indiquées dans le losange des anions et cations et la largeur des cercles est proportionnelle à la minéralisation de l'eau.

ANNEXE B3 : DONNÉES GAZ RARES

ÉCHANTILLONS GAZ

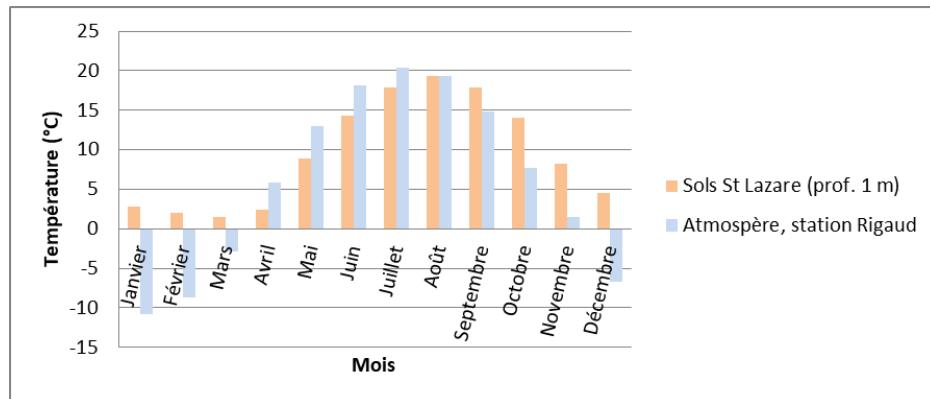
Lithologie	Localisation	Puits	Prof. (m)	Échantillon gaz (cc/ccSTP)				Erreur ccSTP/cc				T (°C) eau	α[-] Bunsen		H _i [·]		Eau souterraine (ccSTP/g)				Erreur ccSTP/g			
				⁴ He	³ He	²⁰ Ne	²² Ne	⁴ He	³ He	²⁰ Ne	²² Ne		He	Ne	He	Ne	⁴ He	³ He	²⁰ Ne	²² Ne	He	³ He	²⁰ Ne	²² Ne
Dolomie	Napierville	PO2	21	8.9E-06	1.4E-11	3.5E-05	3.4E-06	1.5E-09	1.3E-13	7.9E-09	5.2E-09	9.0	9.0E-03	1.1E-02	107.5	85.4	8.3E-08	1.3E-13	4.1E-07	4.0E-08	1.4E-11	1.2E-15	9.3E-11	6.1E-11
			35	2.6E-05	2.6E-11	4.0E-05	3.9E-06	3.1E-09	5.4E-13	2.1E-07	9.8E-09	8.7	9.0E-03	1.1E-02	107.5	85.3	2.4E-07	2.4E-13	4.7E-07	4.6E-08	2.9E-11	5.1E-15	2.5E-09	1.1E-10
			45	2.2E-05	2.1E-11	2.4E-05	2.4E-06	1.6E-09	6.3E-13	2.5E-09	9.5E-10	8.7	9.0E-03	1.1E-02	107.5	85.3	2.0E-07	1.9E-13	2.8E-07	2.8E-08	1.5E-11	5.9E-15	2.9E-11	1.1E-11
			70	3.1E-05	2.1E-11	3.0E-05	2.7E-06	8.1E-09	9.3E-13	4.6E-08	1.3E-09	8.6	9.0E-03	1.1E-02	107.5	85.2	2.9E-07	2.0E-13	3.6E-07	3.1E-08	7.5E-11	8.7E-15	5.4E-10	1.5E-11
			83	2.7E-05	1.0E-11	1.2E-05	1.2E-06	2.2E-09	1.4E-13	1.5E-08	1.0E-09	8.6	9.0E-03	1.1E-02	107.5	85.2	2.5E-07	9.4E-14	1.4E-07	1.4E-08	2.1E-11	1.3E-15	1.8E-10	1.2E-11
		P6	18	1.9E-01	1.6E-08	2.6E-05	2.7E-06	1.6E-05	4.2E-10	4.1E-08	9.6E-10	8.3	9.0E-03	1.1E-02	107.5	85.1	1.8E-03	1.5E-10	3.1E-07	3.1E-08	1.5E-07	3.9E-12	4.8E-10	1.1E-11
	Mirabel	Charles	10	1.0E-05	1.4E-11	2.7E-05	2.7E-06	2.6E-09	1.4E-13	1.0E-08	2.3E-09	9.9	9.0E-03	1.1E-02	107.5	85.8	9.4E-08	1.3E-13	3.1E-07	3.2E-08	3.0E-11	3.4E-15	4.1E-11	2.1E-11
Grès	St-Lazare	P11	79	8.7E-06	1.1E-11	2.0E-05	2.1E-06	1.4E-09	1.6E-13	4.9E-09	3.4E-09	8.3	9.0E-03	1.1E-02	107.5	85.1	8.1E-08	9.9E-14	2.4E-07	2.4E-08	6.8E-12	1.4E-15	3.1E-10	2.0E-11
			95	7.5E-06	9.4E-12	1.9E-05	1.9E-06	2.4E-09	2.4E-13	2.6E-09	1.3E-09	8.4	9.0E-03	1.1E-02	107.5	85.1	7.0E-08	8.8E-14	2.3E-07	2.3E-08	5.8E-12	2.3E-15	3.5E-10	8.2E-12
	Ormstown	Dumas 9	10	3.1E-04	7.2E-11	2.9E-05	2.8E-06	3.4E-08	2.5E-12	8.7E-09	6.8E-09	8.2	9.0E-03	1.1E-02	107.5	85.0	2.9E-06	6.7E-13	3.4E-07	3.4E-08	4.7E-10	1.0E-14	8.2E-11	5.5E-11
Calcaire	St-Roch	PO 2017	11	1.1E-05	2.2E-11	2.8E-05	2.7E-06	1.4E-09	3.4E-13	6.5E-09	5.1E-09	9.8	9.0E-03	1.1E-02	107.5	85.8	1.0E-07	2.1E-13	3.2E-07	3.2E-08	2.5E-11	2.0E-15	1.2E-10	2.7E-11

ÉCHANTILLONS EAU

Puits	Prof (m)	Eau souterraine (ccSTP/g)								Erreur (ccSTP/g)								
		⁴ He	³ He	²⁰ Ne	²² Ne	³⁶ Ar	⁴⁰ Ar	⁸⁴ Kr	¹³² Xe	⁴ He	³ He	²⁰ Ne	²² Ne	³⁶ Ar	⁴⁰ Ar	⁸⁴ Kr	¹³² Xe	
Châteauguay	mix	2.0E-7	1.6E-13	2.7E-7	2.8E-8	1.6E-6	5.0E-4			3.2E-9	9.3E-15	3.2E-9	3.6E-10	6.3E-8	1.1E-5			
Chateauguay	55	3.4E-7	3.4E-13	5.6E-7	5.7E-8	2.3E-6	6.7E-4	7.8E-8	4.9E-9	2.7E-9	6.5E-15	1.8E-9	2.0E-10	4.8E-8	1.8E-6	1.2E-9	9.4E-11	
Napierville PO2	mix	6.3E-8	9.3E-14	2.3E-7	2.4E-8	1.6E-6	4.7E-4	6.4E-8	4.3E-9	8.8E-10	5.6E-15	2.7E-9	3.1E-10	6.1E-8	1.0E-5	1.6E-9	1.2E-10	

ANNEXE B4 : TEMPERATURES SOLS ET ATMOSPHÈRE

Mois	Températures (°C)	
	Sols à Saint-Lazare, profondeur 1 m. (moyenne mensuelle 2015-2018) Station IRRES, Géotop-UQAM	Atmosphère, station de Rigaud. Normales climatiques Canada 1981-2010 (Environnement Canada)
Janvier	2.8	-10.8
Février	2.1	-8.7
Mars	1.4	-2.8
Avril	2.4	5.9
Mai	8.9	12.9
Juin	14.3	18.1
Juillet	17.9	20.4
Août	19.3	19.3
Septembre	17.8	14.8
Octobre	14.0	7.7
Novembre	8.3	1.5
Décembre	4.5	-6.6
Moyenne	9.5	6.0



Mois	Recharge (% mensuel) Projet PACES Vaudreuil-Soulanges 1989-2009	Pondération de la température avec saisonnalité recharge	
		Sols (Saint-Lazare) 2015-2018	Atmosphère (Rigaud) 1981-2010
Janvier	5%	0.1	-0.5
Février	3%	0.1	-0.3
Mars	11%	0.2	-0.3
Avril	18%	0.4	1.1
Mai	9%	0.8	1.2
Juin	8%	1.1	1.5
Juillet	2%	0.4	0.4
Août	3%	0.6	0.6
Septembre	7%	1.2	1.0
Octobre	15%	2.1	1.2
Novembre	11%	0.9	0.2
Décembre	8%	0.4	-0.5
Température (°C) moyenne annuelle		8.3	5.4

ANNEXE C

MODÉLISATION ET ESSAIS D'ÉCHANTILLONNAGES POUR LES GAZ ANTHROPIQUES TRACES (SF₆, CFC-11, CFC-12, CFC-113)

1. Introduction

Cette annexe concerne la modélisation physique, des essais en laboratoire et *in-situ* sur le développement d'échantilleurs passifs pour les gaz anthropiques traces en cours de développement au Géotop-UQAM. Ces derniers visent la datation séquentielle des masses d'eau « récentes » par le SF₆, CFC-11, CFC-12 et CFC-113 analysés au Géotop-UQAM. Ces essais sont accompagnés de l'échantillonnage *in-situ* des gaz rares, nécessaires pour la détermination de l'excès d'air afin de contraindre les âges SF₆/CFCs. La modélisation et l'échantillonnage passif direct des gaz est inédit pour les SF₆/CFCs, alors que celui pour les gaz rares a fait l'objet de travaux précédemment publiés (Garner et Solomon, 2009).

Ces travaux sont réalisés dans le cadre de partenariats industriels avec des consultants hydrogéologues. Ce faisant, le développement des échantilleurs passifs gazeux a principalement été motivé par le fait que la pose et la collecte d'échantilleurs passifs est relativement simple, et ne nécessite pas de matériel trop spécialisé. L'objectif anticipé étant de permettre un déploiement facilité en contexte industriel, même si le traitement analytique suivant la collecte d'échantillon reste une spécialité. En effet, compte tenu des concentrations extrêmement faibles pour les CFCs et le SF₆ dans les eaux souterraines (respectivement pmol/L et fmol/L), les procédures d'échantillonnage usuelles restent délicates pour éviter la pollution de l'échantillon

avec l'atmosphère contemporaine. En outre, des procédures d'extraction des gaz en laboratoire sont nécessaires pour traiter un échantillon d'eau prélevé de manière conventionnelle, ce qui ajoute potentiellement des difficultés techniques et augmente la marge d'erreur analytique. L'avantage pour l'échantillonnage direct des gaz est que l'échantillon peut être directement analysé dans le chromatographe, sans devoir dégazer l'échantillon d'eau.

Dans le cadre de l'investigation de la stratification verticale, l'utilisation d'échantilleurs passifs est particulièrement pertinente pour échantillonner les traceurs selon la profondeur dans les puits. En comparaison, la collecte d'échantillons d'eau profonds par pompage reste plus délicate et nécessite du matériel plus spécialisé, voire encombrant, ce qui limite cette pratique pour les sites d'accès difficiles ou quand les moyens matériels sont limités.

2. Méthodologie

2.1 Bases théoriques pour la conception d'échantilleurs passifs pour les gaz anthropiques trace : SF₆ et CFCs

2.1.1 Solubilité des gaz

Les concentrations de gaz dissous dans l'eau (C_{iw}^{eq}) sont en équilibre avec les concentrations atmosphériques (C_{ig}^{atm}) selon la solubilité des gaz. Les partitions gaz-eau peuvent être définies par des coefficients de volatilité adimensionnels (H_i , inverse du coefficient de solubilité), en exprimant toutes les concentrations dans les mêmes unités (Sander, 2015). Dans ces notations, les concentrations de gaz font référence à l'air sec. À la recharge, l'équilibre de solubilité entre l'eau et l'atmosphère est donné à l'équation 1, où (H_i^r) est le coefficient de volatilité à la température de la recharge.

$$C_{ig}^{atm} = H_i^r C_{iw}^{eq} \quad (1)$$

Les valeurs des coefficients de volatilité (thermo-dépendants) sont calculés à partir des coefficients de Bunsen (Équation 2) respectivement publiés par Warner & Weiss (1985), Bu & Warner (1995) et Bullister et al. (2002) et (R.F. Weiss, 1971) pour le CFC-11 et le CFC-12, le CFC-113 et le SF₆.

$$H_i = \frac{T^{STP}}{\alpha T} \quad (2)$$

2.1.1.1 Modèles d'excès d'air

L'excès d'air (EA) dans les eaux souterraines apparaît de manière généralisée dans la plupart des environnements (Chambers et al., 2018). Les processus reliés à l'excès d'air dans les eaux souterraines et les eaux de surface sont décrits en détail par (R. Kipfer et al., 2002). L'excès d'air implique que les concentrations de gaz dissous dans les eaux souterraines (C_{iw}) sont plus élevées par rapport à celles à l'équilibre avec l'atmosphère (C_{iw}^{eq}). Le dégazage peut aussi modifier les concentrations gazeuses dans l'eau (J Lippmann et al., 2003). Il est induit par la production de gaz dans le sous-sol (c.-à-d. CO₂, N₂, CH₄), ce qui tend à réduire la concentration de gaz d'origine atmosphérique dans les eaux souterraines. L'excès d'air et/ou le dégazage peuvent être décrits par plusieurs modèles, tels que le modèle UA (excès d'air non fractionné, Andrews & Lee (1979)); le modèle PR (rééquilibration partielle, Stute et al. (1995)); le modèle PD (dégazage partiel, Stute (1989)) et le modèle CE (équilibration en système fermé, Aeschbach-Hertig et al. (2008)). Le modèle CE est très utilisé dans la littérature existante et sa polyvalence permet de modéliser autant les processus d'excès d'air que le dégazage, ce qui présente un intérêt par rapport aux autres modèles. Ainsi, le modèle CE est pris en référence dans ces travaux pour les calculs de solubilité.

Le modèle CE considère que l'excès d'air à la recharge peut se dissoudre que partiellement, laissant une phase gazeuse résiduelle dans les eaux souterraines qui

conduit à un nouvel équilibre entre l'eau et les bulles restantes. L'expression de la concentration en gaz dissous dans l'eau à l'équilibre avec une phase gazeuse pour le modèle CE est donnée à l'équation 3, qui considère le coefficient de solubilité à la température de la recharge (H_i^r). A est le rapport volumique initial de l'excès de gaz dans l'eau (V_a/V_w) et B est le rapport volumique gazeux final (V_b/V_w). Le modèle CE est généralement exprimé en introduisant le facteur de fractionnement ($F = B/A$, équation 3).

$$C_{iw} = C_{iw}^{eq} \frac{1+AH_i^r}{1+BH_i^r} = C_{iw}^{eq} \frac{1+AH_i^r}{1+F AH_i^r} \quad (3)$$

Si le volume de l'excès d'air est partiellement dissous ($B < A$), le paramètre de fractionnement $F = B/A < 1$. Les paramètres $A>0$ et $B=0$ ($F=0$) dans le modèle CE sont équivalents au modèle d'excès d'air non fractionné, soit la dissolution totale des gaz. La situation de dégazage se produit si le volume final des bulles dépasse celui de l'air initialement piégé ($B > A$, et $F > 1$). La situation de dégazage pur (production de gaz en subsurface, sans excès d'air à la recharge) peut également être modélisée avec $A=0$ et $B>0$.

2.1.1.2 Datation CFCs et SF₆ depuis l'utilisation des échantillonneurs passifs gazeux

Les concentrations en gaz collectées dans l'échantillonneur (C_{ig}^S) sont traitées en tenant compte des différents processus mis en jeu pour l'eau souterraine, soit l'équilibre avec l'atmosphère à la recharge, l'excès d'air (ou dégazage) et l'équilibration entre l'eau souterraine et l'échantillonneur (c.-à-d. schémas (a) à (c), Figure 1).

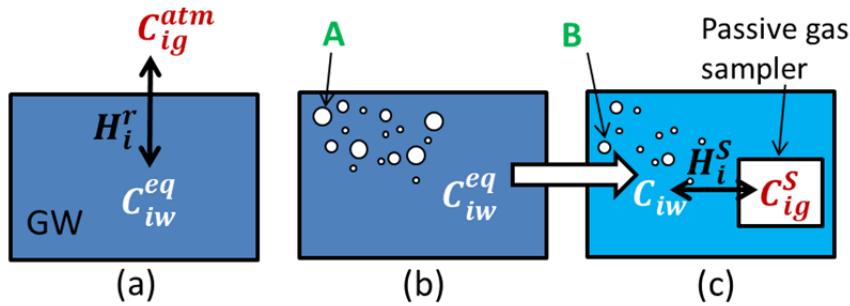


Figure 1: (a) Équilibre de solubilité avec l'atmosphère lors de la recharge; (b) excès d'air dans l'aquifère; (c) équilibrage entre l'eau souterraine et de l'échantillonneur passif pour les gaz

Les concentrations en gaz dissous dans l'eau (C_{iw}) sont calculables à partir de celles collectées depuis les échantillonneurs (C_{ig}^S) selon la volatilité (H_i^S) à la température donnée dans le puits (Équation 4).

$$C_{iw} = \frac{C_{ig}^S}{H_i^S} \quad (4)$$

Le but pour datation avec le SF₆ et les CFC_S étant finalement d'estimer la concentration atmosphérique des gaz au moment de la recharge, et de comparer ces résultats aux chroniques atmosphériques disponibles. Les chroniques atmosphériques disponibles sont exprimées en ratio de gaz anthropique (x_i^{atm}), considérant de l'air sec. Les concentrations atmosphériques (C_i^{atm}) peuvent être exprimés selon la loi des gaz parfaits en fonction en des ratios atmosphériques sur base d'air sec, de la température moyenne annuelle de l'atmosphère (T^{atm}), de la pression atmosphérique totale (P^{atm}) et de la pression de vapeur d'eau ($p_{H_2O}^{atm}$) (équation 5). La pression totale atmosphérique moyenne peut être estimée à l'aide de la valeur de l'altitude (Équation 6), et la pression de vapeur d'eau grâce à la température moyenne annuelle de l'atmosphère (Équation 7) depuis les relations publiées dans la littérature (R. F. Weiss & Price, 1980).

$$C_{ig}^{atm} = \frac{x_i^{atm}(P^{atm} - p_{H_2O}^{atm})}{R T^{atm}} \quad (5)$$

$$\ln P^{atm}[Pa] = -\frac{H}{8300} \quad (6)$$

$$\ln p_{H_2O}^{atm}[Pa] = 24.4543 - 67.4509 \left(\frac{100}{T}\right) - 4.8489 \ln\left(\frac{T}{100}\right) \quad (7)$$

En combinant les équations 3, 5 et 5, l'expression des ratios atmosphériques (x_i^{atm}) obtenus à partir des échantillonneurs passifs (C_{ig}^S) est donnée à l'équation 8. Cette dernière permet de déterminer l'âge apparent pour chaque gaz anthropique trace (SF₆, CFC-11, CFC-12 et CFC-113) en comparant les ratios calculés avec ceux des chroniques atmosphériques.

$$x_i^{atm} = C_{ig}^S \frac{H_i^r}{H_i^S} \frac{1+FAH_i^r}{1+AH_i^r} \frac{R T^{atm}}{P^{atm} - p_{H_2O}^{atm}} \quad (8)$$

2.1.1.3 Travaux existants concernant les échantillonneurs passifs pour les gaz

Les échantillonneurs passifs pour les gaz ont déjà été décrits dans la littérature (William E. Sanford et al., 1996; Gardner & Solomon, 2009) pour des applications dédiées aux gaz rares. Sanford et al. (1996) ont notamment fourni une expression analytique concernant la cinétique d'équilibration d'échantillonneurs passifs pour les gaz (Équation 9).

$$C_{ig}^S = H_i C_{iw}^{eq} \left(1 - \exp \left[\frac{-D_{im}^* A t}{V^S e} \right] \right) \quad (9)$$

Avec:

C_{ig}^S (mol L⁻³) Concentration à l'intérieur de l'échantillonneur au cours du temps

C_{iw}^{eq} (mol L⁻³) Concentration des gaz dissous à l'équilibre avec l'atmosphère

H_i (-) Coefficient de solubilité

D_{im}^* (L²T⁻¹) Coefficient de diffusion moléculaire du gaz à travers la membrane

A^S (L²) Surface de la membrane exposée à l'eau

V^S (L³) Volume interne de l'échantillonneur

e (L) Épaisseur de la membrane

t (T) Durée de l'équilibration

L'échantillonneur gaz décrit par Gardner et Solomon (2009) se compose d'un tube en cuivre, d'une membrane perméable aux gaz, ainsi que d'un système de vannes et de piston contrôlés depuis la surface permettant de mettre l'échantillonneur en position d'échange ou de le fermer. Pour cet échantillonneur comportant volume et longueur réduite de tube (0.6 ml, 1 cm), les auteurs ont considéré que la cinétique d'équilibre était entièrement contrôlée par le transport moléculaire du gaz à travers la membrane, et en considérant une concentration homogène dans l'échantillonneur (non limitée par la diffusion moléculaire à l'intérieur même du tube). Les auteurs préconisaient de mesurer la pression totale des gaz dans l'échantillonneur au moment de l'analyse en laboratoire et /ou la mesure de la pression totale en gaz dissous *in situ* à l'aide d'une sonde insérable dans le puits.

2.2 Matériel et calibration

2.2.1 Échantillonneurs passifs pour les gaz anthropiques

Les échantillonneurs testés sont constitués de tubes de cuivre dont les extrémités sont équipées de membranes en silicone, permettant la diffusion des gaz dissous dans l'eau vers l'intérieur du tube (Figure 2). Des spirales en métal rigides sont placées à l'intérieur des membranes silicone pour éviter qu'ils ne s'aplatissent sous l'effet de la pression lorsque les échantillons sont placés en profondeur dans les puits. Ceci permet de conserver la surface d'échange nécessaire pour la diffusion moléculaire. Les différents gabarits testés permettent la collecte de volumes plus ou moins importants, permettant d'augmenter la résolution de la mesure, mais pouvant augmenter le temps d'équilibration nécessaire.



Figure 2 : Échantillonneurs passifs pour les CFCs/SF6 développés au laboratoire de géochimie des ressources en eau du GEOTOP-UQAM

2.2.2 Circuit d'analyse et calibration du chromatographe gaz

Le SF₆, CFC-11, CFC-12 et CFC-113 ont été analysés par chromatographie gaz à capture d'électrons. Les intrants gazeux en amont du chromatographe sont réglés avec un contrôleur automatisé permettant de sélectionner et de réguler les gaz standard, les gaz vecteurs, ainsi que les échantillons en tube à analyser. L'appareil est équipé d'un régulateur de débit massique (contrôle en durée et débit) en amont du chromatographe.

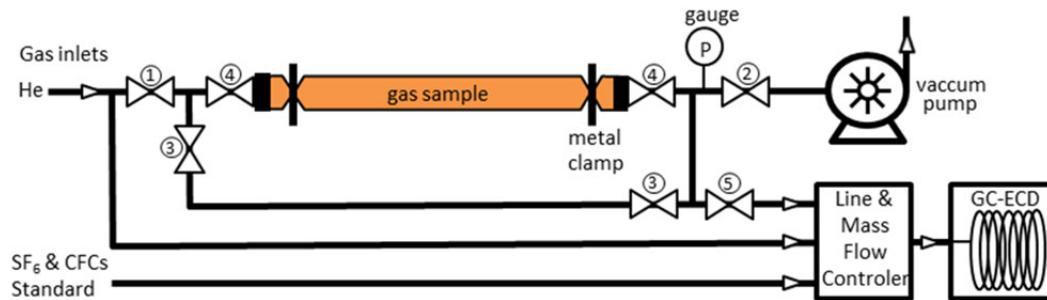


Figure 3 : Échantillonneurs passifs pour les CFCs/SF6 développés au laboratoire de géochimie des ressources en eau du GEOTOP-UQAM

L'étalonnage du chromatographe été effectué grâce à un standard de la *National Oceanic and Atmospheric Administration, USA* (Concentrations SF₆=2,06 ±0,03 ppt ; CFC-11=310,3 ±1,0 ppt ; CFC-12=312,6 ±1,1 ppt et CFC-113=103,6 ±0,5 ppt). Le résultat de l'étalonnage est donné à la Figure 4, obtenu par l'injection et l'analyse d'une quantité croissante de gaz depuis la ligne de standard (Figure 3).

Des essais complémentaires ont été réalisés en remplissant des tubes de cuivre préremplis avec le gaz standard, puis d'en analyser le contenu. Selon l'analyse de six échantillons, les rendements observés ont été de 92 ±3% pour le SF₆, 87 ±12% pour le CFC-12, 118 ±14% pour le CFC-11 et de 268 ±76% pour le CFC-113. Les rendements supérieurs à 100 % étant théoriquement impossibles (c.-à-d. pour CFC-11 et CFC-113) le rendement pour l'analyse des tubes remplis de gaz a donc été fixé à 100%, ce qui revient à négliger les pertes pouvant subvenir dans le circuit et lors de la procédure d'analyse des tubes.

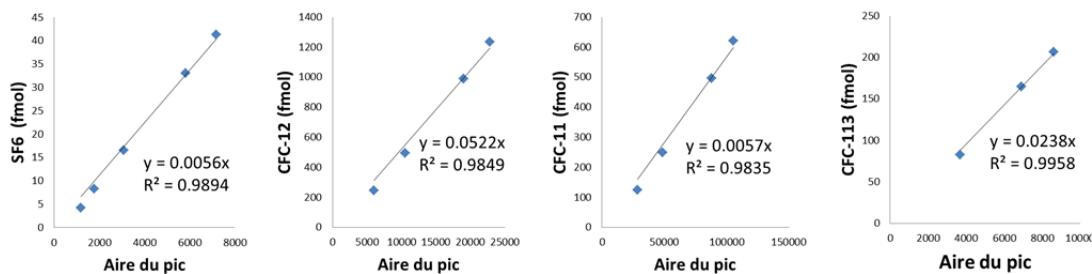


Figure 4 : Résultats de calibration du chromatographe pour le SF₆ et les CFCs

2.3 Essais d'équilibrations en conditions contrôlées

Des tests ont été effectués pour déterminer la cinétique d'équilibration des échantilleurs passifs. La connaissance de la durée nécessaire pour atteindre l'équilibre est particulièrement importante pour ajuster la mise en œuvre *in situ* des échantilleurs et acquérir les concentrations de gaz dissous (SF₆ et CFCs) pour la datation des eaux souterraines. Les tests d'équilibration combinés à la modélisation

numérique permettent de déduire la perméabilité de la membrane silicone vis-à-vis des gaz.

Avant les tests d'équilibration dans l'eau, les échantillonneurs ont été placés pendant 48 heures dans une étuve à 75 °C afin de désorber le SF₆ et les CFCs des membranes silicone et des tubes en cuivre. Dès la sortie de l'étuve, les échantillonneurs ont été vidangés et remplis avec de l'hélium pur, avant scellement des extrémités des membranes. Les échantillonneurs ont ensuite été directement immersés dans des bacs de 120 L remplis d'eau. L'eau des bacs a été maintenue ventilée à l'aide de pompes à air diffusant des microbulles d'air de manière à ce que l'eau soit en équilibre avec l'atmosphère ambiante (Figure 5). L'aération des bacs a été effectuée trois jours avant le début des essais d'équilibration dans le but d'atteindre des concentrations en gaz dissous à l'équilibre avec l'atmosphère.

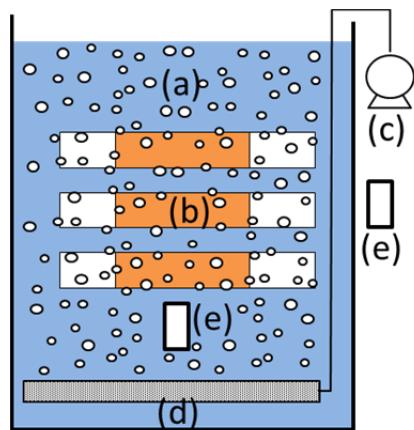


Figure 5 : Schéma de l'installation du test de rééquilibration des échantillonneurs passifs pour les gaz en conditions contrôlées (a) bac de 120 L; (b) échantillonneur gaz pré remplis d'Hélium pur; (c) pompe à air; (d) diffuseur de microbulles; (e) sondes de température

Les tests d'équilibration ont été effectués sur une période de 15 jours. Au cours de ces tests, les températures de l'eau et de l'air ambiant ont été suivies toutes les heures à l'aide de sondes enregistreuses. Des échantillonneurs passifs pour les gaz ont été collectés en doublons à intervalle régulier (Figure 8). Dès leur collecte, les tubes en

cuivre ont été scellés à froid à l'aide de mâchoires en métal (Figure 2). Des échantillons de contrôle ont également été prélevés et comprenaient 0,5 L d'eau dans des bouteilles en acier inoxydable, et 0,5 L d'air ambiant avec des sacs en Tedlar. Cependant, les résultats de l'analyse du SF₆ et des CFCs dans l'eau ne sont pas disponibles.

2.4 Modélisation physique des échantillonneurs passifs

La modélisation physique des échantillonneurs pour les gaz suit trois objectifs principaux :

- modéliser la cinétique de rééquilibration des échantillonneurs gaz, et d'estimer quel processus est limitant entre la perméabilité de la membrane et la diffusion moléculaire des gaz à l'intérieur de l'échantillonneur;
- modéliser les échantillonneurs testés en laboratoire, et pouvoir déterminer les coefficients de perméabilité des membranes aux gaz anthropiques. Les coefficients de perméabilité de la membrane aux gaz sont les seules inconnues dans le modèle physique;
- pouvoir modéliser différentes géométries d'échantillonneurs (longueur, volume des tubes et des membranes) et sélectionner celles correspondant le mieux aux contraintes d'applications *in situ* (c.-à-d. temps de rééquilibration, volume requis).

La cinétique d'équilibration de l'échantillonneur est déterminée par le transport moléculaire de chaque gaz à travers la membrane de silicium semi-perméable, ainsi que par la diffusion des gaz eux-mêmes à l'intérieur de l'échantillonneur (Figure 7). Dans la conception précédemment publiée pour les gaz rares (Garner et Solomon, 2009), les auteurs ont supposé que les concentrations étaient homogènes dans l'échantillonneur tout au long de l'équilibration vu la longueur réduite des tubes (1cm). Cette hypothèse n'est peut-être pas valide lorsque la longueur des tubes augmente car

la diffusion des gaz dans l'échantillonneur peut devenir un facteur limitant pour la durée de l'équilibration.

C'est pourquoi un modèle distribué discrétré est proposé pour modéliser la concentration transitoire des gaz pendant l'équilibration dans le tube d'échantillonnage. Cela permet d'évaluer la cinétique du transport moléculaire à travers la membrane ainsi qu'à l'intérieur des échantillonneurs. La conception actuelle des échantillonneurs de gaz SF₆ et CFCs consiste en un tube de cuivre équipé de membranes en silicium à chacune de ses extrémités (Figure 2). Le flux de gaz migrant dans l'échantillonneur est déterminé par la perméabilité de la membrane. Une fois à l'intérieur de l'échantillonneur, la diffusion moléculaire contrôle le transport du gaz le long du tube, menant à l'homogénéisation du gaz à l'intérieur de l'échantillonneur. Avec une durée d'exposition suffisante, la concentration de gaz à l'intérieur de l'échantillonneur (C_i) s'équilibre avec la concentration de gaz dissous de l'eau souterraine (C_{iw}) dans laquelle l'échantillonneur est placé, selon l'équilibre de solubilité à température donnée (équation 10) incluant l'excès d'air, le cas échéant (Figure 6).

$$C_i = H_i^S C_{iw} \quad (10)$$

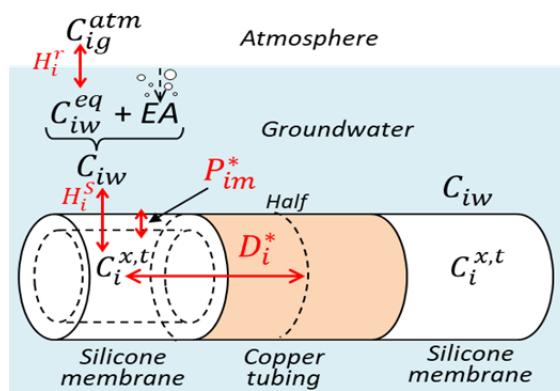


Figure 6 : Processus physiques impliqués pour l'échantillonnage passif des gaz dissous dans l'eau : (a) équilibres des concentrations gaz/eau déterminés par le coefficient de solubilité (H_i) et l'excès d'air (EA), (b) cinétique d'équilibration de l'échantillonneur déterminée par la perméabilité de la membrane de silicium (P_{im}^*) et de la diffusion moléculaire du gaz à l'intérieur du tube (D_i^*)

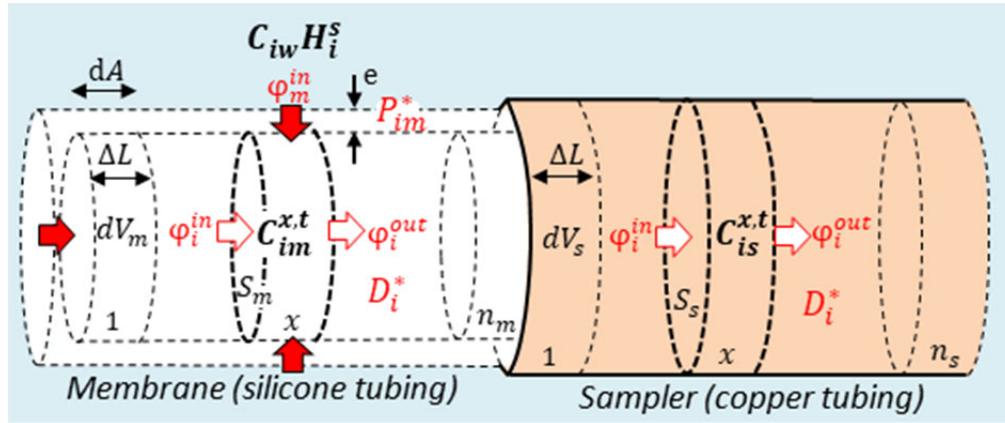


Figure 7 : Modélisation discrétisée des échantillonneurs passifs pour les gaz

Dès que l'échantillonneur est placé dans l'eau, la concentration de gaz à l'intérieur de l'échantillonneur ($C_i^{x,t}$) commence à s'équilibrer vers la concentration de gaz dissous dans l'eau ($H_i C_{iw}$), qui est considérée comme constante en supposant un flux d'eau illimité autour de l'échantillonneur. Le transport de gaz par diffusion moléculaire est actif chaque fois qu'il y a un gradient de concentration entre l'extérieur et l'intérieur de l'échantillonneur. La concentration des gaz dans la tube est modélisée en discrétilisant le volume de l'échantillonneur en volumes élémentaires (dV), ainsi qu'en discrétilisant la durée de l'équilibration sur des petits pas de temps (Δt) (Figure 7). La moitié de l'échantillonneur est modélisée pour représenter le comportement de l'ensemble de l'échantillonneur, car les deux moitiés sont symétriques et se comportent physiquement de manière identique.

L'expression de la concentration de chaque gaz dans le volume élémentaire (dV) au moment (t) et à la position longitudinale (x) est donnée à l'équation 11. Celle-ci est définie par la concentration de gaz déjà présent dans l'échantillonneur ($t-1$), plus l'accumulation (ou la perte) de gaz dû aux flux de diffusion à chaque pas de temps (Δt). Le flux de gaz à travers la membrane dépend de la perméabilité du silicium. Le taux de perméation est différent pour chaque gaz et dépend de la solubilité et de la diffusion du gaz dans la membrane (Musy, 2018). Un gaz transporté à travers un polymère non poreux se dissout d'abord dans la masse, puis migre à travers ce dernier

par diffusion, et se désorbe finalement de l'autre côté pour la membrane (H. Zhang & Cloud, 2006; Sanders et al., 2013). Le coefficient de perméabilité de la membrane (P_{im}^*) peut alors être défini par la solubilité sans dimension du gaz dans le silicone multipliée par le coefficient de diffusion moléculaire du gaz dans la membrane. L'expression analytique du flux de gaz à travers la membrane est alors donnée par l'équation 12. Une fois que le transport à travers la membrane est initié, l'homogénéisation des concentrations de gaz sur la longueur dans l'échantillonneur dépend également de la diffusion moléculaire dans la phase gazeuse, et est modélisée comme le flux de gaz entrant (équation 13) et sortant (équation 14) du volume élémentaire de chaque échantillonneur (Figure 7). Les équations 11 à 14 peuvent être réarrangées ensemble pour obtenir l'expression transitoire distribuée de la concentration de chaque gaz ($C_i^{x,t}$) dans l'échantillonneur. Les coefficients A1, A2 et B (équations 15 à 17) sont définis pour alléger la lisibilité des équations suivantes. L'expression des concentrations de gaz dans la section des tubes silicone ($C_{im}^{x,t}$) est donnée à l'équation 18, et comprend la diffusion à travers la membrane et la diffusion moléculaire dans le tubage lui-même (figure 7). L'équation 19 est similaire à l'équation 18, mais elle prend en compte la condition limite à l'extrémité de la membrane, où une surface supplémentaire est exposée à l'eau. De même, l'équation 20 définit la condition limite à la frontière entre le silicone et le tube de cuivre. L'expression de la concentration dans la section du tube de cuivre ($C_{is}^{x,t}$) est donnée à l'équation 21, ne prend en compte que la diffusion moléculaire dans la phase gazeuse à l'intérieur du tube (Figure 7). L'équation 22 dérive de l'équation 21 et prend en compte la condition limite à la frontière entre les tubes en silicone et en cuivre. L'équation 23 définit la condition limite au centre du tube en cuivre où, par symétrie, il y a égalité des concentrations, de sorte qu'aucun flux de diffusion moléculaire n'est impliqué.

$$C_i^{x,t} = C_i^{x,t-1} + (\varphi_{im}^{in} + \varphi_i^{in} - \varphi_i^{out}) \frac{\Delta t}{dV} \quad (11)$$

$$\varphi_{im}^{in} = P_{im}^* dA \frac{C_{iw} H_i - C_i^{x,t}}{e} \quad (12)$$

$$\varphi_i^{in} = D_i^* S \frac{C_i^{x-1,t} - C_i^{x,t}}{\Delta L} \quad (13)$$

$$\varphi_i^{out} = D_i^* S \frac{C_i^{x,t} - C_i^{x+1,t}}{\Delta L} \quad (14)$$

$$A_1 = \frac{P_{im}^*(dA+S_m) \Delta t}{dV_m e} \quad (15)$$

$$A_2 = \frac{P_{im}^* dA \Delta t}{dV_m e} \quad (16)$$

$$B = \frac{D_i^* S_m \Delta t}{dV_m \Delta L} = \frac{D_i^* S_s \Delta t}{dV_s \Delta L} = \frac{D_i^* \Delta t}{\Delta L^2} \quad (17)$$

Portion membrane silicone :

$$x = [2, n_m[\quad C_{im}^{x,t} = \frac{C_{im}^{x,t-1} + A_2 C_{iw} H_i + B(C_{im}^{x+1,t} + C_{im}^{x-1,t})}{1+A_2+B} \quad (18)$$

$$C_{im}^{1,t} = \frac{C_{im}^{1,t-1} + A_1 C_{iw} H_i + B C_{im}^{2,t}}{1+A_1+B} \quad (19)$$

$$C_{im}^{n_m,t} = \frac{C_{im}^{n_m,t-1} + A_2 C_{iw} H_i + B(C_{is}^{1,t} + C_{im}^{n_m-1,t})}{1+A_2+B} \quad (20)$$

Portion tubage de cuivre :

$$x = [2, n_s[\quad C_{is}^{x,t} = \frac{C_{is}^{x,t-1} + B(C_{is}^{x-1,t} + C_{is}^{x+1,t})}{1+2B} \quad (21)$$

$$C_{is}^{1,t} = \frac{C_{is}^{1,t-1} + B(C_{im}^{n_m,t} + C_{is}^{2,t})}{1+2B} \quad (22)$$

$$C_{is}^{n_s,t} = \frac{C_{is}^{n_s,t-1} + B C_{is}^{n_s-1,t}}{1+B} \quad (23)$$

Avec:

$C_i^{x,t}$ (mol L⁻¹) concentration de gaz dans l'échantillonneur à la position x et au temps t
 $(C_{im}$ dans la section de la membrane de silicone et C_{is} dans la section du tube de cuivre)

φ_{im}^{in} (mol T⁻¹) flux de diffusion de gaz à travers la membrane de silicone

φ_i^{in} (mol T⁻¹) flux de diffusion de gaz dans le tube (entrant dans dV)

φ_i^{out} (mol T⁻¹) flux de diffusion de gaz dans le tube (sortant de dV)

$dV(L^3)$ Volume de gaz élémentaire dans les tubes (dV_m pour membrane silicone et dV_s dans le tube de cuivre)

Δt (T) pas de temps

dA (L²) surface d'un volume élémentaire de la membrane exposée à l'eau

S (L²) section interne de tube (S_m pour silicone et S_s pour cuivre)

ΔL (T) longueur d'un volume élémentaire

P_{im}^* (L² T⁻¹) coefficient de perméabilité moléculaire du silicone

D_i^* (L² T⁻¹) coefficient de diffusion moléculaire du gaz dans l'air

H_i (-) volatilité du gaz / eau à température donnée

C_{iw} (-) concentration en gaz dissous dans l'eau

3. Résultats

3.1 Essais d'équilibrations en conditions contrôlées

Différents essais en conditions contrôlées ont été réalisés au cours des années 2017, 2018 et 2019 avec différentes géométries d'échantillonneurs.

3.1.1 Essais d'équilibration pour le SF₆

Les résultats d'équilibration les plus prometteurs proviennent d'un essai réalisé en mai 2017 pour le SF₆. Pour ce dernier, les échantillonneurs gaz de petite dimension ont été utilisés (tubes de cuivre, diamètre 0.86 cm; membranes longueur 10 cm, épaisseur 0.8 mm). 17.6 mL de gaz ont ainsi été collectés avec le scellement d'une longueur de 30 cm de tube de cuivre. Les résultats pour le SF₆ sont portés à la Figure 8.

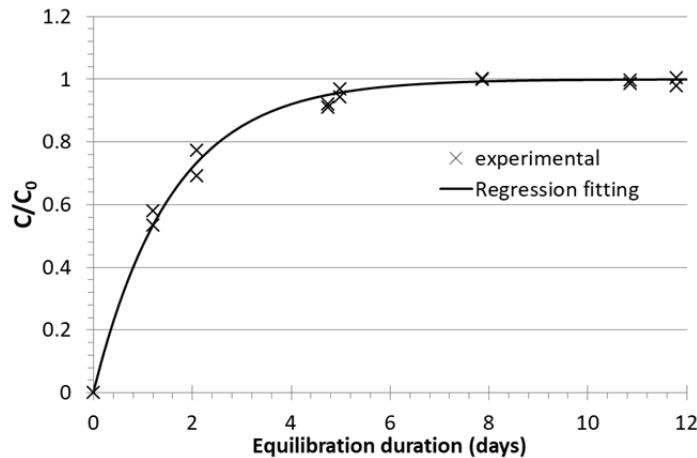


Figure 8 : Résultats du test d'équilibration en conditions contrôlées pour le SF₆, tubes 3/8'', mai 2017. C/C₀ représente le ratio en gaz dans l'échantillonneur par rapport à la concentration maximale mesurée

Les données expérimentales proviennent de l'analyse des échantillonneurs passifs qui ont été prélevés et fermés (protocole Annexe B) en doublon à différents intervalles de temps suite à leur immersion dans l'eau. La régression utilisée (Équation 24)

correspond à un fonction exponentielle croissante qui décrit la rééquilibration gazeuse d'un échantillonneur par diffusion à travers une membrane fine, telle que décrite par William E. Sanford et al. (1996). La fonction exponentielle représente adéquatement les données expérimentales ($r^2=0.998$) avec $\alpha = 0.63 \text{ j}^{-1}$.

$$\frac{C}{C_0} = 1 - e^{-\alpha t} \quad (24)$$

Selon ces essais, la concentration en SF₆ dans l'échantillonneur avec membrane fine (e=0.8 mm), se rééquilibre à 95% avec l'environnement dans lequel il est placé en 4.7 jours et à 99% en 7.4 jours. Le défaut pour cet essai encourageant pour le SF₆ c'est que les concentrations maximales mesurées (supposées à l'équilibre atmosphérique) dans les échantillonneurs sont de 450 fmol/L alors que la composition atmosphérique en 2017 est de l'ordre de 390 fmol/L ($\approx 9 \text{ pptv}$, USGS (2018)). Cette différence pourrait être due à un léger excès d'air dans l'eau du bac, mais ceci n'a pas été quantifié (c.-à-d. pas d'échantillonnage pour les gaz rares).

3.1.2 Autres essais

Les essais d'équilibration ont concerné le SF₆, mais également le CFC-12, CFC-11, et le CFC-113. Au total ce sont trois essais différents qui ont été réalisés en mai 2017, avril 2018 et avril 2019. Les essais de 2017 et 2018 ont concerné des tubes de petite dimension (idem section 3.1.1), tandis que le test de 2019 a été réalisé avec des échantillonneurs de plus grande dimension, soit avec des tubes de cuivre d'un diamètre de 1.5 cm, équipé de deux membranes à chaque extrémité (L=20 cm, épaisseur 1.6 mm), permettant de collecter un volume de gaz de 53 mL.

Les essais de 2018 ont été réalisés en comblant la partie interne de la membrane silicone avec des billes de silice ou avec des spirales. Ceci pour estimer si un effet de retard à la rééquilibration par diffusion pouvait être induit par l'encombrement avec des billes de verres. Également, les montages avec spirales incluaient deux longueurs

de membranes, soit 10 ou 20 cm afin de mesurer des temps d'équilibration plus rapides selon l'augmentation de la surface d'échange.

Malgré les précautions méthodologiques prises, les résultats des différents essais pour les années (2017 et 2018, Figure 9) reportent des lacunes en précision, résolution et en reproductibilité. Les concentrations maximales mesurées restent généralement éloignées les valeurs des concentrations atmosphériques.

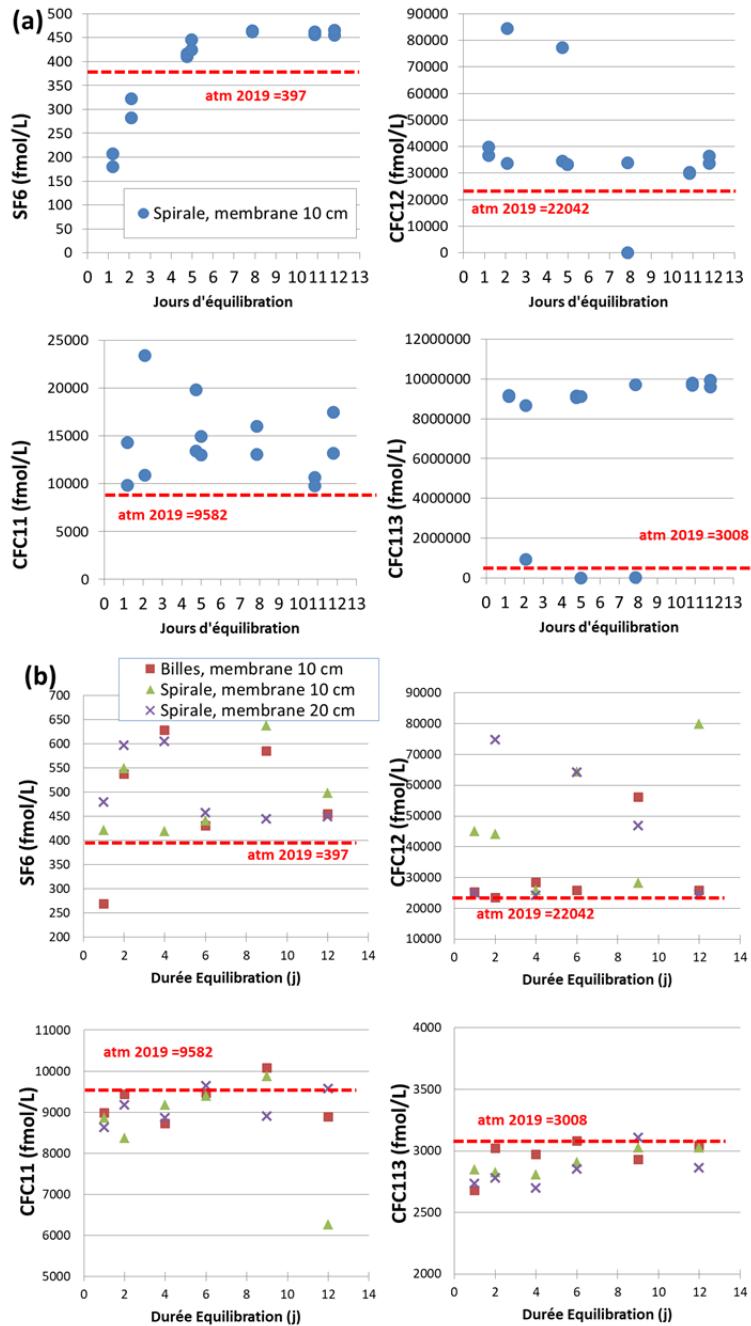


Figure 9 : Résultats de tests d'équilibration en laboratoire pour le SF₆ et les CFCs en 2017(a) et en 2018 (b).

La plupart des essais reportent difficilement des tendances d'équilibration (c.-à-d. atteinte d'un plateau après un laps de temps), et n'apparaissent pas reproductibles. Le chromatographe ayant présenté une très bonne reproductibilité des mesures de calibration à partir des standards en bouteille de gaz comprimé, les difficultés d'équilibration observées pourraient être plutôt dues à des conditions d'équilibration non concluantes dans le bac d'eau (défaut ou excès d'air possible) ou encore à des processus d'adsorption/désorption. Bien que passés à l'étuve pour dégazer, il reste également possible que des d'adsorption/désorption incontrôlés pour les SF₆ et les CFCs sur les parois du cuivre (et potentiellement présence de lubrifiants) ainsi que sur (et dans) la membrane silicone, aient pu engendrer des résultats inconsistants.

3.2 Dimensionnement par modélisation physique

Le Tableau 1 représente les dimensions des tubages et des longueurs de membrane utilisés pour quatre morphologies différentes. Le tableau 2 reporte les paramètres de modélisation. La valeur du coefficient de perméabilité pour la membrane ($P_{SF_6\ m}^*$) utilisé a été déterminée selon la modélisation #1 (Tableau 1) en reproduisant la cinétique d'équilibration mesurée en laboratoire (Figure 8). La solubilité pour le SF₆ (H_{SF_6}) dans l'eau est thermo-dépendante (effet de la salinité négligé) a été calculée depuis les expressions analytiques publiées par Bullister et al. (2002). Le coefficient de diffusion moléculaire du SF₆ dans la phase gazeuse, également thermo-dépendant a été calculé depuis les données publiées par Matsunaga et al. (2002).

Tableau 1 : Dimensions des échantillonneurs modélisés

Modelling	Membrane			Copper tubing		volume of gas sampled (ml) for 30 cm of copper tubing
	Lenght (cm)	ID (cm)	thickness (mm)	ID (cm)	length (cm)	
#1	10	0.64	0.8	0.864	40	17.6
#2	20					
#3	10	1.11	1.6	1.499	40	52.9
#4	20					

Tableau 2 : Paramètres de modélisation des échantillonneurs passifs gazeux

Physical properties					Numerical parameters		
T (°C)	D* _{SF6} (m ² /s)	P* _{SF6} (m ² /s)	H* _{SF6} (-)	C ^{eq} _{SF6 w} (fmol/L) atm. 2018	ΔL (cm)	Δt (day)	C ^S _{SF6 g} (fmol/L) t=0
8	8.9 10 ⁻⁷	2.3 10 ⁻¹¹	100.5	4.2	0.5	0.002	1 10 ⁻⁴

Les résultats de modélisation montrent la distribution des concentrations en SF₆ dans l'échantillonneur en régime transitoire (Figures 10 à 13 (a)), ainsi que l'évolution de la concentration moyenne de gaz dans l'échantillonneur en fonction du temps (Figures 10 à 13 (b)).

La Figure 10 présente les résultats de modélisation pour la morphologie de l'échantillonneur #1. Ce modèle d'échantillonneur a fait l'objet de tests d'équilibration en laboratoire et a également été utilisé sur le terrain. La modélisation a consisté à faire varier le coefficient de perméabilité de la membrane pour le SF₆ ($P_{SF6 m}^*$) jusqu'à ce que le modèle reproduise la cinétique d'équilibration mesurée en laboratoire (Figure 10 (b)). Une bonne correspondance entre le modèle et les données expérimentales pendant toute la durée de rééquilibration ($r^2=0.99$) a été obtenue pour une perméabilité de la membrane de $P_{SF6 m}^*=2.3 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$.

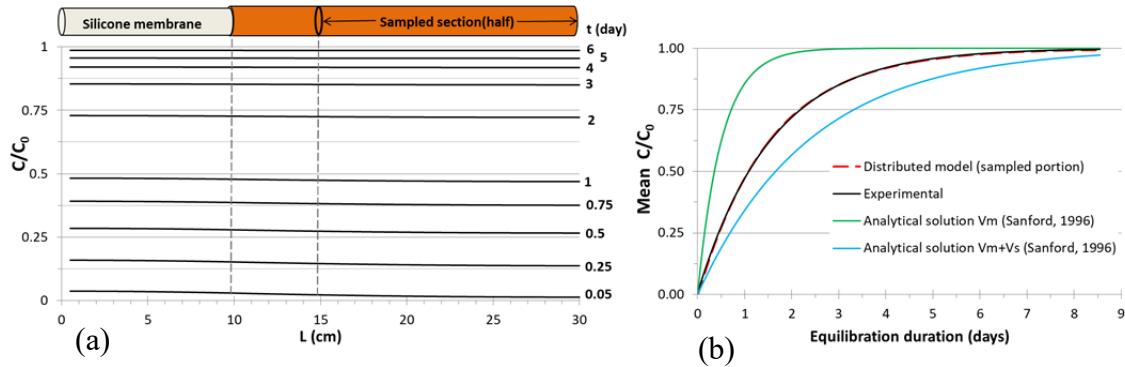


Figure 10 : Modélisation des concentrations en SF₆ pour l'échantillonneur #1 : (a) distribution spatio-temporelle ; (b) concentrations transitoires moyennes et comparaison avec les tests d'équilibration en laboratoire et la solution analytique de William E. Sanford et al. (1996)

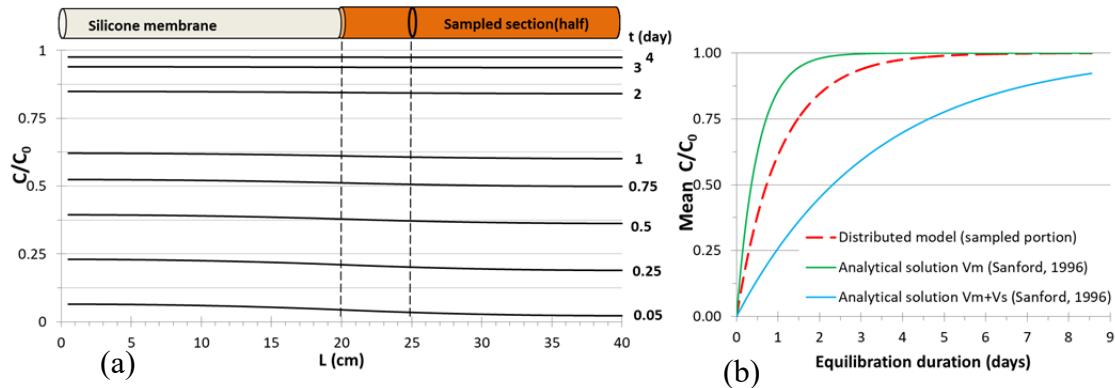


Figure 11 : Modélisation des concentrations en SF₆ pour l'échantillonneur #2 : (a) distribution spatio-temporelle ; (b) concentrations transitoires moyennes et comparaison avec la solution analytique de William E. Sanford et al. (1996)

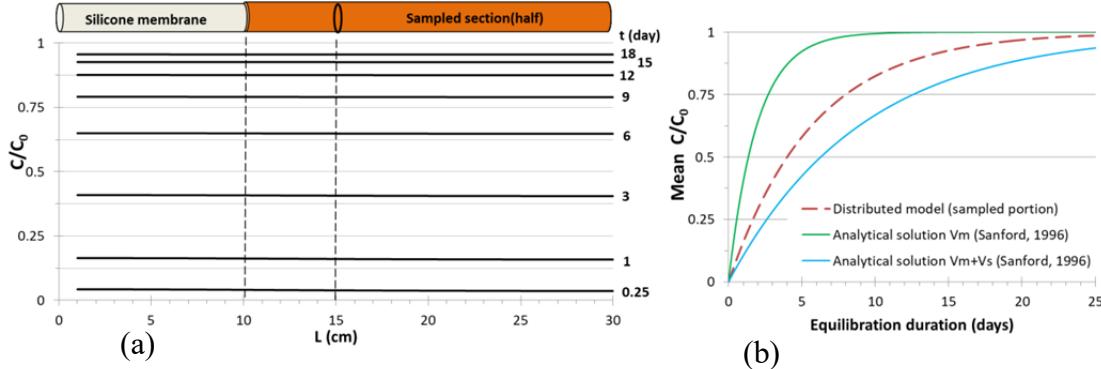


Figure 12 : Modélisation des concentrations en SF₆ pour l'échantillonneur #3 : (a) distribution spatio-temporelle ; (b) concentrations transitoires moyennes et comparaison avec la solution analytique de William E. Sanford et al. (1996)

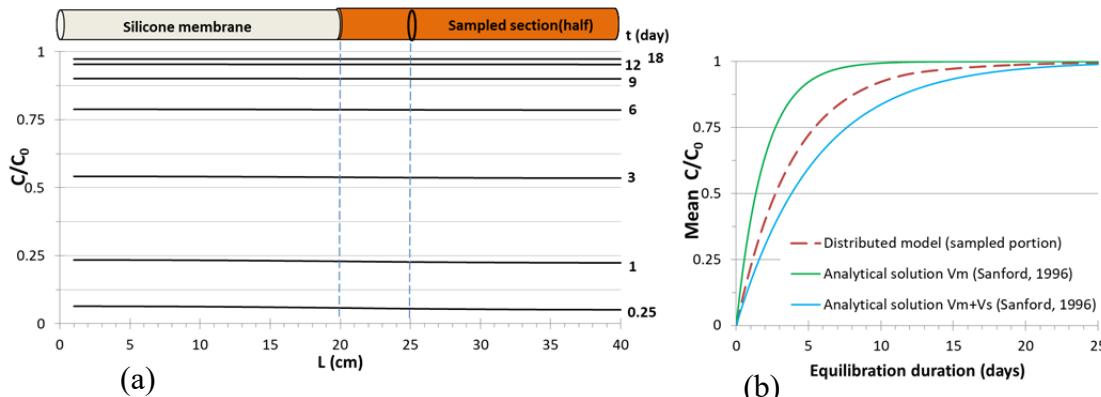


Figure 13 : Modélisation des concentrations en SF₆ pour l'échantillonneur #4 : (a) distribution spatio-temporelle ; (b) concentrations transitoires moyennes et comparaison avec la solution analytique de William E. Sanford et al. (1996)

Les résultats de modélisation transitoire distribuée (Figures 10 à 13 (a)) font apparaître que c'est le flux de gaz à travers la membrane qui est le processus limitant l'équilibration de l'échantillonneur (c.-à-d. atteinte de concentration gazeuse à l'équilibre avec l'eau). Le gradient de concentration dans les échantillonneurs en fonction du temps reste faible, indiquant une homogénéisation rapide du gaz dans les tubes. Ceci dit, les deux processus physiques demeurent distincts, surtout en début

d'équilibration. On trouve ainsi des concentrations sensiblement supérieures à l'intérieur de la membrane par rapport à la section du tubage de cuivre. Ceci indique que même si le transport du gaz par diffusion à l'intérieur du tube reste dominant, il n'est pas suffisamment rapide pour être totalement négligeable par rapport au flux de gaz à travers la membrane en début d'expérience. Sur ce dernier laps de temps, le gradient de concentration entre l'extérieur et l'intérieur du tube est le plus fort, et entre en compétition relative avec la diffusion de gaz dans le tube. Ceci est particulièrement visible pour les deux premiers essais (Figures 10 et 11 (a)) car la membrane plus fine permet des flux plus importants de gaz entre l'extérieur et l'intérieur de l'échantillonneur.

Par ailleurs, les concentrations simulées avec le modèle distribué sont intermédiaires entre concentrations calculées avec les solutions analytiques (Figures 10 à 13 (b)) considérant les volumes de gaz à l'intérieur des membranes (V_m) ou le volume total de l'échantillonneur ($V_m + V_s$). Ceci confirme qu'au final, les solutions analytiques précédentes n'auraient pas pu être utilisées pour le développement des présents échantillonneurs pour le SF₆ et les CFCs car l'effet de la longueur du tube, et la cinétique homogénéisation subséquente à l'intérieur de ce dernier n'est pas négligeable.

Selon ces processus, les temps d'équilibration des échantillonneurs sont plus rapides pour les deux premiers essais avec des membranes fines, ce d'autant plus en augmentant la surface d'échange membranaire. Pour les mêmes longueurs de tubage de cuivre, les temps d'équilibration sont trois fois plus rapides pour les échantillonneurs équipés de membranes fines (Tableau 3).

Tableau 3 : Temps d'équilibration des échantillonneurs passifs gazeux modélisés pour quatre dimensionnements différents

Modelling	Membrane		Copper tubing	Equilibration time (days)	
	Length (cm)	thickness (mm)	ID (cm)	$C/C_0 = 0.95$	$C/C_0 = 0.99$
#1	10	0.8	0.864	4.7	7.4
#2	20			3.2	5.1
#3	10	1.6	1.499	17.2	25.4
#4	20			11.7	20.7

La modélisation permet au final de dimensionner les échantillonneurs selon l'usage appréhendé sur le terrain. Les tubes à membranes fines se rééquilibrent plus rapidement, mais le volume de gaz collecté est trois fois inférieur au volume collecté pour les tubes de plus gros diamètre (Tableau 1). L'utilisation de tubes fins est ainsi préconisée lorsque le temps d'accès à un puits est limité. Quoique même dans ce cas, l'utilisation de tube de cuivre et de membranes plus longs permet d'augmenter le volume de gaz échantillonné selon des temps d'équilibration restant rapides. La collecte d'un volume plus important de gaz reste tout de même avantageuse dans le cas d'eaux relativement anciennes qui contiennent peu de SF₆ ou de CFCs (c.-à-d. recharges présumées de 1950 1980), car cela permet d'augmenter la résolution de la mesure. Dans ce cas, l'utilisation d'échantillonneurs à plus grand volume est préférable, mais nécessite des temps d'équilibration plus longs.

3.3 Résultats des investigations séquentielles *in situ*

La stratégie de placement des échantillonneurs gazeux selon la profondeur dans les puits en aquifère rocheux fracturé est similaire à celle pour les échantillonneurs liquides. Le détail du placement des échantillonneurs et des contraintes concernant les conditions de flux sont détaillés au chapitre IV.

3.3.1 Gaz rares

Cette section présente les essais réalisés pour l'échantillonnage des gaz rares par utilisation d'échantilleurs passifs par diffusion, de même confection que ceux utilisés pour les essais avec les gaz anthropiques trace ($\text{SF}_6/\text{CFC-12}$). Pour ces échantillonnages, les analyses ont concerné uniquement les isotopes du néon et de l'hélium. Les paramètres du modèle CE (A et F) ne peuvent ainsi pas être évalués car les gaz rares plus lourds (i.e. Ar, Kr, Xe) n'ont pas été analysés. En revanche, des essais pour contraindre calage des paramètres du modèle CE sont présentés ci-après en utilisant notamment des travaux spécifiques réalisés par Peeters et al. (2003) sur le comportement des isotopes du néon (^{20}Ne , ^{22}Ne) dans différents modèles d'excès d'air.

Les concentrations mesurées pour les échantillons gazeux (cc/ccSTP) ont été converties en concentrations à l'équilibre avec l'eau (ccSTP/g) suivant les équilibres de solubilité de ces gaz (Équation 4). Les solubilités pour l'hélium et le néon ont été calculées à partir des coefficients de Bunsen publiés par R.F. Weiss (1971). Un fractionnement de -2 ‰ est également considéré lors de la solubilisation du néon (Beyerle et al., 2000), soit donnant un ratio à l'équilibre avec l'atmosphère de $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}=9.78$. La température de recharge considérée pour les échantillons est de 4.3°C, température moyenne estimée d'après l'analyse de gaz rares échantillonnes de manière conventionnelle, incluant des gaz rares plus lourds (Chapitre III). L'échantillon Napierville PO2 mix a été collecté de manière conventionnelle et est présentés pour fins de comparaison avec les résultats pour les échantilleurs passifs dans ce qui suit.

Les excès d'air estimés par rapport à la concentration en néon à l'équilibre avec l'atmosphère s'échelonnent ainsi de $\Delta\text{Ne} = +14\%$ (Saint-Lazare 95 m) à +138 % (Napierville PO2 35 m) pour les échantillons collectés en mode passif (Tableau 4). L'échantillon pour le puits de Napierville PO2-83 présente un défaut en

néon ($\Delta Ne = -30\%$) suggérant des conditions de dégazage. Pour l'échantillon Napierville PO2-25, la concentration reportée en 4He est inférieur à la concentration en 4He à l'équilibre avec l'atmosphère, ce qui suggère une erreur d'ordre analytique. L'échantillon de Napierville P6 est marqué par un apport très important en hélium terrigène ($^4He = 1.8 \times 10^{-3}$ ccSTP/g >> $^4He_{eq+ea} = 8.6 \times 10^{-8}$ ccSTP/g), qui serait d'origine majoritairement crustale ($R = 8.2 \times 10^{-8}$, $R_{crust} \approx 1.7 \times 10^{-8}$).

Tableau 4 : Résultats d'analyse pour les isotopes du néon et de l'hélium collectés par échantillonnage passif gazeux et calcul des concentrations à l'équilibre dans l'eau

Localisation	Puits	Prof. (m)	T eau °C	Échantillonneur gaz (cc/cc)				Eau souterraine (ccSTP/g)				$^{20}Ne/^{22}Ne$	ΔNe (%)
				$4He$ 10^{-5}	$3He$ 10^{-11}	$20Ne$ 10^{-5}	$22Ne$ 10^{-6}	$4He$ 10^{-7}	$3He$ 10^{-13}	$20Ne$ 10^{-7}	$22Ne$ 10^{-8}		
Napierville	PO2	mix	8,7	-	-	-	-	0,6	0,9	2,3	2,4	9.779	17
		21	9,1	0,9	1,4	3,5	3,4	0,8	1,3	4,1	4,0	10,205	105
		35	8,7	2,6	2,6	4,0	3,9	2,4	2,4	4,7	4,6	10,255	137
		45	8,7	2,2	2,1	2,4	2,4	2,0	1,9	2,8	2,8	10,042	41
		70	8,6	3,1	2,1	3,0	2,7	2,9	2,0	3,6	3,1	11,472	79
		83	8,6	2,7	1,0	1,2	1,2	2,5	0,9	1,4	1,4	9,805	-30
	P6	18	8,3	19450	1590	2,6	2,7	18101	1480	3,1	3,1	9,962	56
Mirabel	Charles	10	9,9	1,0	1,4	2,7	2,7	0,9	1,3	3,1	3,2	9,889	57
Saint-Lazare	P11	79	8,3	0,9	1,1	2,0	2,1	0,8	1,0	2,4	2,4	9,902	20
		95	8,4	0,8	0,9	1,9	1,9	0,7	0,9	2,3	2,3	10,000	14
Ormstown	Dumas 9	10	6,8	30,7	7,2	2,9	2,8	28,6	6,7	3,4	3,4	10,177	72
St-Roch	PO 2017	11	9,7	1,1	2,2	2,8	2,7	1,0	2,1	3,2	3,2	10,183	63

Tous les échantillons gazeux ont des rapports isotopiques $^{20}Ne/^{22}Ne$ très au ratio à l'équilibre avec l'atmosphère (c.-à-d. $^{20}Ne/^{22}Ne \gg 9.78$, Tableau 4). Plusieurs processus peuvent induire une variation des ratios isotopiques du néon, et ce qui suit vise à discuter de ceux qui peuvent expliquer les ratios mesurés qui sont anormalement élevés. Les modèles basés sur la diffusion moléculaire, soit par rééquilibration avec l'atmosphère (modèle PR) ou rééquilibration de l'eau souterraine avec un gaz géogénique (modèle PD), permettent de prédire des ratios $^{20}Ne/^{22}Ne$ dans l'eau souterraine qui sont au maximum égaux au ratio à l'équilibre avec l'atmosphère ($^{20}Ne/^{22}Ne = 9.78$), voire inférieurs à ce dernier. Ceci car la diffusion favorise la perte privilégiée en isotope léger par rapport au plus lourds dans l'eau souterraine. Ces modèles d'excès d'air contrôlés par la diffusion dans l'aquifère sont d'emblée exclus pour expliquer les ratios mesurés car ils sont plus élevés que le ratio à l'équilibre. L'examen de l'effet de la solubilité sur le ratio $^{20}Ne/^{22}Ne$ est effectué selon le modèle

CE, le plus versatile pour représenter l'excès d'air fractionné ou non, ainsi que le dégazage. Ce modèle permet un enrichissement du ratio $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ au-delà du ratio à l'équilibre avec l'atmosphère ($^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne} = 9.78$), mais qui diminue avec le facteur de fractionnement (Figure 14). Le ratio maximal atteint tend théoriquement vers 9.8 (ratio atmosphérique) en considérant un excès d'air infini et un fractionnement nul, ce qui est équivalent au modèle d'excès d'air non fractionné (UA). Les ratios $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ mesurés dans les échantillons gazeux varient de 9.805 à 11.472, et ne peuvent donc pas être prédits par ni par un modèle UA, ni par le modèle CE, même en considérant des excès d'air extrêmes (Figure 14).

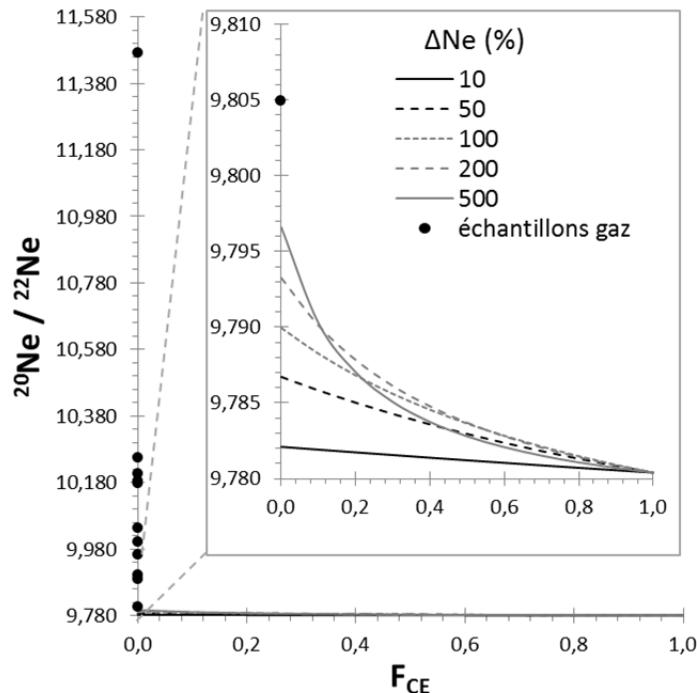


Figure 14 : Ratios $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ mesurées dans les échantillons passifs gazeux et comparaison aux ratios prédicts par le modèle CE en fonction de l'excès d'air et du facteur de fractionnement

Par ailleurs, l'échantillon d'eau prélevé pour le puits Napierville PO2 (échantillon «mix», Tableau 4), ne présente pas d'enrichissement (c.-à-d. $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne} = 9.779$), contrairement aux échantillons gazeux du même puits (Tableau 4). Cette différence peut suggérer que les ratios $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ élevés sont liés à l'utilisation des

échantillonneurs passifs pour les gaz. Comme la diffusion moléculaire est à la base du fonctionnement des échantillonneurs passif, un effet de masse intervient certainement pendant la rééquilibration, permettant un transport plus rapide du ^{20}Ne plus léger par rapport au ^{22}Ne plus lourd à travers la membrane silicone utilisée (c.-à-d. Diffusion moléculaire inversement proportionnelle à la masse molaire, Figure 15). Cependant, ce fractionnement, s'il est cinétique, ne devrait pas impacter les ratios mesurés si on se trouve à l'équilibre.

Si le fractionnement dû aux échantillonneurs passifs est visible pour les isotopes du néon, cet effet pourrait être visible pour les autres gaz, et serait de surcroît plus important pour l'hélium puisque l'écart des masses molaires est encore plus important (i.e. $D_{^{20}\text{Ne}}^*/D_{^{22}\text{Ne}}^* = 1.047$ et $D_{\text{He}}^*/D_{\text{Ne}}^* = 1.945$, calculs à 8.5°C depuis Hackbuch, 1979). L'effet de fractionnement appréhendé est un appauvrissement du ratio Ne/He (transport d'hélium plus rapide dans l'échantillonneur).

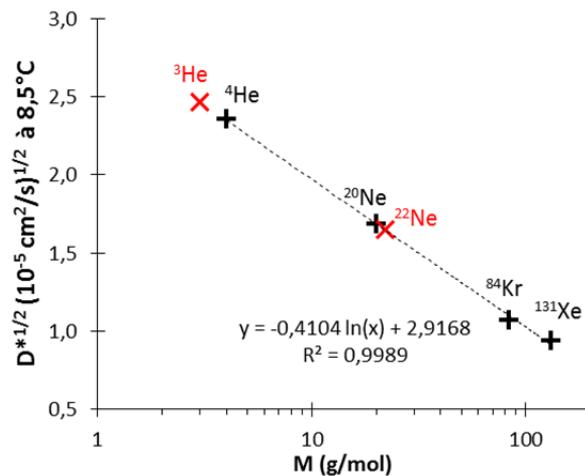


Figure 15 : Proportionnalité de la racine carrée des coefficients de diffusion moléculaires selon la masse molaire des gaz rares et de leurs isotopes (calculs depuis Hackbuch, 1979)

L'enrichissement $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ paraît augmenter avec l'excès d'air pour tous les échantillons gazeux, Napierville PO2-70 excepté ($^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne} = 11.472$). L'échantillon prélevé dans l'eau (Napierville PO2 mix) apparaît cependant plus éloigné de la

relation $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ - ΔNe (Figure 16 a). Cet effet serait cohérent avec un fractionnement cinétique de la membrane lors de la rééquilibration (incomplète) de l'échantillonneur. Les compositions collectées dans le puits de Napierville PO2 avec les échantillonneurs passifs en profondeur (gaz) sont nettement appauvries (Ne/He de 0.6 à 2.3, Figure 16 b) par rapport à celui collecté par échantillonnage classique de l'eau (Ne/He = 4 pour l'échantillon « mix », Figure 16 b). Comme les échantillons comparés proviennent du même puits, la différence de fractionnement observée pourrait être due aux échantillonneurs passifs. Le fractionnement n'est pas observé pour le ratio Ne/He en fonction de l'excès en néon (Figure 16 b), aucun des puits ne suivant de tendance à la baisse selon l'augmentation de l'excès d'air. Le discernement concernant l'influence de l'échantillonnage gaz est plus ambiguë avec l'hélium car différentes sources terrigène peuvent modifier le ratio Ne/He. Cependant, les échantillons sériés pour le même puits (Napierville PO2) suivent une tendance inverse à celle attendue en cas de fractionnement cinétique Ne/He avec excès d'air lors de la rééquilibration (Figure 16 b).

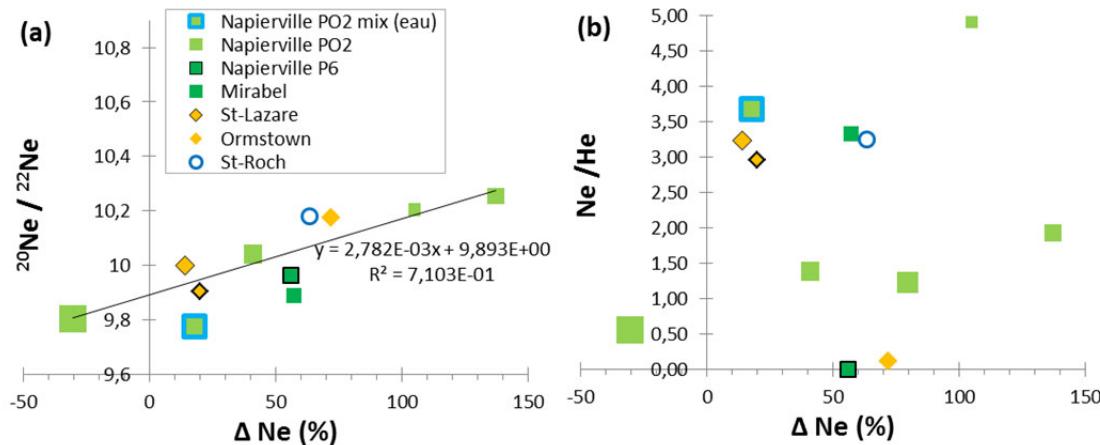


Figure 16 : représentation des ratios $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ (a) et Ne/He (b) selon l'excès de néon dans les échantillons passifs

Au final, seuls les résultats concernant les isotopes du néon suggéreraient clairement un effet cinétique fractionnant des échantillonneurs passifs. L'interprétation faite avec l'hélium est plus ambiguë, mais ne suggère pas un tel fractionnement. À cet effet, il

faut noter que les échantillonneurs passifs ont été placés plus de six jours dans les puits afin d'assurer la rééquilibration complète, anticipée pour l'échantillonnage du SF₆ (voir Section 3.1.1). Par comparaison, le temps de rééquilibration reporté l'échantillonnage passif des gaz rares est plutôt de l'ordre de la dizaine d'heures, tel que reporté par Garner et al. (2009) L'hypothèse de la rééquilibration incomplète des échantillonneurs sur une durée aussi longue que 6 jours vis-à-vis des gaz rares apparaît improbable. En l'état actuel de ces travaux, aucune autre explication physique plausible ne permet d'expliquer des ratios isotopiques aussi élevés pour le néon, ce qui peut suggérer une erreur d'ordre analytique. La vérification plus avancée du fractionnement potentiel des membranes pourrait être réalisée par l'analyse en doublon d'échantillons d'eau et échantillonnage passifs gazeux sur l'ensemble des gaz rares (c.-à-d. incluant également Ar, Kr, Xe). De tels échantillonnages ont été réalisés pour le puits de Châteauguay, mais les résultats en doublon pour les échantillonneurs gazeux ne sont pas encore disponibles.

3.3.2 Gaz anthropique trace SF₆, CFC-11, CFC-12, CFC-113

Les résultats pour l'échantillonnage des échantillonneurs passifs pour les gaz SF₆/CFCs sont disponibles pour les puits de Saint-Lazare et de Napierville (P02 et P6). La plupart des autres puits faisant l'objet de ces travaux d'investigation physique et hydrogéochimique (Châteauguay, Mirabel, Ormstown, St-Roch) ont été échantillonnés séquentiellement en mode passif, mais les résultats analytiques pour les gaz anthropique trace ne sont pas disponibles à la date de rédaction de ces travaux. Les résultats en datation SF₆/CFCs (Tableau 5) sont basés sur le calcul du ratio atmosphérique à partir de la mesure des échantillonneurs passifs pour les gaz (Équation 8). Les excès d'air considérés pour les calculs proviennent des résultats obtenus à partir des gaz rares (Section 3.3.1 ci-dessus).

Tableau 5 : Résultats échantillonnage gaz SF6, CFC-12, CFC-11, CFC-113 et ratio atmosphériques calculés

Site	Puits	Prof. (m)/ j pomp.	Tw (°C)	Aire du pic			Cig ^s (fmol/L)			À ccSTP/g	xi ^{atm} (pptv)					
				SF ₆	CFC- -12	CFC- -11	SF ₆	CFC- -12	CFC- -11		SF ₆	CFC- -12	CFC- -11	CFC- -113		
Saint-Lazare	P11	79	8,35	464	1294	9114	707	185	4800	3669	1194	2,7E-03	2,9	89,4	67,3	21,2
		79	8,35	467	1230	0	717	186	4563	-	1212	2,7E-03	3,0	85,0	-	21,6
		86	8,35	471	1178	11378	1002	188	4369	4580	1693	2,4E-03	3,1	81,5	84,1	30,2
		95	8,35	504	1006	4259	0	202	3743	1720	0	2,0E-03	3,4	70,0	31,6	0,0
		95	8,35	474	768	3749	0	191	2885	1529	0	2,0E-03	3,2	53,9	28,1	0,0
		103	8,35	503	583	3119	968	203	2190	1272	1658	2,4E-03	3,3	40,9	23,4	29,5
		103	8,35	513	667	3362	945	200	2420	1323	1561	2,4E-03	3,3	45,2	24,3	27,8
	P11 mix	atm	4	974	4974	22231	2250	390	18511	8977	3814	-	9,4	444,9	215,8	91,7
		-	8,35	517	0	0	0	206	-	-	-	2,4E-03	3,4	-	-	-
		-	8,35	462	0	0	0	181	-	-	-	2,4E-03	3,0	-	-	-
		-	8,35	489	0	0	0	198	-	-	-	2,4E-03	3,2	-	-	-
		-	8,35	534	0	0	0	217	-	-	-	2,4E-03	3,5	-	-	-
		-	8,35	539	566	6099	0	214	2086	2439	-	2,4E-03	3,5	38,9	44,8	-
		-	8,35	534	727	6849	0	211	2670	2730	-	2,4E-03	3,4	49,8	50,1	-
Napierville	P6	10	8,35	607	4256	19227	1458	241	15685	7689	2447	6,8E-03	3,0	283,8	139,5	42,5
		10	8,25	610	4303	19954	1491	245	16066	8085	2536	6,8E-03	3,0	292,0	147,5	44,3
		18	8,25	472	2815	23021	1097	193	10724	9516	1903	6,8E-03	2,4	194,9	173,6	33,3
		18	8,25	384	1433	9065	0	153	5299	3637	-	-	-	96,3	66,3	-
		18	8,25	485	2779	13000	1397	192	10206	5181	2338	6,8E-03	2,4	185,5	94,5	40,9
		18	8,25	0	1221	8951	385	-	4530	3603	650	6,8E-03	-	82,3	65,7	11,4
		27	8,25	128	873	9599	525	51	3228	3851	885	6,8E-03	0,6	58,7	70,2	15,5
		42	8,25	371	1600	9388	1100	146	5878	3742	1841	6,8E-03	1,8	106,9	68,3	32,2
	PO2	67	8,25	800	1620	12342	0	319	6009	4968	-	6,8E-03	4,0	109,2	90,6	-
		atm	14	1000	5367	19826	1561	400	19973	8006	2646	-	9,6	477,5	191,4	63,3
		25	9,05	30	171	259	26	12	634	104	44	1,3E-02	0,1	10,7	1,8	0,7
		25	9,05	29	216	253	0	12	809	103	-	1,3E-02	0,1	13,7	1,8	-
		35	8,7	37	94	188	17	14	345	75	28	1,6E-02	0,1	5,8	1,3	0,5
		35	8,7	16	77	150	18	6	286	60	30	1,6E-02	0,1	4,8	1,1	0,5
		45	8,71	46	102	235	23	19	385	96	40	5,2E-03	0,2	6,9	1,7	0,7
		70	8,64	264	913	2930	163	103	3311	1153	269	9,8E-03	1,1	58,1	20,5	4,5
		70	8,64	32	155	135	10	13	573	54	17	9,8E-03	0,1	10,1	1,0	0,3
		83	8,6	44	57	99	0	18	208	39	-	0,0E+00	0,3	3,9	0,7	-

Pour fin de contrôle, des échantillonneurs gaz ont été laissés en équilibration dans la partie émergée du tubage des puits de Saint-Lazare et de Napierville PO2 (échantillons « atm », Tableau 5). Lors d'essais de pompage de longue durée pour le puits de Saint-Lazare, des échantillonneurs gaz (c.-à-d. échantillons « P11 mix », Tableau 5) ont également été placés dans une chambre d'équilibration (Photo 22, Annexe D) alimentée en permanence par une dérivation du débit de pompage, et les échantillonneurs gaz ont été collectés à intervalles réguliers lors du pompage (intervalles indiqués au tableau 5).

La reproductibilité des échantillonnages passifs est évaluée par des mesures en doublons sur la même profondeur (Tableau 5). Les échantillons pour le puits de Saint-Lazare présentent une bonne reproductibilité pour tous les gaz. Ceux pour le mélange pompé au puits de Saint-Lazare sont également très reproductibles pour le SF₆, mais pas pour les CFCs, pour lesquels des non-détections surviennent. Pour les puits de Napierville (PO2 et P6), la reproductibilité des mesures n'est généralement pas observée, les concentrations mesurées variant parfois du simple au double (Tableau 5), impliquant des calculs d'âges variant de plusieurs dizaines d'années sur la même profondeur (Figure 17).

Les âges pour le SF₆, plus jeunes, seraient les plus fiables compte tenu des concentrations relativement importantes mesurées, qui entrent dans la gamme de datation habituelle pour ce traceur (c.-à-d. âges généralement inférieurs à 30 ans, sauf pour Napierville P6). Pour les CFCs, les concentrations mesurées sont plus faibles et placent ces résultats en limite d'application de la datation CFCs, les calculs reportant théoriquement des âges plus de 40 ans (Figure 17). Ces différences d'âge ne sont a priori pas fonction de la vitesse de rééquilibration par diffusion selon les différents gaz. Les coefficients de diffusion moléculaire sont inversement proportionnels à la masse molaire des molécules et les décalages d'âges observés ne suivent pas cet ordre

(c.-à-d. masses molaires respectives de 120, 137, 146 et 187 g/mol pour le CFC-12, CFC-11, SF₆ et CFC-113).

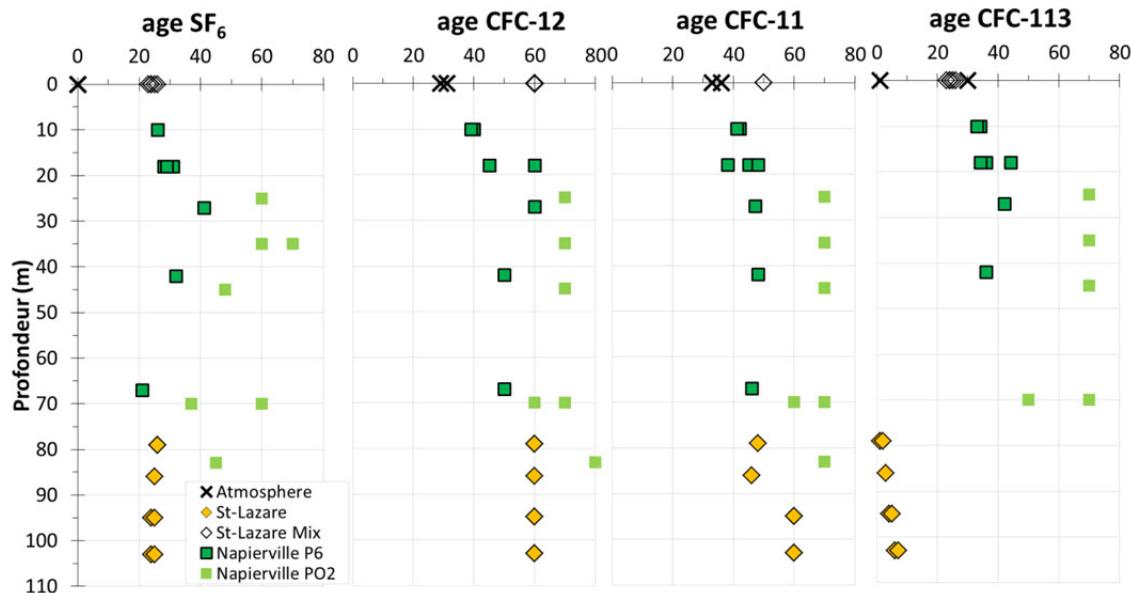


Figure 17 Âges apparents SF₆/CFCs (années) obtenus depuis l'échantillonnage séquentiel avec échantilleurs passifs pour les gaz

La mesure « atmosphérique » est bien reproduite pour le SF₆ (c.-à-d. ≈ 9.5 ppvt, concentration atmosphérique de 2019) tandis qu'elle ne l'est pas pour les CFCs (Figure 17). Ceci indique un défaut de la méthode et/ou que des problématiques analytiques sont vraisemblablement rencontrées pour la mesure des CFCs par échantillonnage direct des gaz. Ces mêmes problématiques de reproductibilité ont été observées pour les essais d'équilibration en laboratoire (Section 3.1.2).

Le décalage des âges apparents (écoulement piston) entre SF₆ plus « jeunes » et CFCs (Figure 17) pourraient être dû à des conditions de mélange/écoulement différents dans l'aquifère. Afin de vérifier si les conditions de mélange peuvent expliquer ces décalages, les compositions SF₆/CFC-12 sont simultanées représentées avec les compositions prédictes par différents modèles d'écoulements (Figure 18). Les compositions pour le puits de Saint-Lazare présentent à l'évidence un défaut du CFC-

12 par rapport au SF₆. Il est en effet théoriquement impossible d'obtenir des compositions SF₆/CFC-12 se situant à l'extérieur de l'enveloppe définie par les modèles extrêmes (c.-à-d. mélange binaire et écoulement piston). Ces compositions « appauvries » en CFC-12 par rapport au SF₆ suggèrent la dégradation du CFC-12 dans l'aquifère, à laquelle s'ajoute potentiellement un défaut de la méthode d'échantillonnage ou d'analyse vis-à-vis du CFC-12 pour les compositions atmosphériques (Figure 17). Pour les autres échantillons, les compositions combinées SF₆/CFC-12 suggèrent plutôt des eaux fortement mélangées pré-post 1960 (placés proche de la ligne mélange binaire ou vers le mélange exponentiel). Ces interprétations restent toutefois très incertaines car les mesures en doublon ne sont pas reproductibles, et que la mesure des CFCs pour les échantillonneurs laissés à l'air ne correspond pas à la composition de l'atmosphère contemporaine (2019).

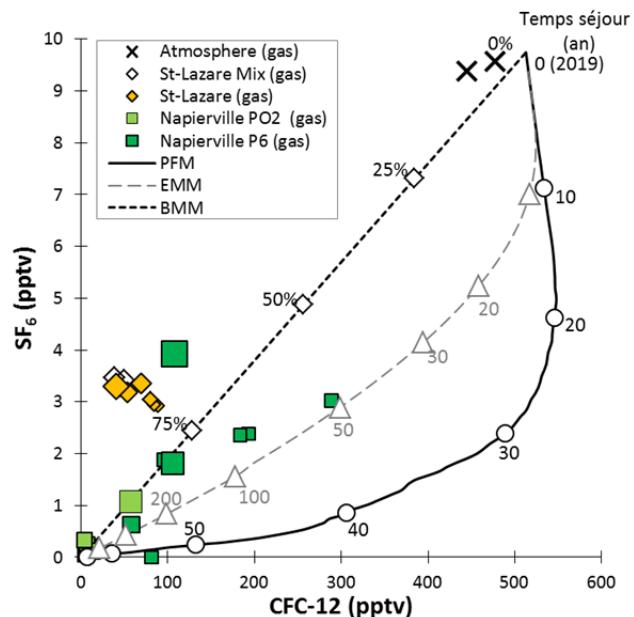


Figure 18 : Compositions SF₆/CFC-12 des échantillons comparées aux modèles de mélange binaire (BMM % d'eau pré 1960), écoulement exponentiel (EMM âges moyens) et écoulement piston (PFM âges en absence de mélange). La taille de la symbolique est proportionnelle à la profondeur des échantillons pour chaque puits.

4. Conclusions des essais

L'avantage anticipé de l'échantillonnage passif pour les gaz était de s'affranchir d'incertitudes habituellement liées à l'intégrité du cloisonnement utilisé dans le puits (c.-à-d. échantillonnage se sections cloisonnées par obturateurs), voire de s'affranchir de problèmes de microbulles d'air piégées dans les échantillons d'eau qui sont habituellement prélevés en pompage. Ce sont ces points qui ont principalement limité l'utilisation des traceurs d'âge, surtout en mode sériel, pour des sites d'expérimentation difficiles d'accès. Les échantilleurs passifs pour les gaz assurent également qu'aucune contamination par l'atmosphère ne puisse avoir lieu lors de leur relevé et peuvent être directement analysés en chromatographie gazeuse, sans devoir dégazer en laboratoire l'eau échantillonnée préalablement à l'analyse.

En l'état actuel des travaux, les résultats pour le SF₆ sont encourageants en termes de datation, bien que des problématiques demeurent sur la reproductibilité des mesures en conditions contrôlées de laboratoire ou lors des mesures *in-situ*. Concernant les CFCs, il n'est pas possible de déterminer dans quelles proportions les défauts de concentrations constatés sont attribuables à un défaut de la méthode d'échantillonnage (problématique d'adsorption surfacique des CFCs dans l'échantilleur?) et/ou des difficultés analytiques, ou à la dégradation effective des CFCs dans l'aquifère.

ANNEXE D

REPORTAGE PHOTOGRAPHIQUE



Photographie 1 : Plan d'ensemble de l'installation pour réalisation de diagraphies physiques (site de Ormstown)



Photographie 2 : Mesures diagraphiques sur le site de Saint-Lazare



Photographie 3 : Mesures diagraphiques sur le puits d'observation du MELCC situé à Mirabel



Photographie 4 : Préparation à l'insertion d'équipement en série (sonde température haute résolution et micro-moulinet) dans un puits pour diagraphie (site de Chateauguay)



Photographie 5 : Installation avec trépied et pour diagraphie avec pompage en profondeur à débit important (130 L/min), (site de Saint-Lazare)



Photographie 6 : Configuration d'équipement diagraphique à l'arrière du véhicule : treuil et console contrôlés par ordinateur, thermistance fixée en série sur le câble comprenant à son extrémité le connecteur pour les équipements (camera, micromoulinet)



Photographie 7 : Treuil mécanique, console de contrôle et câble de communication pour les diagraphies physiques



Photographie 8 : Plan rapproché des thermistances utilisées : (a) Thermistance $\pm 0.001^\circ\text{C}$ équipée incluant un système programmable d'acquisition de données avec sonde de pression et (b) thermistance $\pm 0.01^\circ\text{C}$ utilisée jusqu'en 2017



Photographie 9 Calibration de la thermistance utilisée jusqu'en 2017. De gauche à droite : Contenant isotherme avec thermistance et thermomètre, Ohmmètre digital ($\pm 0.01\Omega$), boîtier de résistance en série pour la thermistance



Photographie 10 : Plan rapproché du micromoulinet avec centreurs utilisé pour les diagraphies



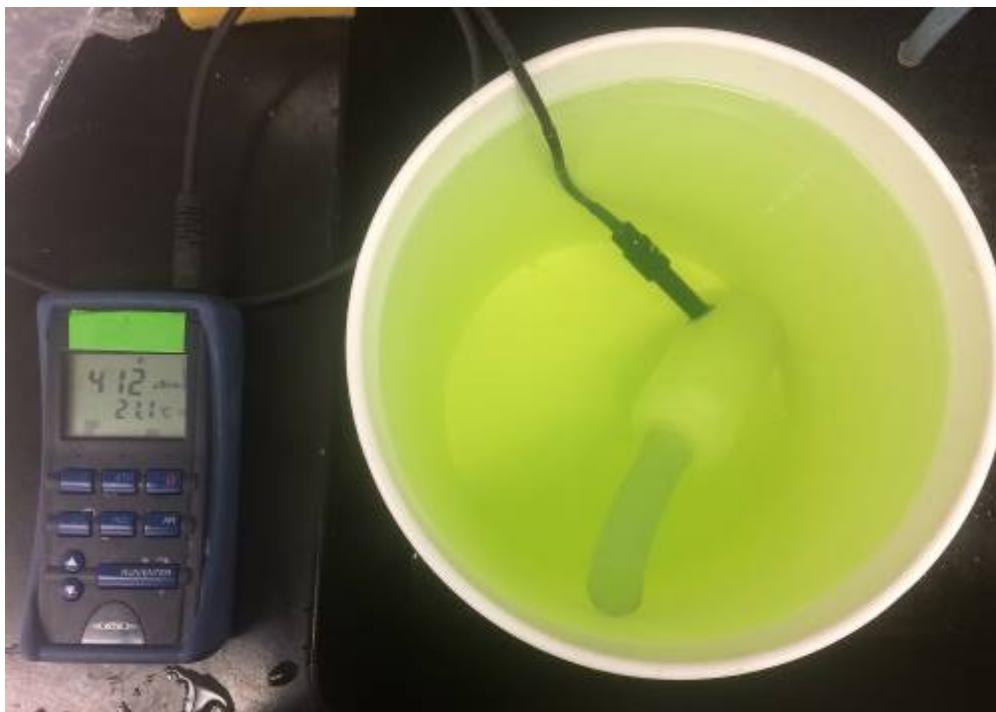
Photographie 11 : Plan rapproché de la caméra avec centreurs utilisée pour les diagraphies



Photographie 12 : Caméra en remontée finale dans le tubage d'un puits de 150 mm de diamètre



Photographie 13 : Câblage et contrôleur de pompe submersible à débit variable et génératrice compacte utilisés pour les investigations diagraphiques



Photographie 14 : Essai de rééquilibration réalisé pour un échantillonneur passif liquide à l'aide d'une solution d'uranine et de Na-Cl. La conductivité électrique à la base de l'échantillonneur est suivie à l'aide une sonde



Photographie 15 : Déploiement d'une ligne de micro-pompage pour l'échantillonnage séquentiel de traceurs et de la chimie de l'eau et avant insertion dans le puits (site de Saint-Apollinaire)



Photographie 16 : Plan rapproché de la ligne : faisceaux d'échantillonnage de l'eau à profondeur donnée par micro-pompage, conduite de pompage et câble électrique d'alimentation de la pompe submersible



Photographie 17 : Mise en place d'échantilleurs passifs pour l'eau et les gaz sur la ligne avant leur insertion dans le puits (site de Saint-Apollinaire)



Photographie 18 : Préparation d'une série de dix échantilleurs passifs sur une ligne lestée pour fin de datation séquentielle avant insertion dans le puits (site de Saint-Paul-d'Abbotsford)



Photographie 19 : Mise en place d'échantillonneurs passif liquides et gaz sur une ligne lestée (site de Coteau-du-Lac)



Photographie 20 : Préparation de flaconnages et de mâchoires préliminaires à la récupération d'échantillonneurs liquides et gazeux en place dans un puits (site de Saint-Paul-d'Abbotsford)



Photographie 21 : Échantillonnage conventionnel d'eau souterraine pour les gaz rares à l'exutoire d'une dérivation de la conduite de pompage (tubes de cuivre 3/8")



Photographie 22 : Déploiement d'une chambre de rééquilibration pour échantilleurs passifs pour les gaz, installée pour sur une dérivation de la conduite principale d'un essai de pompage de longue durée (site de Saint-Lazare)



Photographie 23 : Installation de pompage autonome pour le forçage des flux d'eau dans le puits pour fins de datation séquentielle avec échantillonneurs passifs : panneau solaire et boîtier d'alimentation adjacents au puits (site de Saint-Paul-d'Abbotsford)



Photographie 24 : Plan rapproché de l'intérieur du système autonome d'alimentation utilisé pour le micro-pompage pour fin de datation séquentielle. Batterie à décharge profonde, régulateur de tension de la pompe et relais de régulation de charge depuis le panneau solaire (site de Saint-Apollinaire)

APPENDICE A

« LA RICHESSE DE LA RESSOURCE EN EAU DU QUÉBEC », GÉOLOGUES,
2018

La richesse de la ressource en eau du Québec

Guillaume Meyzonnat¹, Florent Barbecot², Marina Alazard³ et Renald McCormack⁴.

Introduction

La province canadienne du Québec peut se targuer de nombreux superlatifs géographiques. Ceux-ci concernent ses grands espaces, ses forts contrastes climatiques saisonniers, et bien sûr sa grande richesse en eau douce. La superficie de la province de Québec est de 1 667 712 km² (2,6 fois la superficie de la France), avec une population de 8,3 millions d'habitants, soit une densité de moyenne de 6,4 hab./km². La population québécoise est surtout concentrée dans les centres urbains localisés dans la vallée du fleuve Saint-Laurent, à l'extrême sud de la province. En s'éloignant du fleuve, et à part les régions enclavées d'Abitibi et du Saguenay-Lac-Saint-Jean, la densité de population chute jusqu'à 0,1 hab./km² dans la région du Nord-du-Québec. Ce sont donc de grands espaces dont il s'agit, dès que l'on s'éloigne des centres urbains de Montréal, Québec et Trois-Rivières (Fig. 1), où se concentrent les plus fortes demandes en eau. D'un point de vue climatique, les rudesses de l'hiver québécois sont bien connues et les accumulations de neige comptent parmi les plus importantes au monde. La ville de Québec reçoit par exemple en moyenne un peu plus de 3 m de neige chaque année. Ce qui est moins connu par contre, ce sont les épisodes de canicule pendant les mois les plus chauds. L'impact de l'humidité sur les températures ressenties est majeur en été, puisqu'elle accentue l'impression de chaleur sur la peau. Le record « d'humidex » appartient à la ville de Québec (températures ressenties de 49,3°C le 1^{er} août 1975). Ainsi, l'amplitude des températures entre l'hiver et l'été peut dépasser les 50°C sur Montréal.

La richesse de la ressource en eau du Québec est mondialement connue. La province est notamment alimentée à 96 % par l'hydroélectricité produite par le géant Hydro-Québec. Les infrastructures installées dans le Nord-du-Québec sur les bassins versants de la

Baie-James et de la Baie d'Hudson, telles que les centrales installées sur la Grande Rivière (LG1 à LG4), totalisent une puissance de quelques 14 335 MW. Un autre emblème du Québec est le gigantisme du Fleuve Saint-Laurent bordant le sud de l'île de Montréal. Quoique possédant la majorité de son bassin versant à l'extérieur de la province de Québec, le débit moyen annuel du fleuve à Montréal (station de Lassalle) est de 10 000 m³/s [1], soit à titre de comparaison, 20 fois le débit de la Seine à Paris. Les guides touristiques décrivent parfois le Québec comme « la province aux millions de lacs ». Il n'y a qu'à regarder une photographie satellite pour s'apercevoir que la superficie nord

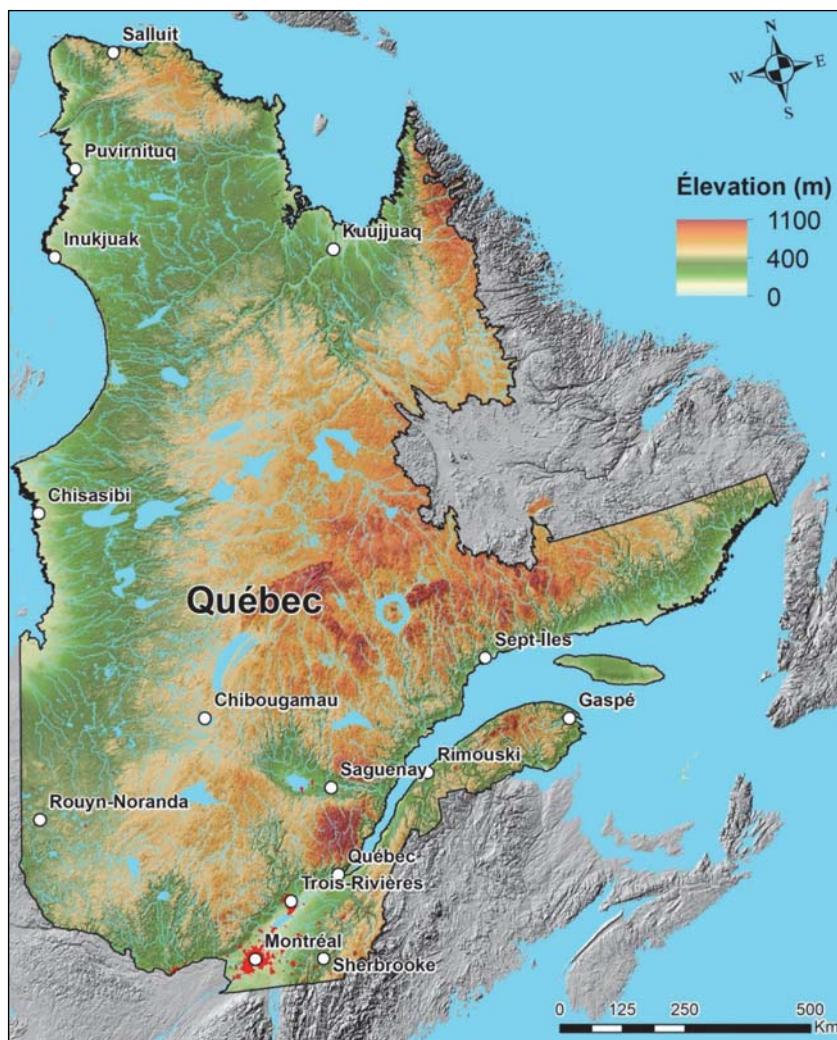


Figure 1. Carte du milieu physique et toponymie.

1. Geotop-UQAM, Département des Sciences de la Terre et de l'atmosphère, Québec, Canada. Courriel : meyzonnat.guillaume@uqam.ca

2. Geotop-UQAM, Département des Sciences de la Terre et de l'atmosphère, Québec, Canada. Courriel : barbecot.florent@uqam.ca

3. Geotop-UQAM, Département des Sciences de la Terre et de l'atmosphère, Québec, Canada. Courriel : alazard.marina@uqam.ca

4. Envir'Eau-Puits Inc., Canada. Courriel : rmccormack@envireaupuits.com

québécoise comporte effectivement d'innombrables lacs. En chiffre, c'est vingt-deux pour cent de la superficie du territoire du Québec qui est ainsi recouvert d'eau douce (Fig. 1). Avec ses dizaines de milliers de rivières et plus de trois millions de plans d'eau, le Québec possède 3 % des réserves en eau douce renouvelables de la planète ; près de 40 % de toute cette eau se concentre dans le bassin hydrographique du Saint-Laurent [2]. Au-delà de ces emblèmes, la richesse en eau du Québec s'explique par la conjonction de facteurs climatiques, géographiques et géologiques qui sont décrits ci-après.

Conditions climatiques : le facteur *sine qua non* pour la disponibilité de l'eau douce

La grande disponibilité de la ressource en eau québécoise s'explique premièrement par ses conditions climatiques. Le Québec reçoit ainsi les plus fortes précipitations annuelles à l'échelle canadienne, tout en étant accompagnées de températures annuelles relativement fraîches qui limitent considérablement le potentiel d'évapotranspiration. La température annuelle moyenne est de -1°C, et les précipitations totalisent près de 1 000 mm/an [3]. Mais, à l'intérieur même de cet immense territoire, se distinguent plusieurs régions climatiques. Pour le Sud du Québec, de la frontière avec les États-Unis jusqu'à l'extrême sud de la Baie-James (au sud du 51^e degré de latitude), le climat est continental froid et humide. Pour cette région climatique, la température moyenne annuelle est de 2°C, mais varie grandement, avec en moyenne 7°C à Montréal, 4°C à Québec et 3°C à Gaspé. Les précipitations sont d'un peu plus de 1 000 mm/an, dont près de 25 % sous forme de neige, avec une accumulation annuelle abondante de 2,75 m/an en moyenne. Plus au nord, du 51^e au 58^e degré de latitude, le climat continental subpolaire est plus froid, avec une température moyenne annuelle de -3°C, soit juste au-dessus du point de congé-

lation des eaux saumâtres du Golfe-du-Saint-Laurent, et de près de -6°C à Kuujjuaq. Les précipitations sont moins importantes, avec 775 mm/an en moyenne, dont plus du tiers sous forme de neige avec une accumulation moyenne de 2,7 m/an. La portion restante du territoire québécois au nord du 58^e degré de latitude Nord est un climat polaire caractérisé par un hiver très froid et sec et par une courte saison de dégel, et une température moyenne annuelle de -6°C. Les précipitations demeurent les moins élevées du Québec avec près de 500 mm/an, dont 50 % sous forme de neige. Le potentiel d'évapotranspiration, qui représente l'évaporation potentielle directe des précipitations vers l'atmosphère ainsi que la transpiration par les plantes, reste faible dans de tels climats. Quand on compare les précipitations annuelles avec l'évapotranspiration potentielle pour la province de Québec (Fig. 2), on constate que plus

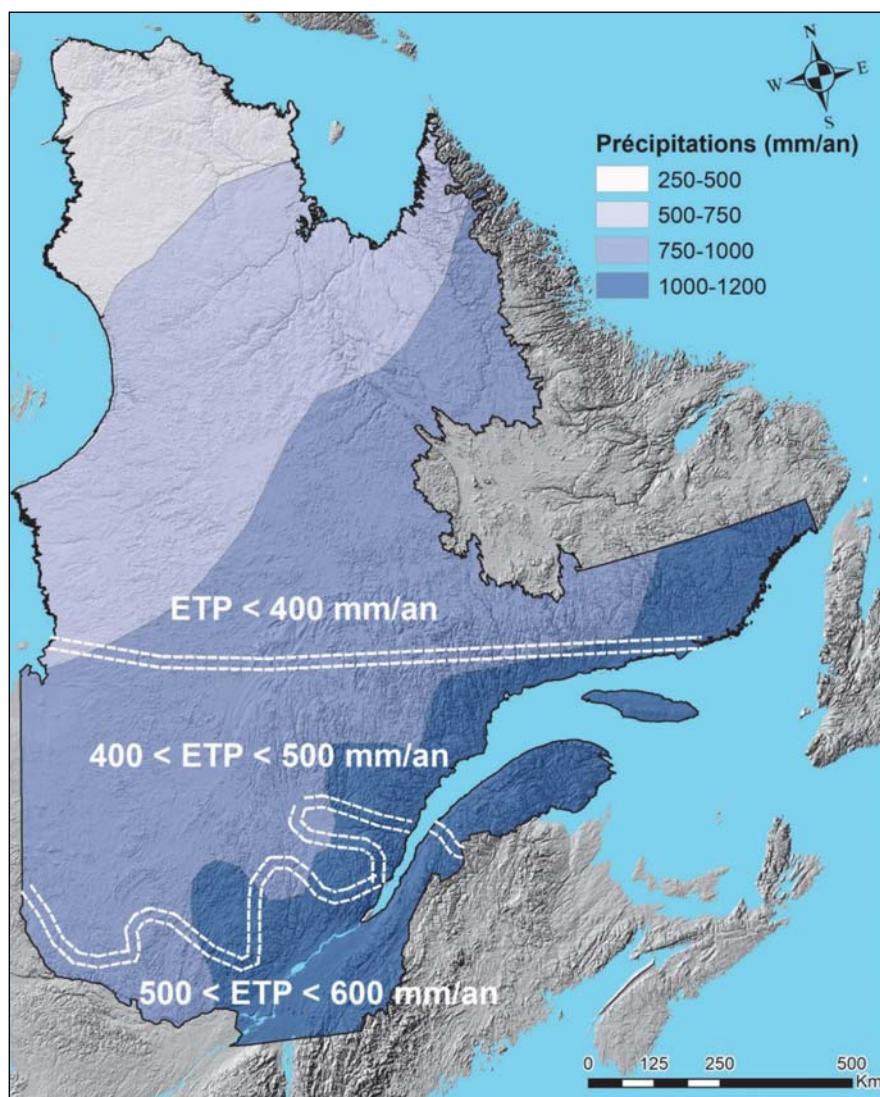


Figure 2. Carte des précipitations et potentiels d'évapotranspiration. Source : modifié de Rivera, 2013.

de la moitié de l'eau des précipitations n'est pas reprise par évapotranspiration, et reste ainsi disponible pour alimenter le réseau d'eau douce de surface ainsi que la recharge des aquifères. Dans de telles conditions climatiques, la recharge des aquifères est bimodale et se produit préférentiellement au printemps à la fonte des neiges, et à l'automne avant que les températures hivernales ne gèlent l'eau des sols [4].

Des millions de lacs québécois

Le Québec possède sur son territoire près de 3,6 millions de plans d'eau douce (voir figure 1) couvrant une superficie de près de 207 500 km² [2]. Quarante-neuf pourcent des plans d'eau identifiés par le Ministère du Développement Durable, de l'Environnement et de la lutte contre les Changements Climatiques [2] sont de très petite taille (Tableau 1). Ainsi, 3 490 000 plans d'eau sont très petits (moins de 25 ha), alors qu'une soixantaine seulement sont immenses. Le plus grand plan d'eau naturel est le lac Mistassini, situé dans la région de la Jamésie, juste au nord-est de Chibougamau. Sa superficie atteint 2 336 km² soit près de 4,5 fois la superficie l'île de Montréal. Les lacs « immenses » du Québec occupent environ 33 500 km², soit 16% de la superficie totale des plans d'eau douce.

Des millions de kilomètres de rivières

Les cours d'eau forment au Québec un réseau de plusieurs millions de kilomètres et se comptent par dizaines de milliers (Fig. 3). Parmi les grandes rivières, une douzaine draine des territoires d'une superficie de plus

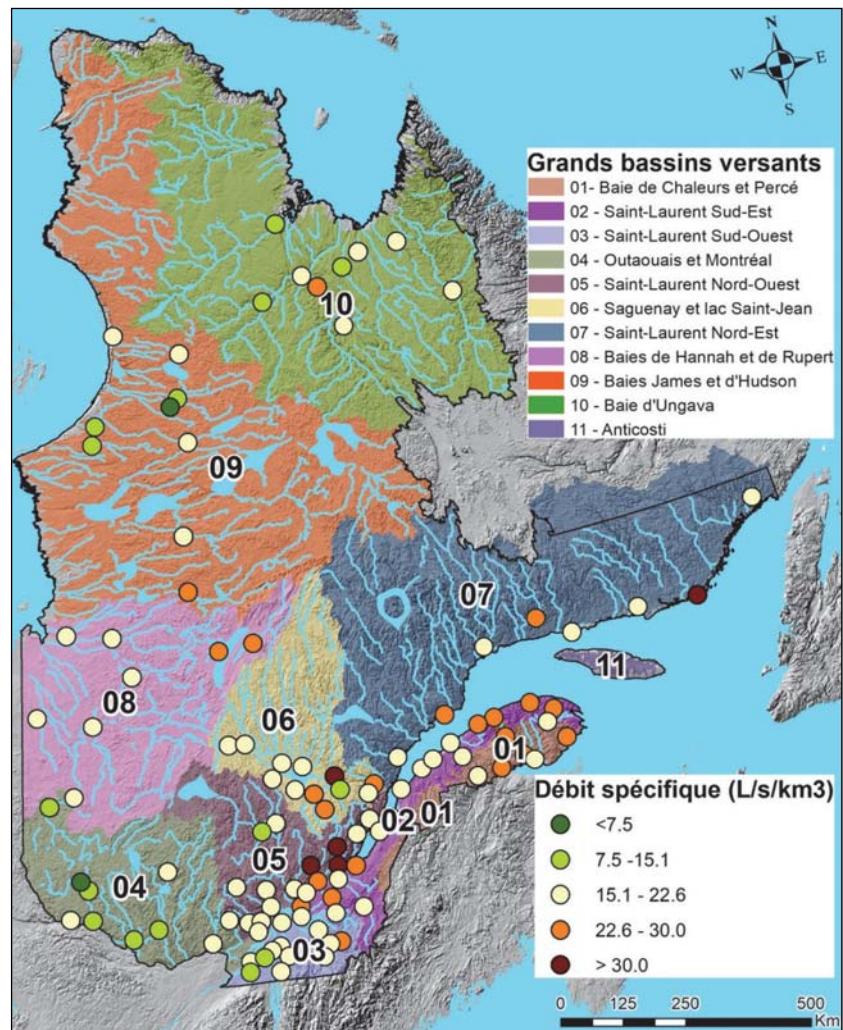


Figure 3. Carte des bassins versants et rivières. Source : Tiré et modifié de MDDELCC, 2018.

de 40 000 km². À elle seule, la Grande Rivière, véritable fleuve de la région du Nord-du-Québec, recueille les eaux d'un dixième de la superficie du territoire québécois. Son bassin versant, de près de 175 000 km², équivaudrait au tiers de la superficie de la France. Au Québec, le débit moyen annuel est fort variable d'une rivière à l'autre. Différentes stations hydrométriques réparties sur des cours d'eau dont les débits sont dits « naturels », c'est-à-dire très peu ou non influencés par des activités de régulation, révèlent des débits moyens variant entre 2,2 et 1 162 m³/s, calculés entre 1970 et 2010 par le Centre d'Expertise Hydrique du Québec (CEHQ). En général, plus le bassin versant d'une rivière est grand, plus son débit est élevé, mais des différences demeurent selon l'abondance des précipitations sur une région donnée. Ainsi, le CEHQ utilise des débits normalisés, appelés débits spécifiques, qui sont établis selon l'aire du bassin versant (voir figure 3).

Taille	Nombre
Très petit (de 0 à 25 ha)	3 490 851
Petit (de 25 à 125 ha)	71 728
Moyen (de 125 à 625 ha)	15 842
Grand (de 625 à 3 125 ha)	2 693
Très grand (de 3 125 à 15 625 ha)	343
Immense (de 15 625 à 390 625 ha)	63

Tableau 1. Nombre de plans d'eau du Québec selon leur taille [2].

Des milieux humides à profusion

Compte tenu du climat, du contexte géomorphologique glaciaire et du substratum rocheux propices à leur émergence, plus de 10 % de la superficie du Québec est couverte par des milieux humides. Ceux-ci sont distribués de façon hétérogène sur le territoire, mais ils sont particulièrement abondants dans la région du Centre-du-Québec, en Abitibi-Témiscamingue, ou dans le Nord québécois, là où des dépôts meubles quaternaires relativement imperméables, ont permis leur développement. Les milieux humides jouent un rôle significatif pour la régulation des crues, soutiennent la biodiversité, et peuvent permettre de stocker du carbone à long terme sous forme de matière organique.

Les provinces hydrogéologiques

La partition de cette eau disponible entre le réseau de surface et les aquifères est régie par la nature des provinces hydrogéologiques québécoises (Fig. 4). Ces dernières sont fonction de la géologie en place (sédiments glaciaires non consolidés et substratum rocheux), de la topographie, de la présence éventuelle de pergélisol. Ces caractéristiques définissent les conditions de ruissellement de l'eau en surface, la répartition de l'emmagasinement de l'eau vers le réseau de surface ou les aquifères, ainsi que les dynamiques spatio-temporelles associées entre ces réservoirs. Quatre régions hydrogéologiques principales se distinguent ainsi au Québec [5]. La grande majorité du territoire est constituée par la région hydrogéologique du bouclier canadien; les régions des Basses-Terres du Saint-Laurent et celle des Appalaches à l'extrême sud, et la région du pergélisol située au-dessus du 59^e degré de latitude Nord. Pour toutes ces régions hydrogéologiques, l'organisation des dépôts meubles a été intégralement modelée au cours du Quaternaire par des glaciations, et ces sédiments reposent en discordance marquée avec le substratum rocheux. L'épaisseur et la nature des dépôts meubles varient considérablement selon les régions hydrogéologiques.

La région du Bouclier canadien est la plus grande, environ un million de km², et elle est la moins peuplée. La densité de population est par exemple de 2,5 hab./km² pour la région d'Abitibi-Témiscamingue et chute à 0,1 hab./km² pour la région Nord-du-Québec [6]. La topographie du Bouclier est caractérisée par un relief ondulé modérément accidenté avec des altitudes comprises entre 200 et quelques 1 200 m. Dans cette région, la couverture en dépôts meubles quaternaires reste souvent mince, majoritairement constituée de tills, mais on peut trouver

la présence épars mais significative de dépôts fluvio-glaciaires (i.e. eskers, moraines) constituant d'excellents aquifères productifs, ou de dépôts argilo-silteux souvent plus épais. Le Bouclier canadien est constitué de roches pré-cambriennes d'origine ignée, métamorphique et métasédimentaire formées durant plusieurs phases orogéniques, volcaniques et événements tectoniques[7], comportant plusieurs provinces. D'un point de vue hydrogéologique, les roches cristallines du Bouclier canadien présentent généralement une porosité primaire et une productivité associée pouvant être qualifiée de faible à très faible. Les différences d'élévation peu marquées engendrent des gradients hydrauliques faibles, qui associés à des faibles conductivités hydrauliques n'induisent que peu de mélanges avec les eaux souterraines profondes. La majorité des écoulements reste très superficielle et rejoint rapidement le réseau de surface au profit des rivières et lacs. Dans ces régions éloignées, l'aquifère cristallin superficiel (i.e. 50 premiers mètres) reste cependant suffisamment productif pour des habitations unifamiliales et reste la source d'alimentation en eau potable majoritaire (80%) pour la population à l'aide de puits individuels. L'eau souterraine du Bouclier canadien est généralement de bonne qualité et peu minéralisée du fait de la matrice granitique peu soluble.

La région hydrogéologique des Basses-Terres du Saint-Laurent a une superficie de 29 000 km² [8] et concentre la plus forte densité de population et d'activités agricoles, avec par exemple une densité de population de 129 hab./km² pour la région de la Montérégie. La topographie des basses terres est extrêmement plane. Cette zone a subi l'invasion marine de la mer de Champlain qui a déposé des argiles marines pouvant atteindre 30 m d'épaisseur en bordure du Saint-Laurent [9]. La zone comporte également des vallées enfouies comblées par des dépôts quaternaires anciens pouvant être potentiellement de bons aquifères captifs. En s'éloignant des bas topographiques du Fleuve Saint-Laurent, l'épaisseur des dépôts quaternaires décroît généralement avec prédominance de dépôts de till affleurant. Les roches paléozoïques constituant la plate-forme des Basses-Terres du Saint-Laurent [10] sont peu déformées et suivent la séquence sédimentaire correspondant à l'ouverture du paléo-océan Iapetus (i.e. grès, dolomie, calcaire, shales, mudstone). Dans cette région, la productivité de l'aquifère rocheux reste relativement faible, mais très hétérogène en fonction des degrés de fracturation. Les puits très productifs installés dans le roc ne sont pas rares, particulièrement pour la portion sud-ouest de cette province où plusieurs réseaux d'aqueducs municipaux profitent de grandes productivités hydrauliques des formations de grès et de dolomies. Comme pour

les autres provinces, les aquifères granulaires productifs sont essentiellement d'origine fluvioglaciaires, mais on trouve cependant plusieurs de ces aquifères granulaires en conditions captives dans les Basses-Terres, du fait de la présence de dépôts argileux massifs qui les surmontent. La qualité de l'eau dans cette région reste bonne avec des eaux généralement peu à moyenement minéralisées du fait de la présence de matrices calcaires solubles, sauf pour certains aquifères fortement captifs et peu productifs au centre des Basses-Terres où l'eau peut être saline et chargée en soufre.

La région hydrogéologique des Appalaches représente une superficie de 69 000 km² [8]. Elle est moyennement peuplée, de l'ordre du 30 hab./km² pour les régions administratives de Chaudière-Appalaches et de l'Estrie [6], et est celle qui est la plus humide du Québec. À titre d'exemple, la ville de Sherbrooke reçoit près de 1 150 mm de précipitations par an. Cette province géologique correspond à la mise en place de la Chaîne des Appalaches lors de l'orogénie Taconienne [11], dont la mise en place s'est échelonnée sur plus de 150 millions d'années (de 450 à 290 millions d'années), en deux épisodes successifs majeurs au Québec [8]. La région présente ainsi des reliefs modérés et passe d'une altitude d'environ 50 m au niveau des Basses-Terres à un peu plus de 1 200 m pour les plus hauts sommets (i.e. 1 268 m au sommet du mont Jacques-Cartier en Gaspésie). Les dépôts glaciaires sont majoritairement constitués de tills, mais on peut retrouver des agencements complexes et souvent très épais à l'emplacement de vallées enfouies, où ils peuvent être associés localement à des dépôts fins d'origine lacustre ou à des dépôts fluvioglaciaires constituant d'excellents aquifères. Les roches des Appalaches proviennent de roches sédimentaires du Paléozoïque de la plateforme des Basses-Terres du Saint-Laurent ; elles ont été plissées, déformées et métamorphisées lors de la mise en place de la chaîne appalachienne. Les conditions de recharge peuvent varier considérablement dans cette région en fonction de la nature des dépôts quaternaires présents. Les plus forts taux de recharge sont associés à la présence de dépôts fluvioglaciaires affleurants, et les plus faibles associés aux endroits où les

dépôts fins sont majoritaires. La productivité de l'aquifère dans le roc reste faible à moyenne, bien qu'on puisse retrouver localement des puits avec une productivité élevée. Pour les régions où le relief est plus prononcé, les écoulements souterrains locaux sont plus rapides du fait d'un gradient plus élevé, ce qui produit des résurgences dans le fond des vallées. La qualité de l'eau dans cette région est bonne, et comme pour la province des Basses-Terres, elle est généralement peu à moyenement minéralisée en fonction des matrices calcaires plus solubles.

La région hydrogéologique du pergélisol correspond sommairement à la péninsule d'Ungava (250 000 km²) et reste la moins étudiée du fait de son éloignement géographique avec le Québec méridional plus peuplé. La région du pergélisol correspond aux hautes latitudes là où les températures dans le roc ou dans les dépôts meubles demeurent inférieures au point de congélation, en été. Cette caractéristique implique que la dynamique de l'eau

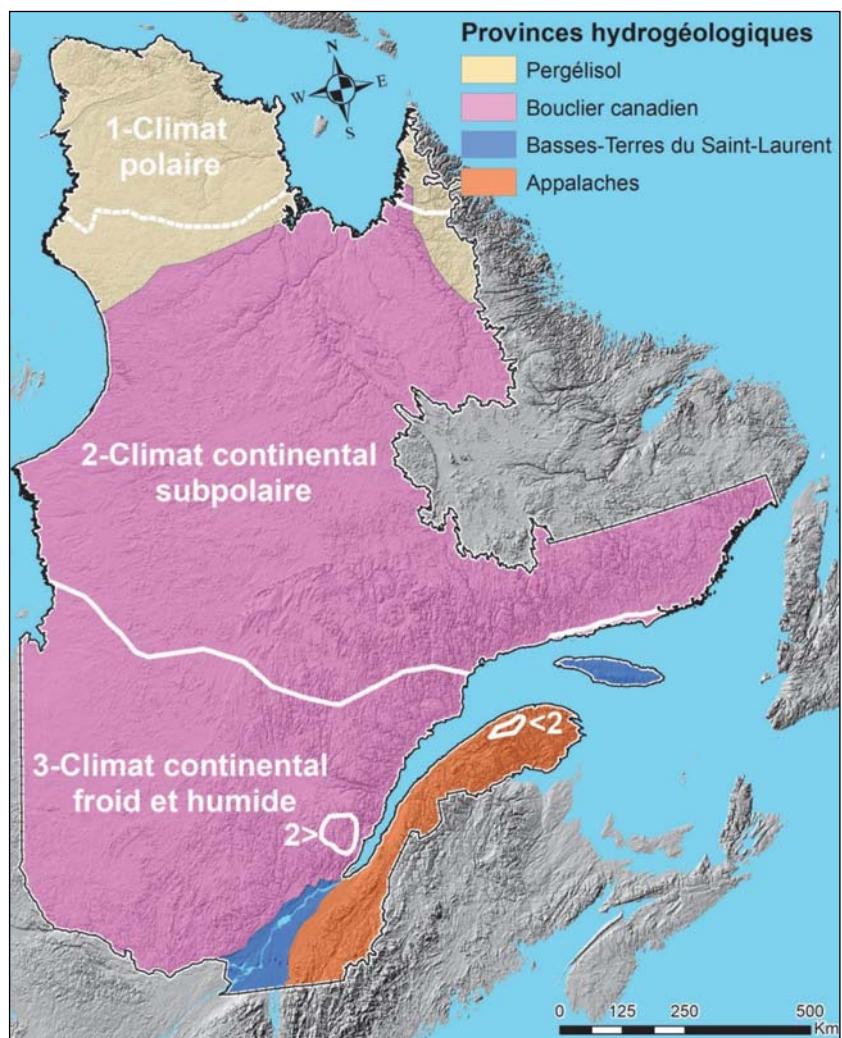


Figure 4. Carte des provinces hydrogéologiques et climats. Source : modifié de Rivera, 2013.

dans cette dernière région est essentiellement dominée, pour le réseau hydrographique de surface, par les conditions de gel/dégel saisonnier.

Disponibilité eaux de surface/eaux souterraines : lien avec les provinces hydrogéologiques québécoises

Bien qu'il puisse exister localement des zones à forte recharge compte tenu de la présence locale de sédiments meubles très perméables et /ou d'aquifère transmissifs spécifiquement dans les régions des Appalaches et des Basses-Terres du Saint-Laurent, la conductivité hydraulique des aquifères reste généralement faible dans la province de Québec. C'est cette caractéristique, associée à un excès de bilan hydrique (précipitations abondantes et faible potentiel d'évapotranspiration), qui crée une forte disponibilité de l'eau douce au niveau du réseau de surface, expliquant les nombreux lacs, rivières et zones humides décrits précédemment.

Pour les eaux souterraines, cette configuration, avec forte disponibilité de l'eau en surface et faibles conductivités hydrauliques des aquifères fracturés, génère des flux d'écoulements souterrains qui sont majoritairement superficiels. Le niveau des nappes d'eau souterraine au Québec se situe donc à faible profondeur, soit généralement à moins de 5 mètres sous la surface du sol. Cette configuration hydrogéologique s'apparente donc à des niveaux de nappes contrôlés par la topographie [12], c'est-à-dire une piézométrie qui suit globalement la topographie puisque la recharge est élevée et que c'est la conductivité hydraulique du roc, généralement faible, qui est finalement le facteur limitant pour les écoulements. Ces niveaux de nappes élevés induisent également que ce sont presque systématiquement les rivières, constituant des points bas topographiques, qui drainent les aquifères. Ceci assure la pérennité des cours d'eau même en période d'étiage. Les niveaux de nappes élevés garantissent encore un accès facile à la ressource en eau souterraine pour des puits individuels dans toutes les régions rurales du Québec. Tout compte fait, la production faible à moyenne des aquifères n'est pas un problème dans le cas de puits alimentant des maisons unifamiliales, compte tenu de la faible densité de population correspondante en région rurale, alimentée à 80 % par les ressources souterraines. Ceci dit, il existe toute de même, bon nombre d'approvisionnements municipaux en eau souterraine dans la région des Basses-Terres et des Appalaches. Ils sont implantés dans le roc par des hydrogéologues professionnels lors des travaux de recherche en eau, pour le compte des

municipalités, et capables de desservir des villes de 10 000 habitants. On exploite naturellement aussi les aquifères granulaires locaux très productifs, comme par exemple l'exploitation des eskers d'Abitibi par la ville d'Amos [13], le paléo-delta de la rivière Saint-Maurice en Mauricie [14] par la ville de Trois-Rivières, ou encore les buttes de Hudson et de Saint-Lazare dans la municipalité régionale de comté de Vaudreuil-Soulanges [9]. Pour les grands centres urbains dépassant 10 000 habitants, l'alimentation en eau potable est assurée très majoritairement par des prélèvements en rivières compte tenu du nombre, de la capacité et de la pérennité de ces dernières. Depuis 2009, le MDDELCC⁵ subventionne les ambitieux programmes d'acquisition de connaissances sur les eaux souterraines (PACES) sur des dizaines de milliers de kilomètres carrés. Ces projets visent à dresser un portrait des ressources en eaux souterraines sur les territoires municipalisés du Québec méridional afin de les protéger et d'en assurer la pérennité [15].

Cet article sur la richesse de la ressource en eau au Québec reprend bon nombre d'informations concernant l'eau et les écosystèmes, ainsi que les provinces naturelles québécoises en provenance des ressources mises en ligne par le MDDELCC ainsi que d'informations compilées dans la publication d'Alfonso Rivera [5] concernant les ressources en eau souterraine à l'échelle canadienne.

Références

1. MDDELCC (Ministère du Développement durable, de l'Environnement et de la Lutte contre les changements climatiques), 2018. Expertise hydrique du Québec. Suivi hydrologique de différentes stations hydrométriques. <https://www.cehq.gouv.qc.ca/suivihydro/>
2. MDDELCC (Ministère du Développement durable, de l'Environnement et de la Lutte contre les changements climatiques), 2018. Rapport sur l'état de l'eau et des écosystèmes aquatiques au Québec. <http://www.mddelcc.gouv.qc.ca/rapportsurleau/portrait-Qc-aquatique-eau-nord-sud-est-ouest.htm>
3. MDDELCC (Ministère du Développement durable, de l'Environnement et de la Lutte contre les changements climatiques), 2018. Climat du Québec. Normales climatiques 1981-2010. <http://www.mddelcc.gouv.qc.ca/climat/normales/climat-qc.htm>
4. Rivard C. et al., 2014. A watershed-scale study of climate change impacts on groundwater recharge (Annapolis Valley, Nova Scotia, Canada). Hydrological Sciences Journal. 59(8): p.1437-1456.
5. Rivera A., 2013. Canada's Groundwater Resources. Fitzhenry & Whiteside ISBN-10: 1554552923, 308 p.
6. ISQ (Institut de la statistique du Québec), 2016. Portrait du Québec en Bref. <http://www.gouv.qc.ca/FR/LeQuebec/Pages/Accueil.aspx>

5. Ministère du Développement Durable Et de la Lutte contre les Changements Climatiques.

7. Davidson A., 1998. Geological map of the Grenville Province, Canada and adjacent parts of the United States of America. Geological Survey of Canada, Map 1947A, scale 1/2 000 000.
8. MDDELCC (Ministère du Développement durable, de l'Environnement et de la Lutte contre les changements climatiques), 2018. Aires protégées au Québec. Description des provinces naturelles. http://www.mddelcc.gouv.qc.ca/biodiversite/aires_protegees/provinces/index.htm
9. Larocque M. et Meyzonnat G., 2015. Projet de connaissance des eaux souterraines de la zone de Vaudreuil-Soulanges - Rapport scientifique. Rapport déposé au ministère du Développement durable, de l'Environnement et de la Lutte contre les changements climatiques. 202 p. <https://rques.ca/paces-vaudreuil-soulanges/>
10. Globensky Y., 1987. Géologie des Basses-Terres du Saint-Laurent. Rapport MM85-02, Direction générale de l'exploitation géologique et minérale, Québec, 70 p.
11. Slivitzky A. et St-Julien P., 1987. Compilation géologique de la région de l'Estrie-Beauce. Ministère des Ressources naturelles du Québec, MM 85-04, 40 p.
12. Gleeson T. et al., 2011. Classifying the water table at regional to continental scales. *Geophysical Research Letters*. 38(5): p. n/a-n/a.
13. Cloutier V. et al., 2013. Projet d'acquisition de connaissances sur les eaux souterraines de l'Abitibi-Témiscamingue (partie 1). Rapport final déposé au Ministère du Développement durable, de l'Environnement, de la Faune et des Parcs dans le cadre du Programme d'acquisition de connaissances sur les eaux souterraines du Québec. Rapport de recherche P001. Groupe de recherche sur l'eau souterraine, Institut de recherche en mines et en environnement, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue, 135 p.
14. Leblanc Y. et al., 2013. Caractérisation hydrogéologique du sud-ouest de la Mauricie. Rapport déposé au ministère du Développement durable, de l'Environnement, de la Faune et des Parcs dans le cadre du Programme d'acquisition de connaissances sur les eaux souterraines du Québec. Département des sciences de l'environnement, Université du Québec à Trois-Rivières, 134 p.
15. MDDELCC (Ministère du Développement durable, de l'Environnement et de la Lutte contre les changements climatiques), 2018. Projets d'acquisition de connaissances sur les eaux souterraines. <http://www.mddelcc.gouv.qc.ca/eau/souterraines/programmes/acquisition-connaissance.htm>

APPENDICE B

ESSAIS DIAGRAPHIQUES PAR TRAÇAGE CHIMIQUE

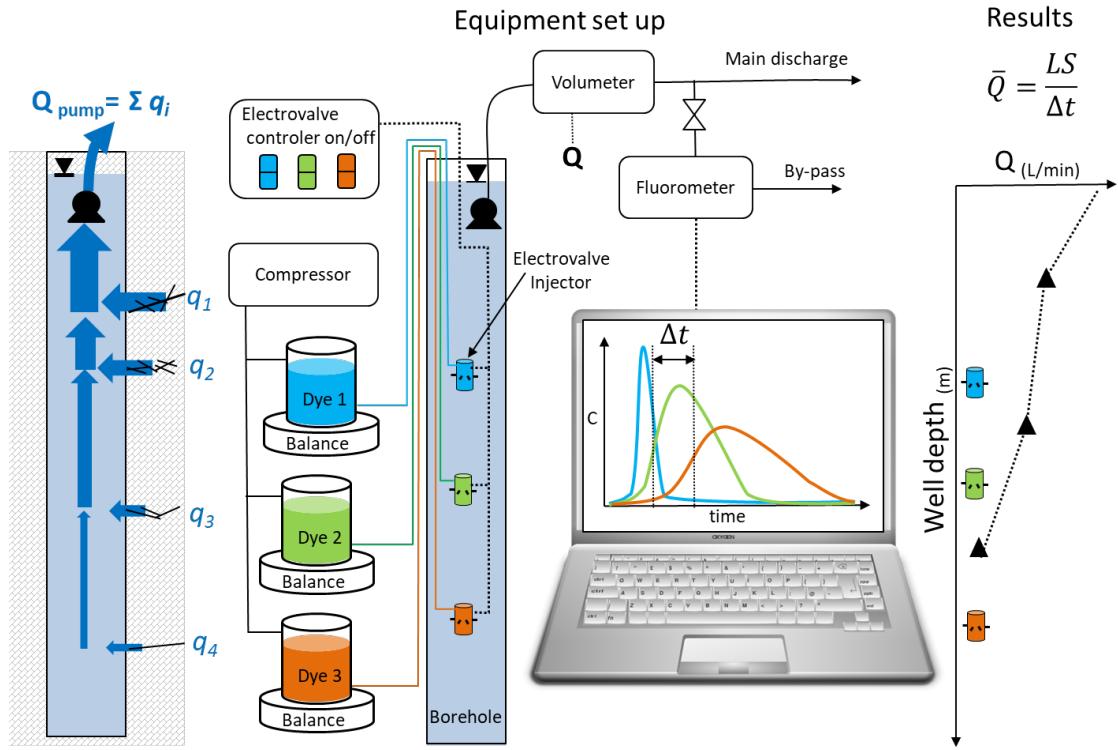


Figure 1: Schéma conceptuel de l'installation utilisée pour les diagraphies par essais de traçage en mode continu ou par impulsions.

Cette installation comprend l'usage d'un fluorimètre mesurant les concentrations en traceur dans le mélange pompé. Les injecteurs sont équipés d'électrovannes et placés sur une ligne d'injection. En mode d'injection par impulsion, le système de réservoirs est mis sous pression et l'actionnement des électrovannes permet l'injection de traceur pendant un laps de temps réduit. Des balances permettent de compiler précisément les volumes injectés. En mode d'injection continue, Chaque ligne est alimentée via une pompe péristaltique à très faible débit. Les signaux du fluorimètre (tensions fonction des concentrations) sont récupérés dans une PC via une interface avec le système de mesure. Les vitesses de remontés des traceurs (mode injection par impulsion) ou les concentrations en traceur (mode injection continue) servent à déduire la distribution verticale des zones productives dans le puits.

$$Q = Sv = S \frac{L}{t}$$

$$dQ = -\frac{LS}{t^2} dt$$

$$\int_{Q_1}^{Q_2} dQ = -LS \int_{t_1}^{t_2} \frac{dt}{t^2}$$

$$q = Q_2 - Q_1 = LS \left[\frac{1}{t_2} - \frac{1}{t_1} \right]$$

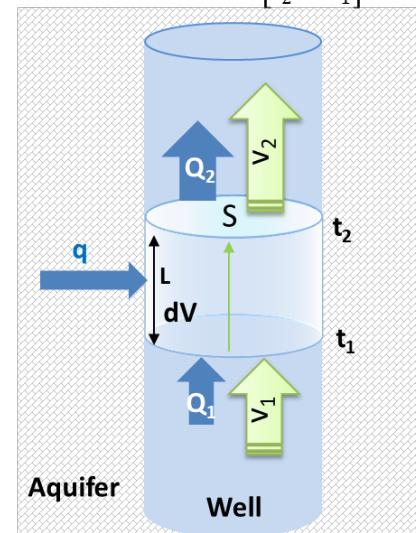
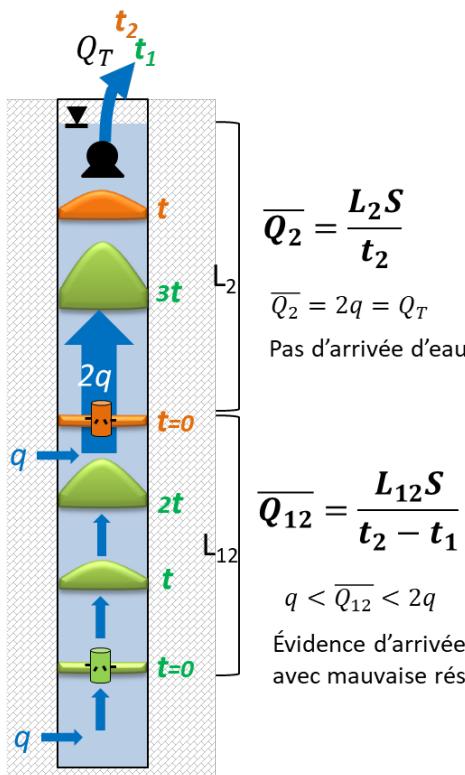
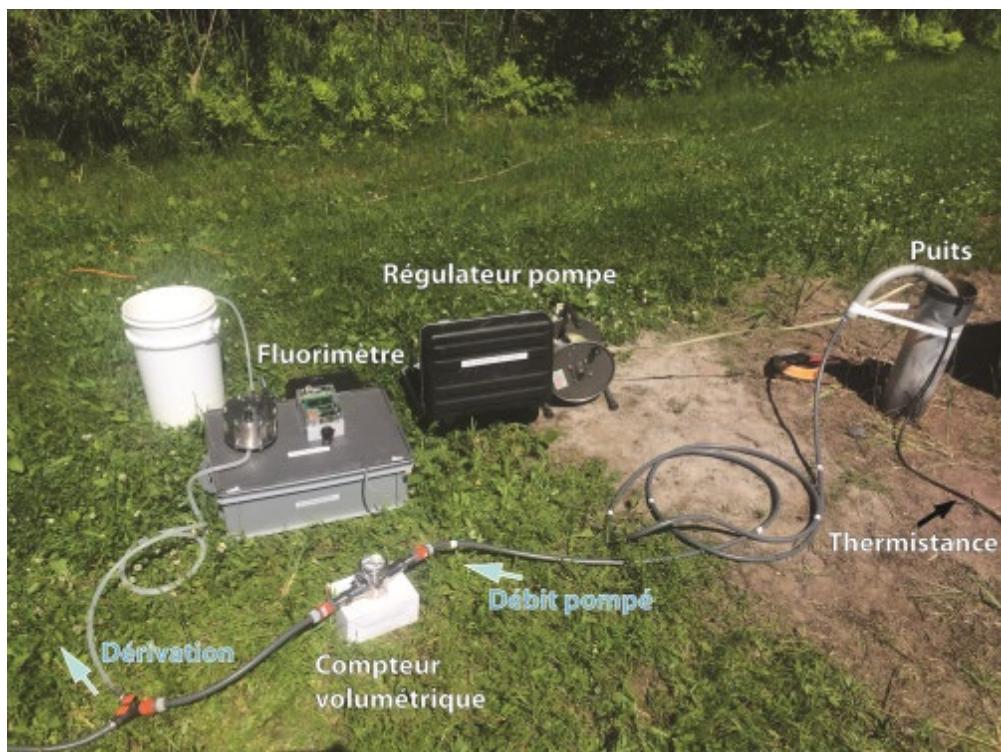


Figure 2: Schémas conceptuels et calculs impliqués pour le traçage en mode d'injection par impulsion en fonction des temps de transport des traceurs dans la colonne d'eau.



Photographie 1: Schémas d'installation de pompage et fluorimètre pour les diagraphies chimiques in-situ (Site de Saint-Paul d'Abbotsford).



Photographie 2 : Schémas d'installation complet pour l'injection par impulsions (site de Coteau-du-Lac), de droite à gauche : Pompe submersible et régulateur, Ligne d'injection dans l'enrouleur, réservoirs sous pression pour l'injection (Uranine, Tinopal, Eosine et NaCl) et contrôleur d'électrovanne, fluorimètre et système d'acquisition, compteur volumétrique du débit pompé.



**Photographie 3 : Déploiement de la ligne avec 4 injecteurs (Uranine, Eosine, Tinopal et NaCl,
site de Saint-Paul d'Abbotsford**



Photographie 4 : Puits équipé pour les essais de traçage avec conduite de pompage et conduites de lignes d'injection



Photographie 5 : Plan rapproché d'une électrovanne pour l'injection de traceur



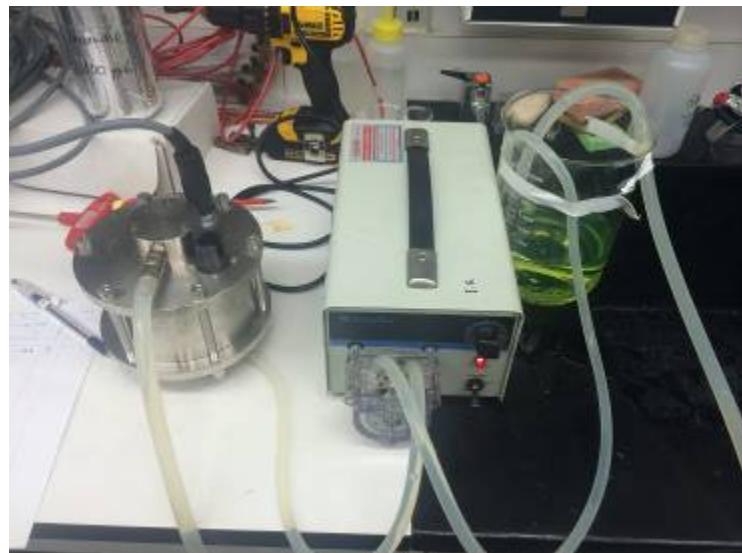
Photographie 6 : Déploiement de la ligne avec 4 injecteurs, site de Hemmingford



Photographie 7 : Plan rapproché de la pompe péristalique utilisée en mode d'injection continue



Photographie 8 : Boîtier de contrôle pour l'ouverture/fermeture des électrovannes d'injection relié à une batterie 12V.



Photographie 9 : Étalonnage du fluorimètre en laboratoire

EXEMPLE DE RÉSULTAT D'ESSAIS DE TRAÇAGE PAR IMPULSIONS

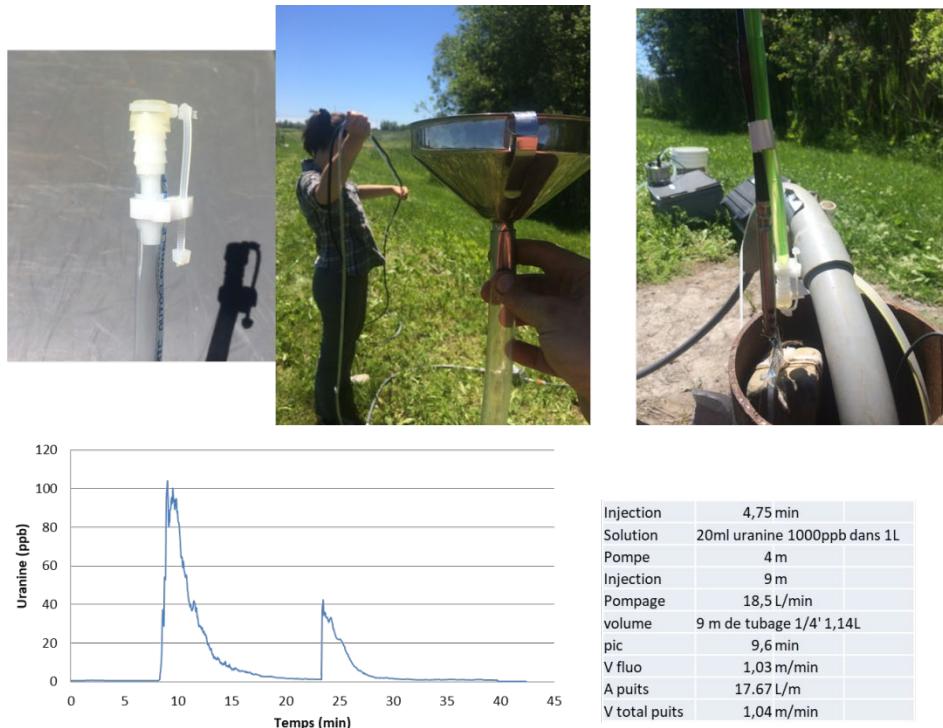


Figure 3 : Premiers essais pour l'injection d'uranine à profondeur donnée dans un puits en pompage et courbes de restitution du traceur (Site Saint-Paul d'Abbotsford)

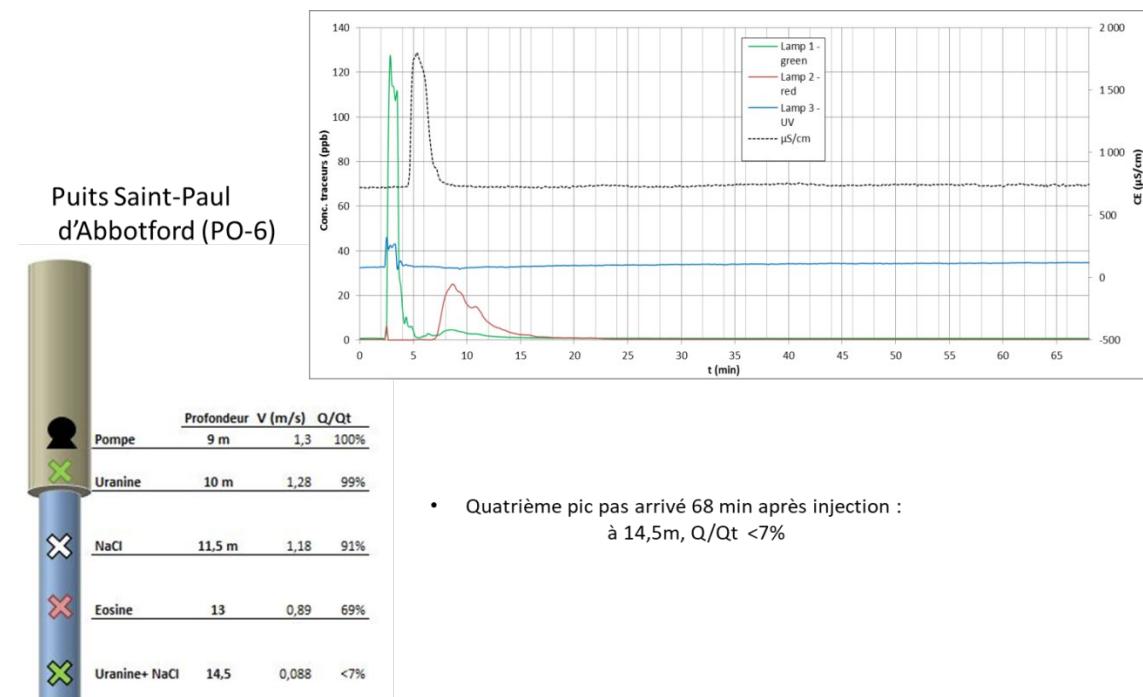


Figure 4 : Résultat d'essai de traçage par impulsions pour le puits PO6 (Saint-Paul d'Abbotsford)

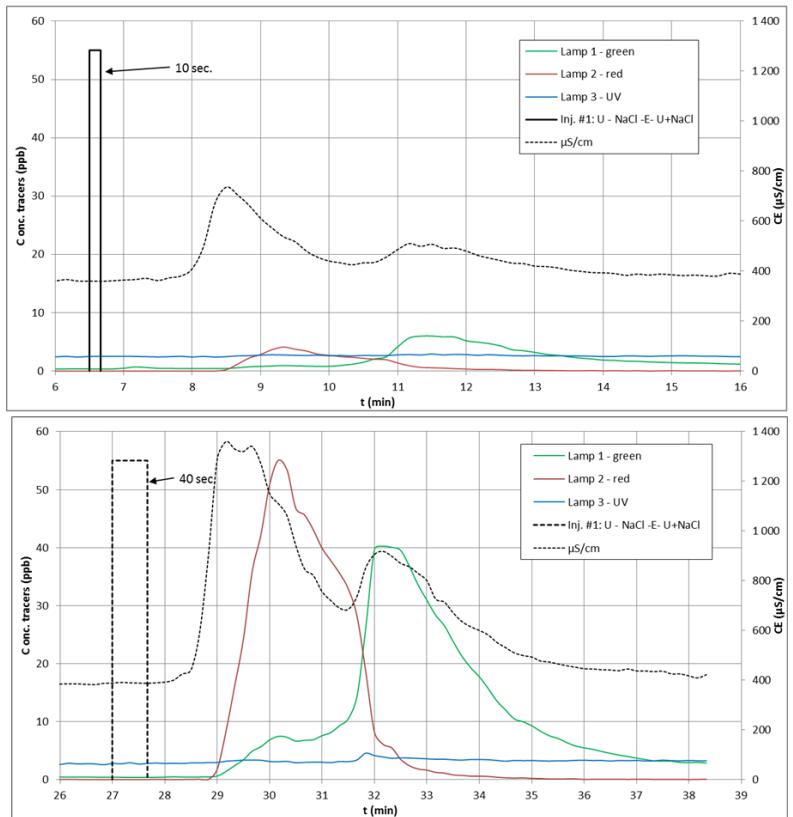
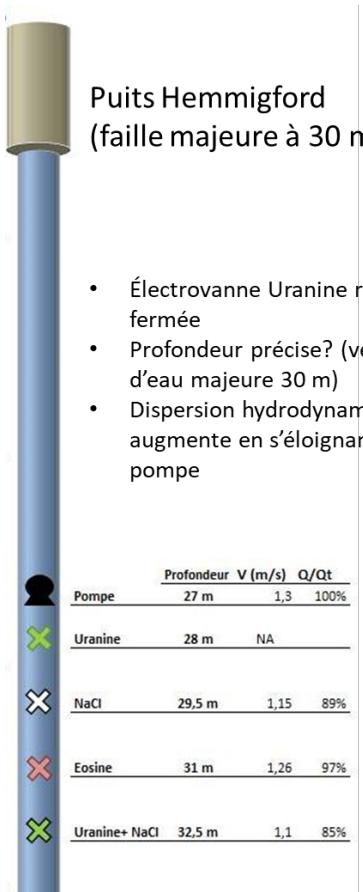
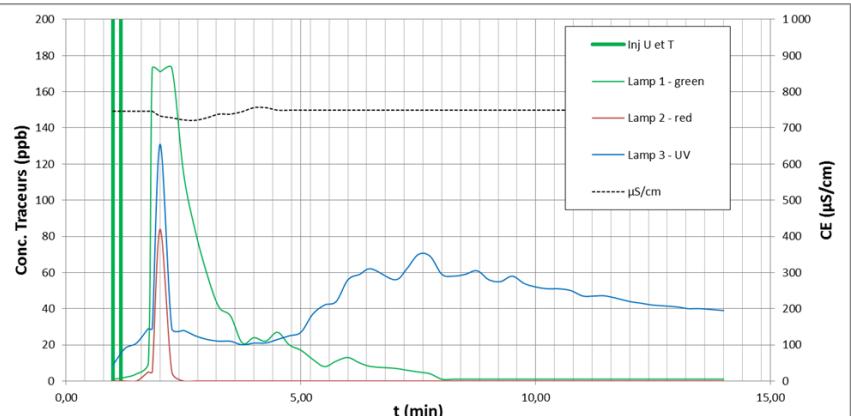
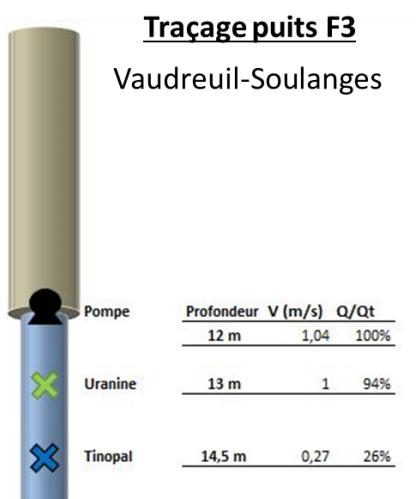


Figure 5 : Résultats d'essai de traçage par impulsions pour le puits PCI (Hemmingford)



- Q/Qt = 26% pour le Tinopal, à 2,5 m de la pompe = faible résolution de la méthode dès que le débit baisse trop

Figure 6 : Résultats d'essai de traçage par impulsions pour le puits F3 (Coteau-du-Lac)

EXEMPLE DE RÉSULTAT D'ESSAIS DE TRAÇAGE PAR INJECTION CONTINUES

Tableau 1 : Résultats synthétiques obtenus pour les essais de traçage par injections continues

Puits	PO-6 Saint-Paul	Q/Q0	Note
Tubage	10.5		
Prof. Tota	121		
Z, Q/Q0	10	100%	
	11.5	100%	
	13	79%	
	14.5	5%	<7 % pas de pic à 68 min
			Vanne 4 pas ouverte?
PO-7 Saint Paul			
Tubage	8.95		
Prof. Tota	61		
Z, Q/Q0	9	100%	
	10.5	57%	
	12	7%	<7 % pas de pic à 54 min
			Vannes 3 et 4 pas ouverte?
F3-VS			
Tubage	12.53		
Prof. Tota	21.63		
Z, Q/Q0	12.5	100%	
	13	100%	
	14.5	26%	
F4 VS			
Tubage	25		
Prof. Tota	34		
Z, Q/Q0	25	100%	
	26.5	27%	
FE-8 Saint isodore			
Tubage	5.5		
Prof. Tota	70		
Z, Q/Q0	7.5	100%	
	9	100%	
	10.5	100%	
	12	100%	
	18	100%	
	19.5	86%	
	22.5	72%	
	26.5	62%	
	28	54%	
	31	54%	

Tube	9	t arrivée haut puits (min)						16.5	55.4	
Z Total		Z (sous tubage)	Venue eau %	Q	Q/QO	Q cummul	V (m/min)	t (min)	C1 (ppb)	C2 (g/L)
9.5		0.5	25%	4.25	99%	16.83	0.95	0.52	238	45
10		1	25%	4.25	74%	12.58	0.71	0.70	318	60
10.5		1.5	20%	3.40	49%	8.33	0.47	1.06	480	90
11		2	15%	2.55	29%	4.93	0.28	1.79	811	152
11.5		2.5	8%	1.36	14%	2.38	0.13	3.71	1,681	101
12		3	2%	0.34	6%	1.02	0.06	8.66	5,922	300
12.5		3.5	2%	0.34	4%	0.68	0.04	12.99		735
13		4	1%	0.17	2%	0.34	0.02	25.99		735
13.5		4.5	1%	0.17	1%	0.17	0.01			1,471
14		5	0%	0.00	0%	0.00	0.00			7,353
14.5		5.5	0%	0.00	0%	0.00	0.00			
15		6	0%	0.00	0%	0.00	0.00			
15.5		6.5	0%	0.00	0%	0.00	0.00			
16		7	0%	0.00	0%	0.00	0.00			
16.5		7.5	0%	0.00	0%	0.00	0.00			
17		8	0%	0.00	0%	0.00	0.00			
17.5		8.5		0	0%	0				
18		9		0	0%					

Tableau 2 résultats détaillés pour les essais de traçage en mode continu pour le puits P07 (Saint Paul D'abbotsford)

Tube	12	t arrivée haut puits (min)						147.1	95.0	6633.5	73.3	
Z Total		Z (sous tubage)	Venue eau %	Q	Q/QO	Q cummul	V (m/min)	t (min)	C1 (ppb)	C2 (ppb)	C3(ppb)	C4(ppb)
12		0	94.2%	16.96	100%	18.00	1.02	0.98	83	83		
13		1	0.0%	0.00	6%	1.04	0.06	17.03	1,445	1,445		
14		2	0.5%	0.08	6%	1.04	0.06	17.03	1,445	1,445		
15		3	0.3%	0.06	5%	0.96	0.05	18.49	1,569	1,569		
16		4	0.5%	0.08	5%	0.90	0.05	19.74	1,676	1,676		
17		5	2.6%	0.47	5%	0.81	0.05	21.75	1,846	1,846		
18		6	1.9%	0.34	2%	0.34	0.02	52.05	4,418	-		
19		7	0.0%	0.00	0%	0.00	0.00	6486.43	-			
20		8	0.0%	0.00	0%	0.00	0.00	6545.54	-			
21		9	0.0%	0.00	0%	0.00	0.00	26035.74	-			
22		10	0.0%	0.00	0%	0.00	0.00	#DIV/0!	0.00			
				0.00	0%	0.00	0.00	#DIV/0!	0.00			
				0.00	0%	0.00	0.00	#DIV/0!	0.00			
				0.00	0%	0.00	0.00	#REF!				

Tableau 3 résultats détaillés pour les essais de traçage en mode continu pour le puits F3 (Coteau-du-lac)

Tube	6	t arrivée haut puits (min)						14.2	12.1	16.3	10.0	
Z Total		Z (sous tubage)	Venue eau %	Q	Q/QO	Q cummul	V (m/min)	t (min)	C1 (ppb)	C2 (ppb)	C3(ppb)	C4(ppb)
6		0	1.0%	0.18	100%	18.00	1.02	1.96	278	278		
8		2	1.0%	0.18	99%	17.82	1.01	1.98	281	281		
10		4	1.0%	0.18	98%	17.64	1.00	2.00	283	283		
12		6	1.0%	0.18	97%	17.46	0.99	2.02	286	286		
14		8	1.0%	0.18	96%	17.28	0.98	2.05	289	289		
16		10	1.0%	0.18	95%	17.10	0.97	2.07	292	292		
18		12	1.0%	0.18	94%	16.92	0.96	2.09	296	280		
20		14	1.0%	0.18	93%	16.74	0.95	2.11	299	283		
22		16	1.0%	0.18	92%	16.56	0.94	2.13	302	286		
24		18	1.0%	0.18	91%	16.38	0.93	2.16	305	289		
26		20	0.0%	0.00	90%	16.20	0.92	2.18	309			
28		22	0.0%	0.00	90%	16.20	0.92	2.18	309	0.00		
30		24	90.0%	16.20	90%	16.20	0.92	2.18	309	0.00		
32		26	0.0%	0.00	0%	0.00	0.00	#DIV/0!	0.00			
34		28	0.0%	0.00	0%	0.00	0.00	#DIV/0!	0.00			
			0.0%	0.00	0%	0.00	0.00	#REF!				

Tableau 4 résultats détaillés pour les essais de traçage en mode continu pour le puits P-Cl (Hemmingford)

RÉFÉRENCES

- Aeschbach-Hertig, W., Beyerle, U., Holocher, J., Peeters, F., Kipfer, R. (Cartographer). (2002). Excess air in groundwater as a potential indicator of past environmental changes. IAEA-CN-80/29, 174-183.
- Aeschbach-Hertig, W., El-Gamal, H., Wieser, M., Palcsu, L. (2008). Modeling excess air and degassing in groundwater by equilibrium partitioning with a gas phase. *Water Resources Research*, 44(8).
- Alikhani, J., Deinhart, A. L., Visser, A., Bibby, R. K., Purtschert, R., Moran, J. E., Massoudieh, A., Esser, B. K. (2016). Nitrate vulnerability projections from Bayesian inference of multiple groundwater age tracers. *Journal of Hydrology*, 543, 167-181.
- Anderson, M. P. (2005). Heat as a ground water tracer. *Ground Water*, 43(6), 951-968.
- Andrews, J. N., Lee, D. J. (1979). Inert gases in groundwater from the Bunter Sandstone of England as indicators of age and palaeoclimatic trends. *Journal of Hydrology*, 41(3-4), 233-252.
- Appelo, C. A. J., Postma, D. (2005). Geochemistry, Groundwater and Pollution, 2nd ed. A.A. Balkema Publishers, Leiden, The Netherlands, 649 p.
- Aravena, R., Robertson, W. D. (1998). Use of multiple isotope tracers to evaluate denitrification in ground water: Study of nitrate from a large - flux septic system plume. *GroundWater*, 36(6), 975-982.
- Barahona-Palomo, M., Riva, M., Sanchez-Vila, X., Vazquez-Sune, E., Guadagnini, A. (2011). Quantitative comparison of impeller-flowmeter and particle-size-distribution techniques for the characterization of hydraulic conductivity variability. *Hydrogeology Journal*, 19(3), 603-612.
- Barbescot, F., Marlin, C., Gibert, E., Dever, L. (2000). Hydrochemical and isotopic characterisation of the Bathonian and Bajocian coastal aquifer of the Caen area (northern France). *Applied Geochemistry*, 15:791-805.
- Bartyzel, J., Rozanski, K. (2016). *Dating of young groundwater using four anthropogenic trace gases (SF6, SFCF, CFC-12 and Halon-1301): methodology and first results*. Isotopes Environ Health Stud.
- Beaudry, C., Lefebvre, R., Rivard, C., Cloutier, V. (2018). Conceptual model of regional groundwater flow based on hydrogeochemistry (Montérégie Est, Québec, Canada). *Canadian Water Resources Journal / Revue canadienne des ressources hydriques*, 43(2), 152-172.

- Benoit, N., Nastev, M., Blanchette, D., Molson, J. (2014). Hydrogeology and hydrogeochemistry of the Chaudière River watershed aquifers, Québec, Canada. *Canadian Water Resources Journal / Revue canadienne des ressources hydriques*, 39(1), 32-48.
- Bense, V., Read, T., Bour, O., Le Borgne, T., Coleman, T., Krause, S., Chalari, A., Mondanos, M., Ciocca, F., Selker, J. S. (2016). Distributed Temperature Sensing as a downhole tool in hydrogeology. *Water resource research*, 52, 9259-9273.
- Benson, B. B., Krause, D. (1980). Isotopic fractionation of helium during solution: A probe for the liquid state. *Journal of Solution Chemistry*, 9(12), 895-909.
- Bériault, A. (1978). *Carte hydrogéologique de l'Ile de Montréal et des Iles Perrot et Bizard*: Gouvernement du Québec, Ministère des richesses naturelles.
- Beyerle, U., Aeschbach-Hertig, W., Dieter m. Imboden, D. M., Baur, H., Graf, T., Kipfer, R. (2000). A Mass Spectrometric System for the Analysis of Noble Gases and Tritium from Water Samples. *Environ. Sci. Technol.*, 2000(34), 2042-2050.
- Blanchette, D., Lefebvre, R., Nastev, M., Cloutier, V. (2010). Groundwater Quality, Geochemical Processes and Groundwater Evolution in the Chateauguay River Watershed, Quebec, Canada. *Canadian Water Resources Journal*, 35(4), 503-526.
- Bondu, R., Cloutier, V., Rosa, E., Roy, M. (2020). An exploratory data analysis approach for assessing the sources and distribution of naturally occurring contaminants (F, Ba, Mn, As) in groundwater from southern Quebec (Canada). *Applied Geochemistry*, 114.
- Boucher, C., Pinti, D. L., Roy, M., Castro, M. C., Cloutier, V., Blanchette, D., Larocque, M., Hall, C. M., Wen, T., Sano, Y. (2015). Groundwater age investigation of eskers in the Amos region, Quebec, Canada. *Journal of Hydrology*, 524, 1-14.
- Brainerd, R. J., Robbins, G. A. (2004). A tracer dilution method for fracture characterization in bedrock wells. *GroundWater*, 42(5), 774-780.
- Brinkmann, R., Münnich, K. O., Vogel, J. C. (1959). C14-Altersbestimmung von Grundwasser. *Naturwissenschaften*(46), 10-12.
- Bu, X., Warner, M. J. (1995). Solubility of chlorofluorocarbon 113 in water and seawater. *Deep-Sea Research*, 42(7), 1151-1161.
- Bullister, J. L., Wisegarver, P. D., Menzia, F. A. (2002). The solubility of sulfur hexafluoride in water and seawater. *Deep-Sea Research*, 49(2002), 175-187.
- Busenberg, E., Plummer, L. N. (1992). Use of chlorofluorocarbons (CCl₃F and CCl₂F₂) as hydrologic tracers and age-dating tools: The alluvium and terrace system of central Oklahoma. *Water Resources Research*, 28(9), 2257-2283.
- Busenberg, E., Plummer, L. N. (2000). Dating young groundwater with sulfur hexafluoride: Natural and anthropogenic sources of sulfur hexafluoride. *Water Resources Research*, 36(10), 3011-3030.

- Busenberg, E., Weeks, E. P., Plummer, L. N., Bartholemay, R. C. (1993). Age dating ground water by use of chlorofluorocarbons (CCl₃F and CCl₂F₂), and distribution of chlorofluorocarbons in the unsaturated zone, Snake River Plain aquifer, Idaho National Engineering Laboratory, Idaho. *U.S. Geological Survey Water-Resources Investigations* 93-4054, 4047.
- Canada, G. o. (2019). 1981-2010 Climates normals and Averages.
<https://climate.weather.gc.ca>.
- Cane, G., Clark, I. D. (1999). Tracing ground water recharge in an agricultural watershed with isotopes. *GroundWater*, 37(1), 133-139.
- Carrier, M.-A., Lefebvre, R., Rivard, C., Parent, M., Ballard, J.-M., Benoit, N., Vigneault, H., Beaudry, C., Malet, X., Laurencelle, M., Gosselin, J.-S., Ladevèze, P., Thériault, R., Beaudin, I., Michaud, A., Pugin, A., Morin, R., Crow, H., Gloaguen, E., Bleser, J., Martin, A., Lavoie, D. (2013). Portrait des ressources en eau souterraine en Montérégie Est, Québec, Canada. Projet réalisé conjointement par l'INRS, la CGC, l'OBV Yamaska et l'IRDA dans le cadre du Programme d'acquisition de connaissances sur les eaux souterraines, rapport final INRS R-1433, juin 2013. 319 p.
- Castro, M. C., Hall, C. M., Patriarche, D., Goblet, P., Ellis, B. R. (2007). A new noble gas paleoclimate record in Texas — Basic assumptions revisited. *Earth and Planetary Science Letters*, 257(1-2), 170-187.
- Chaillou, G., Touchette, M., Buffin-Bélanger, T., Cloutier, C.-A., Hétu, B., Roy, M.-A. (2018). Hydrogeochemical evolution and groundwater mineralization of shallow aquifers in the Bas-Saint-Laurent region, Québec, Canada. *Canadian Water Resources Journal / Revue canadienne des ressources hydriques*, 43(2), 136-151.
- Chambers, L. A., Goody, D. C., Binley, A. M. (2018). Use and application of CFC-11, CFC-12, CFC-113 and SF 6 as environmental tracers of groundwater residence time: A review. *Geoscience Frontiers*.
- Charron, J. E. (1978). Étude hydrochimique de l'écoulement souterrain dans l'interfluve de la rivière des Outaouais et du fleuve Saint-Laurent. *Environnement Canada, étude n. 76, série scientifique*, 122 p.
- Chatelier, M., Ruelle, S., Bour, O., Porel, G., Delay, F. (2011). Combined fluid temperature and flow logging for the characterization of hydraulic structure in a fractured karst aquifer. *Journal of Hydrology*, 400(3-4), 377-386.
- Chesnaux, R., Chapuis, R. P. (2007). Detecting and quantifying leakage through defective borehole seals: a new methodology and laboratory verification. *Geotechnical Testing Journal*, 30(1), 17-24.
- Clark, I. (2015). *Groundwater geochemistry and isotopes*: CRC press.
- Clarke, W. B., Jenkins, W. J., Top, Z. (1976). Determination of tritium by mass spectrometric measurement of ³He. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, 27(1976), 515-522.

- Cloutier, V., Blanchette, D., Dallaire, P. L., Nadeau, S., Rosa, E., Roy, M. (2013). Projet d' acquisition de connaissances sur les eaux souterraines de l' Abitibi - Témiscamingue (partie 1). Rapport final déposé au Ministère du Développement durable, de l'Environnement, de la Faune et des Parcs dans le cadre du Programme d'acquisition de connaissances sur les eaux souterraines du Québec. Rapport de recherche P001. Groupe de recherche sur l'eau souterraine, Institut de recherche en mines et en environnement, Université du Québec en Abitibi - Témiscamingue, 135 p.
- Cloutier, V., Lefebvre, R., Savard, M. M., Bourque, É., Therrien, R. (2006). Hydrogeochemistry and groundwater origin of the Basses-Laurentides sedimentary rock aquifer system, St. Lawrence Lowlands, Québec, Canada. *Hydrogeology Journal*, 14(4), 573-590.
- Cloutier, V., Lefebvre, R., Therrien, R., Savard, M. M. (2010). Desalination of a sedimentary rock aquifer system invaded by Pleistocene Champlain Sea water and processes controlling groundwater geochemistry. *Environmental Earth Science*(59), 977-994.
- Cochand, M., Molson, J., Barth, J. A., van Geldern, R., Lemieux, J.-M., Fortier, R., Therrien, R. (2017). *Hydrogeochemical characterisation of groundwater in a small watershed in a discontinuous permafrost zone*. Paper presented at the EGU General Assembly Conference Abstracts.
- Coleman, T. I., Parker, B. L., Maldaner, C. H., Mondanos, M. J. (2015). Groundwater flow characterization in a fractured bedrock aquifer using active DTS tests in sealed boreholes. *Journal of Hydrology*, 528, 449-462.
- Colombani, N., Giambastiani, B. M. S., Mastrocicco, M. (2016). Use of shallow groundwater temperature profiles to infer climate and land use change: interpretation and measurement challenges. *Hydrological Processes*, 30(14), 2512-2524.
- Cook, P. G., Herczeg, A. L. (2000). Environmental tracers in subsurface hydrology. *Kluwer Academic Publishers*, , 529 p.
- Cook, P. G., Solomon, D. K. (1995). Transport of Atmospheric Trace Gases to the Water Table: Implications for Groundwater Dating with Chlorofluorocarbons and Krypton 85. *Water Resources Research*, 31(2), 263-270.
- Cook, P. G., Solomon, D. K. (1997). Recent advances in dating young groundwater: chlorofluorocarbons, ^3H ^3He and ^{85}Kr . *Journal of Hydrology*, 191(1), 245-265.
- Corcho Alvarado, J. A., Barbicot, F., Purtschert, R. (2008). Ambient vertical flow in long-screen wells: a case study in the Fontainebleau Sands Aquifer (France). *Hydrogeology Journal*, 17(2), 425-431.
- Corcho Alvarado, J. A., Purtschert, R., Barbicot, F., Chabault, C., Rueedi, J., Schneider, V., Aeschbach-Hertig, W., Kipfer, R., Loosli, H. H. (2007). Constraining the age distribution of highly mixed groundwater using ^{39}Ar : A multiple environmental tracer ($^3\text{H}/^3\text{He}$, ^{85}Kr , ^{39}Ar , and ^{14}C) study in the

- semiconfined Fontainebleau Sands Aquifer (France). *Water Resources Research*, 43(3).
- Craig, H. (1981). Helium-3 and mantle volatiles in the ocean and oceanic crust. *The sea*, 7, 391-428.
- Crow, H., Ladevèze, P., Laurencelle, M., Benoît, N., Rivard, C., Lefebvre, R. (2013). *Downhole geophysical logging and preliminary analyses of bedrock structural data for groundwater applications in the Montérégie Est area, Québec*: Natural Resources Canada.
- D.O.E. (1994). In A. G. Dickson & C. Goyet (eds.). Handbook of methods for the analysis of the various parameters of the carbon dioxide system in sea water. 2. ORNL/CDIAC-74.
- Dagan, G. (1978). A note on Packer, Slug, and recovery Tests in Unconfined Aquifers. *Water resource research*, 14(5), 929-934.
- Darling, W. G., Gooddy, D. C., MacDonald, A. M., Morris, B. L. (2012). The practicalities of using CFCs and SF₆ for groundwater dating and tracing. *Applied Geochemistry*, 27(9), 1688-1697.
- de Marsily, G., Delay, F., Gonçalvès, J., Renard, P., Teles, V., Violette, S. (2005). Dealing with spatial heterogeneity. *Hydrogeology Journal*, 13(1), 161-183.
- Delbart, C., Barbicot, F., Valdes, D., Tognelli, A., Fourre, E., Purtschert, R., Couchoux, L., Jean-Baptiste, P. (2014). Investigation of young water inflow in karst aquifers using SF 6 –CFC– 3 H/He– 85 Kr– 39 Ar and stable isotope components. *Applied Geochemistry*, 50, 164-176.
- Drury, M. J., Jessop, A. M. (1982). The effect of Fluid-filled Fracture on Temperature Profile. *Geothermics*, 11(3), 145-152.
- Dunkle-Shapiro, S., Rowe, G., Schlosser, P., Ludin, A., Stute, M. (1998). Tritium-helium 3 dating under complex conditions in hydraulically stressed areas of a buried-valley aquifer. *Water Resources Research*, 34(5), 1165-1180.
- Edmunds W.M., Shand P., Hart P., R.S., W. (2003). The natural (baseline) quality of groundwater: a UK pilot study. *Sci Total Environ* (310), 25-35.
- El-Kadi, A. I., Plummer, L. N., Aggarwal, P. (2011). NETPATH-WIN: An interactive user version of the mass-balance model, NETPATH. *Ground Water*, 49(4), 593-599.
- Eriksson, E. (1963). Atmospheric tritium as a tool for the study of certain hydrologic aspects of river basins. *Tellus*, 15(3), 303-308.
- Faghri, A., Zhang, Y., and Howell, J. R., . (2010). 2010, Advanced Heat and Mass Transfer, Global Digital Press, Columbia, MO.
- Ferguson, G. (2007). Heterogeneity and thermal modeling of ground water. *Ground Water*, 45(4), 485-490.
- Ferguson, G., Woodbury, A. D. (2005). The effects of climatic variability on estimates of recharge from temperature profiles. *Ground Water*, 43(6), 837-842.
- Fontes, J. C. (1983). Dating of groundwater. *Guidebook on nuclear techniques in hydrology*, 285-317.

- Fontes, J. C., Garnier, J. M. (1979). Determination of the initial ^{14}C activity of the total dissolved carbon: A review of the existing models and a new approach. *Water Resources Research*, 15(2), 399-413.
- Freundt, F., Schneider, T., Aeschbach-Hertig, W. (2013). Response of noble gas partial pressures in soil air to oxygen depletion. *Chemical Geology*, 339, 283-290.
- Fritz, P., Drimmie, R., Frape, S., O'shea, K. (1987). The isotopic composition of precipitation and groundwater in Canada. Isotope techniques in water resources development. IAEA, Vienna. 836p.
- Gagné, S., Larocque, M., Pinti, D. L., Saby, M., Meyzonnat, G., Méjean, P. (2017). Benefits and limitations of using isotope-derived groundwater travel times and major ion chemistry to validate a regional groundwater flow model: example from the Centre-du-Québec region, Canada. *Canadian Water Resources Journal / Revue canadienne des ressources hydriques*, 1-19.
- Gardner, P., Solomon, D. K. (2009). *An advanced passive diffusion sampler for the determination of dissolved gas concentrations*. Water Resources Research, (45, 6).
- Ge, S. (1998). Estimation of groundwater velocity in localized fracture zones from well temperature profiles. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*(84), 93-101.
- GEOTOP-UQAM, TechnoRem, Envir'eau-Puits. (2018). Protocole de réalisation de diagraphies physiques en aquifère fracturé – focalisation sur les relevés thermiques haute résolution. Réalisés dans le cadre d'un partenariat en recherche et développement coopératif du CRSNG, Novembre 2018, 55 pages.
- Ghesquière, O., Walter, J., Chesnaux, R., Rouleau, A. (2015). Scenarios of groundwater chemical evolution in a region of the Canadian Shield based on multivariate statistical analysis. *Journal of Hydrology: Regional Studies*, 4, 246-266.
- Gillon, M., Barbecot, F., Gibert, E., Corcho Alvarado, J. A., Marlin, C., Massault, M. (2009). Open to closed system transition traced through the TDIC isotopic signature at the aquifer recharge stage, implications for groundwater ^{14}C dating. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 73(21), 6488-6501.
- Gillon, M., Barbecot, F., Gibert, E., Plain, C., Corcho Alvarado, J. A., Massault, M. (2012). Controls on ^{13}C and ^{14}C variability in soil CO₂. *Geoderma*, 189–190(0), 431-441.
- Gleeson, T., Befus, K. M., Jasechko, S., Luijendijk, E., Cardenas, M. B. (2015). The global volume and distribution of modern groundwater. *Nature Geoscience*, 9(2), 161-167.
- Globensky, Y. (1987). Géologie des Basses-Terres du Saint-Laurent. *Rapport MM85-02, Direction générale de l'exploitation géologique et minérale*, Québec, 70 p.
- Goody, D. C., Darling, W. G., Abesser, C., Lapworth, D. J. (2006). Using chlorofluorocarbons (CFCs) and sulphur hexafluoride (SF₆) to characterise

- groundwater movement and residence time in a lowland Chalk catchment. *Journal of Hydrology*, 330(1-2), 44-52.
- Goode, D. J. (1998). Ground-water age and atmospheric tracers: Simulation studies and analysis of field data from the Mirror Lake Site, New Hampshire, Ph.D. Thesis, Princeton University. 194 p.
- Gosselin, C., Mareschal, J.-C. (2003). Recent warming in northwestern Ontario inferred from borehole temperature profiles. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 108(B9).
- Grasby, S., Chen, Z., Hamblin, A., Wozniak, P., AR, S. (2008). Regional characterization of the Paskapoo bedrock aquifer system, southern Alberta. *Canadian Journal of Earth Sciences*, 45(12), 1501-1516.
- Hall, C. M., Castro, M. C., Lohmann, K. C., Ma, L. (2005). Noble gases and stable isotopes in a shallow aquifer in southern Michigan: Implications for noble gas paleotemperature reconstructions for cool climates. *Geophysical Research Letters*, 32(18), n/a-n/a.
- Han, L.-F., Plummer, L. N., Aggarwal, P. (2012). A graphical method to evaluate predominant geochemical processes occurring in groundwater systems for radiocarbon dating. *Chemical Geology*, 318, 88-112.
- Hare, D. K., Briggs, M. A., Rosenberry, D. O., Boutt, D. F., Lane, J. W. (2015). A comparison of thermal infrared to fiber-optic distributed temperature sensing for evaluation of groundwater discharge to surface water. *Journal of Hydrology*, 530, 153-166.
- Heaton, T. H. E., Vogel, J. C. (1981). "Excess air" in groundwater. *Journal of Hydrology*, 50(1981), 201-216.
- Hess, A. E. (1985). Identifying hydraulically conductive fractures with a slow-velocity borehole flowmeter. *Can. Geotech. J.*, 23, 69-78.
- Hillaire-Marcel, C., Gadd, N. (1988). Isotopic composition (^{18}O , ^{13}C , ^{14}C) of biogenic carbonates in Champlain Sea sediments. *The Late Quaternary Development of the Champlain Sea Basin*, 35, 177-194.
- Höhener, P., Werner, D., Balsiger, C., Pasteris, G. (2003). Worldwide Occurrence and Fate of Chlorofluorocarbons in Groundwater. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology*, 33(1), 1-29.
- Horneman, A., Stute, M., Schlosser, P., Smethie, W., Jr., Santella, N., Ho, D. T., Mailloux, B., Gorman, E., Zheng, Y., van Geen, A. (2008). Degradation rates of CFC-11, CFC-12 and CFC-113 in anoxic shallow aquifers of Araihazar, Bangladesh. *J Contam Hydrol*, 97(1-2), 27-41.
- Hyman, J. D., Karra, S., Makedonska, N., Gable, C. W., Painter, S. L., Viswanathan, H. S. (2015). dfnWorks: A discrete fracture network framework for modeling subsurface flow and transport. *Computers & Geosciences*, 84, 10-19.
- IAEA. (1999). Use of Isotopes for Analyses of Flow and Transport Dynamics in Groundwater Systems. Results of a co-ordinated research project 1996–1999, 388 p.

- IAEA. (2006). Use of chlorofluorocarbons in hydrology : a guidebook. Vienna : International Atomic Energy Agency. 291 p.
- IAEA. (2013). Isotope methods for dating old groundwater. STI/PUB/1587, 376 p.
- Illman, W. A. (2006). Strong field evidence of directional permeability scale effect in fractured rock. *Journal of Hydrology*, 319(1-4), 227-236.
- Ingerson, E., Pearson, F. (1964). Estimation of age and rate of motion of groundwater by the 14C-method. *Recent Researches in the Fields of Atmosphere, Hydrosphere and Nuclear Geochemistry*, 263-283.
- Ingram, R. G. S., Hiscock, K. M., Dennis, P. F. (2007). Noble Gas Excess Air Applied to Distinguish Groundwater Recharge Conditions. *Environmental Science & Technology*, 41(6), 1949-1955.
- Irvine, D. J., Cranswick, R. H., Simmons, C. T., Shanafield, M. A., Lautz, L. K. (2015). The effect of streambed heterogeneity on groundwater-surface water exchange fluxes inferred from temperature time series. *Water Resour. Res.*, 51, 198-212.
- Irvine, D. J., Simmons, C. T., Werner, A. D., Graf, T. (2015). Heat and solute tracers: how do they compare in heterogeneous aquifers? *Ground Water*, 53 Suppl 1, 10-20.
- Jasechko, S., Perrone, D., Befus, K. M., Bayani Cardenas, M., Ferguson, G., Gleeson, T., Luijendijk, E., McDonnell, Jeffrey J., Taylor, R. G., Wada, Y., Kirchner, J. W. (2017). Global aquifers dominated by fossil groundwaters but wells vulnerable to modern contamination. *Nature Geoscience*, 10(6), 425-429.
- Jung, M., Aeschbach, W. (2018). A new software tool for the analysis of noble gas data sets from (ground)water. *Environmental Modelling & Software*, 103, 120-130.
- Jurado, A., Vazquez-Sune, E., Carrera, J., Lopez de Alda, M., Pujades, E., Barcelo, D. (2012). Emerging organic contaminants in groundwater in Spain: a review of sources, recent occurrence and fate in a European context. *Sci Total Environ*, 440, 82-94.
- Jurgens, B., Böhlke, J., Eberts, S. (2012). TracerLPM (Version 1): An Excel® Workbook for Interpreting Groundwater Age Distributions from Environmental Tracer Data. U.S. Geological Survey, Reston, Virginia, 72p.
- Jurgens, B. C., Böhlke, J. K., Kauffman, L. J., Belitz, K., Esser, B. K. (2016). A partial exponential lumped parameter model to evaluate groundwater age distributions and nitrate trends in long-screened wells. *Journal of Hydrology*, 543, 109-126.
- Kaown, D., Koh, D.-C., Lee, K.-K. (2009). Effects of groundwater residence time and recharge rate on nitrate contamination deduced from $\delta^{18}\text{O}$, δD , $^{3}\text{H}/^{4}\text{He}$ and CFCs in a small agricultural area in Chuncheon, Korea. *Journal of Hydrology*, (366, 1-4).
- Kazemi, G., Lehr, J., Perrochet, P. (2006). *Groundwater age*: John Wiley & Sons.

- Keith, M. L., Weber, J. N. (1964). Carbon and oxygen isotopic composition of selected limestones and fossils. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 28(10), 1787-1816.
- Keys, W., Brown, R. (1978). The Use of Temperature Logs to Trace the Movement of Injected Water. *GroundWater*, 16(1), 32-48.
- Kipfer, R., Aeschbach-Hertig, W., Baur, H., Hofer, M., Imboden, D., Signer, P. (1994). Injection of mantle type helium into Lake Van (Turkey): The clue for quantifying deep water renewal. *Earth and Planetary Science Letters*, 125(1-4), 357-370.
- Kipfer, R., Aeschbach-Hertig, W., Peeters, F., Stute, M. (2002). Noble Gases in Lakes and Ground Waters. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 47(1), 615-700.
- Klepikova, M. V., Le Borgne, T., Bour, O., Dentz, M., Hochreutener, R., Lavenant, N. (2016). Heat as a tracer for understanding transport processes in fractured media: Theory and field assessment from multiscale thermal push-pull tracer tests. *Water resource research*, DOI 10.1002/2016WR018789.
- Klepikova, M. V., Le Borgne, T., Bour, O., Davy, P. (2011a). *A methodology for using borehole temperature-depth profiles under ambient, single and cross-borehole pumping conditions to estimate fracture hydraulic properties*. *Journal of Hydrology*.
- Klepikova, M. V., Le Borgne, T., Bour, O., Davy, P. (2011b). *A methodology for using borehole temperature-depth profiles under ambient, single and cross-borehole pumping conditions to estimate fracture hydraulic properties*. *Journal of Hydrology*, 407(1), 145-152.
- Klepikova, M. V., Le Borgne, T., Bour, O., Gallagher, K., Hochreutener, R., Lavenant, N. (2014). Passive temperature tomography experiments to characterize transmissivity and connectivity of preferential flow paths in fractured media. *Journal of Hydrology*, 512, 549-562.
- Koh, D.-C., Plummer, L. N., Busenberg, E., Kim, Y. (2007). Evidence for terrigenic SF₆ in groundwater from basaltic aquifers, Jeju Island, Korea: Implications for groundwater dating. *Journal of Hydrology*, 339(1-2), 93-104.
- Kolbe, T., Marçais, J., Thomas, Z., Abbott, B. W., de Dreuxy, J.-R., Rousseau-Gueutin, P., Aquilina, L., Labasque, T., Pinay, G. (2016). Coupling 3D groundwater modeling with CFC-based age dating to classify local groundwater circulation in an unconfined crystalline aquifer. *Journal of Hydrology*, 543, 31-46.
- Kurylyk, B. L., Irvine, D. J. (2016). Analytical solution and computer program (FAST) to estimate fluid fluxes from subsurface temperature profiles. *Water Resources Research*, 52(2), 725-733.
- Kurylyk, B. L., MacQuarrie, K. T., Voss, C. I. (2014). Climate change impacts on the temperature and magnitude of groundwater discharge from shallow, unconfined aquifers. *Water Resources Research*, 50(4), 3253-3274.

- Lamothe, M. (1989). A new framework for the Pleistocene stratigraphy of the central St. Lawrence Lowland, Southern Québec. *Géographie physique et Quaternaire*, 43(2), 119-129.
- Larocque, M., Cloutier, V., Levison, J., Rosa, E. (2018). Results from the Quebec Groundwater Knowledge Acquisition Program. *Canadian Water Resources Journal / Revue canadienne des ressources hydriques*, 43(2), 69-74.
- Larocque, M., Gagné, S., Barnetche, D., Meyzonnat, G., Graveline, M., Ouellet, M. (2015a). Projet de connaissance des eaux souterraines du bassin versant de la zone Nicolet et de la partie basse de la zone Saint-François - Rapport scientifique. Rapport déposé au ministère du Développement durable, de l'Environnement et de la Lutte contre les changements climatiques. 260 p.
- Larocque, M., Gagné, S., Tremblay, L., Meyzonnat, G. (2013). Projet de connaissance des eaux souterraines du bassin versant de la rivière Bécancour et de la MRC de Bécancour - Rapport scientifique. Rapport déposé au ministère du Développement durable, de l'Environnement, de la Faune et des Parcs. 148 p.
- Larocque, M., Meyzonnat, G., Barnetche, D., Graveline, M., Ouellet, M. (2015b). Projet de connaissance des eaux souterraines de la zone de Vaudreuil-Soulanges - Rapport scientifique. Rapport déposé au ministère du Développement durable, de l'Environnement et de la Lutte contre les changements climatiques. 202 p.
- Le Borgne, T., Paillet, F., Bour, O., Caudal, J. P. (2006). Cross-borehole flowmeter tests for transient heads in heterogeneous aquifers. *Ground Water*, 44(3), 444-452.
- Lewis, T. J., Beck, A. E. (1977). Analysis of heat-flow data - detailed observations in many holes in small area. *Tectonophysics*, 41, 41-59.
- Li, Y., Zhu, W., Cheng, B., Nygaard, R., Xiao, H. (2016). Laboratory evaluation of distributed coaxial cable temperature sensors for application in CO₂ sequestration well characterization. *Greenhouse Gases: Science and Technology*, 6(6), 812-823.
- Libby, J. L., Robbins, G. A. (2014). An unsteady state tracer method for characterizing fractures in bedrock wells. *Ground Water*, 52(1), 136-144.
- Lippmann, J., Stute, M., Torgersen, T., Moser, D., Hall, J., Lin, L., Borcsik, M., Bellamy, R., Onstott, T. C. (2003). Dating ultra-deep mine waters with noble gases and ³⁶Cl, Witwatersrand Basin, South Africa. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 67(23), 4597-4619.
- Lippmann, J., Stute, M., Torgersen, T., Moser, D. P., Hall, J. A., Lin, L., Borcsik, M., Bellamy, R. E. S., Onstott, T. C. (2003). Dating ultra-deep mine waters with noble gases and ³⁶Cl, Witwatersrand Basin, South Africa. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 67(23), 4597-4619.
- Loosli, H. H., Oeschger, H. (1969). ³⁷Ar and ⁸¹Kr in the atmosphere. *Earth Planet Sci Lett.*, 7:67-71.

- Maloszewski, P., Stichler, W., Zuber, A. (2004). Interpretation of environmental tracers in groundwater systems with stagnant water zones. *Isotopes in Environmental and Health Studies*, 40(1), 21-33.
- Małoszewski, P., Zuber, A. (1985). On the theory of tracer experiments in fissured rocks with a porous matrix. *Journal of Hydrology*, 79(3-4), 333-358.
- Mao, Y., Zeidouni, M., Duncan, I. (2017). Temperature analysis for early detection and rate estimation of CO₂ wellbore leakage. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 67, 20-30.
- Mareschal, J. C., Beltrami, H. (1992). Evidence for recent warming from perturbed geothermal gradients: examples from eastern Canada. *Climate Dynamics*, 6:135-143.
- Matsunaga, N., Hori, M., Nagashima, A. (2002). Measurement of Mutual Diffusion Coefficients of Gases by the Taylor Method: Measurements on H₂-Air, H₂-N₂, and H₂-O₂ Systems. *Heat Transfert - Asian Research*, 31(3), 182-193.
- Mayo, A. (2010). Ambient well-bore mixing, aquifer cross-contamination, pumping stress, and water quality from long-screened wells: What is sampled and what is not? . *Hydrogeology Journal*, 18:823-837.
- MDDELCC. (2018). Québec's groundwater monitoring network.
<http://www.environnement.gouv.qc.ca/eau/piezo/index.htm>.
- Méjean, P., Pinti, D. L., Larocque, M., Ghaleb, B., Meyzonnat, G., Gagné, S. (2016). Processes controlling ²³⁴U and ²³⁸U isotope fractionation and helium in the groundwater of the St. Lawrence Lowlands, Quebec: The potential role of natural rock fracturing. *Applied Geochemistry*, 66, 198-209.
- Mendizabal, I., Stuyfzand, P. J., Wiersma, A. P. (2011). Hydrochemical system analysis of public supply well fields, to reveal water-quality patterns and define groundwater bodies: The Netherlands. *Hydrogeology Journal*, 19(1), 83-100.
- Meyzonnat, G., Barbecot, F., Alvarado, J. A. C., Lauzon, J.-M., McCormack, R., Tognelli, A., Zeyen, H., Alazard, M. (2019). Borehole Heat Budget Calculator: A New Tool for the Quick Exploitation of High-Resolution Temperature Profiles by Hydrogeologists. *Journal of Water Resource and Protection*, 11(02), 122-147.
- Meyzonnat, G., Barbecot, F., Corcho-Alvarado, J. A., Tognelli, A., Zeyen, H., Mattei, A., McCormack, R. (2018). High-Resolution Wellbore Temperature Logging Combined with a Borehole-Scale Heat Budget: Conceptual and Analytical Approaches to Characterize Hydraulically Active Fractures and Groundwater Origin. *Geofluids*, ID 9461214.
- Miyakawa, K., Tanaka, K., Hirata, Y., Kanauchi, M. (2000). Detection of hydraulic pathways in fractured rock masses and estimation of conductivity by a newly developed TV equipped flowmeter. *Engineering Geology*, 56:19-27.
- Montcoudiol, N., Molson, J., Lemieux, J. M. (2014). Groundwater geochemistry of the Outaouais Region (Québec, Canada): a regional-scale study. *Hydrogeology Journal*, 23(2), 377-396.

- Mook, W. G. (1972). On the reconstruction of the initial ^{14}C content of groundwater from the chemical and isotopic composition. *8th Int. Conf. on Radiocarbon Dating, 1*, 342-352.
- Murphy, S., Ouelton, T., Ballard, J.-M., Lefebvre, R., Clark, I. D. (2010). Tritium–helium groundwater age used to constrain a groundwater flow model of a valley-fill aquifer contaminated with trichloroethylene (Quebec, Canada). *Hydrogeology Journal, 19*(1), 195-207.
- Musy, S. (2018). Groundwater Dating with Krypton-85 in combination with borehole logging. MSc Thesis, Neuchatel University, 73p.
- Nadeau, S., Rosa, E., Cloutier, V. (2017). Stratigraphic sequence map for groundwater assessment and protection of unconsolidated aquifers: A case example in the Abitibi-Témiscamingue region, Québec, Canada. *Canadian Water Resources Journal / Revue canadienne des ressources hydriques, 43*(2), 113-135.
- Nastev, M., Savard, M. M., Lapcevic, P., Lefebvre, R., Martel, R. (2004). Hydraulic properties and scale effects investigation in regional rock aquifers, south-western Quebec, Canada. *Hydrogeology Journal, 12*(3).
- Nir, A. (1964). On the interpretation of tritium ‘age’ measurements of groundwater. *Journal of Geophysical Research (1896-1977), 69*(12), 2589-2595.
- Oeschger, H., Gugelman, A., Loosli, H. H., Schotterer, U., Siegenthaler, U., Wiest, W. (1974). ^{39}Ar dating of groundwater, in Isotope Techniques in Groundwater Hydrology. *IAEA, Vienna, 179-190*.
- Oster, H., Sonntag, C., Munnich, K. O. (1996). Methodological Aspects of Groundwater Dating with CFC-11, CFC-12 and CFC-113. *Vom Wasser, 86*, 205-216.
- Ouelton, T., Lefebvre, R., Marcotte, D., Boutin, A., Blais, V., Parent, M. (2008). Hydraulic conductivity heterogeneity of a local deltaic aquifer system from the kriged 3D distribution of hydrofacies from borehole logs, Valcartier, Canada. *Journal of Hydrology, 351*(1-2), 71-86.
- Paillet, F. L. (1998). Flow modeling and permeability estimation using borehole flow logs in heterogeneous fractured formations. *Water Resources Research, 34*(5), 997-1010.
- Paillet, F. L. (2004). Borehole flowmeter applications in irregular and large-diameter boreholes. *Journal of Applied Geophysics, 55*(1-2), 39-59.
- Pal, A., Gin, K. Y., Lin, A. Y., Reinhard, M. (2010). Impacts of emerging organic contaminants on freshwater resources: review of recent occurrences, sources, fate and effects. *Sci Total Environ, 408*(24), 6062-6069.
- Parkhurst, D. L. (1995). *User's guide to PHREEQC: A computer program for speciation, reaction-path, advective-transport, and inverse geochemical calculations* (Vol. 95): US Department of the Interior, US Geological Survey.
- Peeters, F., Beyerle, U., Werner Aeschbach-Aertig, W., Holocher, J., Kipfer, R. (2003). Improving noble gas based paleoclimate reconstruction and groundwater dating using $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ ratios. *Geochimica et Cosmochimica Acta, 67*(4), 587-600.

- Pehme, P. E., Parker, B. L., Cherry, J. A., Greenhouse, J. P. (2010). Improved resolution of ambient flow through fractured rock with temperature logs. *Ground Water*, 48(2), 191-205.
- Pehme, P. E., Parker, B. L., Cherry, J. A., Molson, J. W., Greenhouse, J. P. (2013). Enhanced detection of hydraulically active fractures by temperature profiling in lined heated bedrock boreholes. *Journal of Hydrology*, 484, 1-15.
- Perrin, J., Parker, B. L., Cherry, J. A. (2011). Assessing the flow regime in a contaminated fractured and karstic dolostone aquifer supplying municipal water. *Journal of Hydrology*, 400(3-4), 396-410.
- Pinti, D. L., Béland-Otis, C., Tremblay, A., Castro, M. C., Hall, C. M., Marcil, J.-S., Lavoie, J.-Y., Lapointe, R. (2011). Fossil brines preserved in the St-Lawrence Lowlands, Québec, Canada as revealed by their chemistry and noble gas isotopes. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 75(15), 4228-4243.
- Pistre, S., Marliac, S., Jourde, H., Bidaux, P. (2002). New Combined Log and Tracer Test Interpretation Method for Identifying Transfers in Fissured Aquifers. *Groundwater*, 40(3), 232-241.
- Pitrak, M., Mares, S., Kopr, M. (2007). A simple borehole dilution technique in measuring horizontal ground water flow. *Ground Water*, 45(1), 89-92.
- Poulsen, D. L., Cook, P. G., Simmons, C. T., Solomon, D. K., Dogramaci, S. (2019). Depth - Resolved Groundwater Chemistry by Longitudinal Sampling of Ambient and Pumped Flows Within Long - Screened and Open Borehole Wells. *Water Resources Research*, 55(11), 9417-9435.
- Québec, G. d. (2014). Règlement sur le prélèvement des eaux et leur protection, chap. Q-2, r. 35.
- Quinn, P., Parker, B. L., Cherry, J. A. (2015). Blended head analyses to reduce uncertainty in packer testing in fractured-rock boreholes. *Hydrogeology Journal*, 24(1), 59-77.
- Raghavan, R. (2006). *Some observations on the scale dependence of permeability by pumping tests*. Water Resources Research, (42, 7).
- Raynauld, M., Peel, M., Lefebvre, R., Crow, H., Gloaguen, E., Molson, J., Ahad, J., Aquilina, L. (2014). *Local assessment of the risk on groundwater resources related to unconventional hydrocarbon development*. Paper presented at the EGU General Assembly Conference Abstracts.
- Read, T., Bour, O., Selker, J. S., Bense, V. F., Borgne, T. L., Hochreutener, R., Lavenant, N. (2014). Active-distributed temperature sensing to continuously quantify vertical flow in boreholes. *Water Resources Research*, 50(5), 3706-3713.
- Renken, R. A., Cunningham, K. J., Shapiro, A. M., Harvey, R. W., Zygnerski, M. R., Metge, D. W., Wacker, M. A. (2008). Pathogen and chemical transport in the karst limestone of the Biscayne aquifer: 1. Revised conceptualization of groundwater flow. *Water Resources Research*, 44(8).

- Richard, S. K., Chesnaux, R., Rouleau, A. (2016). Detecting a defective casing seal at the top of a bedrock aquifer. *GroundWater*, 54(2), 296-303.
- Roy, J., Morin, R., Chesnaux, R., Richard, S., Pino, D. S., Rouleau, A., Roy, D. W., Walter, J., Noël, D. (2011). Hydrogeological insight from geophysical water-well logging in hard rocks in the Saguenay region, Québec. *GeoHydro, Quebec, Canada. Proceedings Papers, DOC-2288*.
- Rozanski, K., Florkowski, T. (1979). *Krypton-85 dating of groundwater, In isotope hydrology 1979*.
- Saar, M. O. (2011). Review: Geothermal heat as a tracer of large-scale groundwater flow and as a means to determine permeability fields. *Hydrogeology Journal*, 19(1), 31-52.
- Saby, M., Larocque, M., Pinti, D. L., Barbecot, F., Gagne, S., Barnetche, D., Cabana, H. (2017, Feb 01). *Regional assessment of concentrations and sources of pharmaceutically active compounds, pesticides, nitrate, and E. coli in post-glacial aquifer environments (Canada)*. *Sci Total Environ*, (579).
- Saby, M., Larocque, M., Pinti, D. L., Barbecot, F., Sano, Y., Castro, M. C. (2016). Linking groundwater quality to residence times and regional geology in the St. Lawrence Lowlands, southern Quebec, Canada. *Applied Geochemistry*, 65, 1-13.
- Sander, R. (2015). Compilation of Henry's law constants (version 4.0) for water as solvent. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(8), 4399-4981.
- Sanders, D. F., Smith, Z. P., Guo, R., Robeson, L. M., McGrath, J. E., Paul, D. R., Freeman, B. D. (2013). Energy-efficient polymeric gas separation membranes for a sustainable future: A review. *Polymer*, 54(18), 4729-4721.
- Sanford, W. E. (1997). Correcting for Diffusion in Carbon-14 Dating of Ground Water. *GroundWater*, 35(2), 357-361.
- Sanford, W. E., Shropshire, R. G., Solomon, D. K. (1996). Dissolved gas tracers in groundwater: Simplified injection, sampling, and analysis. *Water Resources Research*, 32(6), 1635-1642.
- Santella, N., Ho, D. T., Schlosser, P., Stute, M. (2008). Widespread elevated atmospheric SF₆ mixing ratios in the Northeastern United States: Implications for groundwater dating. *Journal of Hydrology*, 349(1-2), 139-146.
- Savard, M. M. (2013). Inventaire canadien des ressources en eau souterraine: Caractérisation hydrogéologique régionale et intégrée du système aquifère fracturé du sud-ouest du Québec. *Commission géologique du Canada, Bulletin 587, 106 p.*
- Schulze-Makuch, D., Carlson, D. A., Cherkaueur, D. S., Malik, P. (1999). Groundwater -Scale dependency of hydraulic conductivity in heterogeneous media. *Ground Water*, 37, 6:904-919.
- Seabird-electronics. (2016). SBE 39Plus Temperature and (P) recorder. User manual 06/15/2016. 79 p.

- Sebol, L. A., Robertson, W. D., Busenberg, E., Plummer, L. N., Ryan, M. C., Schiff, S. L. (2007). Evidence of CFC degradation in groundwater under pyrite-oxidizing conditions. *Journal of Hydrology*, 347(1-2), 1-12.
- Shapiro, A. M. (2001). Effective matrix diffusion in kilometer-scale transport in fractured crystalline rock. *Water Resources Research*, 37(3), 507-522.
- Simard, G. (1977). Carbon 14 and tritium measurements of groundwaters in the Eaton River Basin and in the Mirabel area, Quebec. *Revue canadienne des sciences de la Terre*, 14(10), 2325-2338.
- Smethie, W. M., Solomon, D. K., Schiff, S. L., Mathieu, G. G. (1992). Tracing groundwater flow in the Borden aquifer using krypton-85. *Journal of Hydrology*, 130(1), 279-297.
- Spitler, J. D., Javed, S., Ramstad, R. K. (2016). Natural convection in groundwater-filled boreholes used as ground heat exchangers. *Applied Energy*, 164, 352-365.
- Stigter, T., Ribeiro, L., Carvalho, D. A. (2008). Building factorial regression models to explain and predict nitrates concentrations in groundwater under agricultural land. *J Hydrol* 357:42-56.
- Stuart, M., Lapworth, D., Crane, E., Hart, A. (2012). Review of risk from potential emerging contaminants in UK groundwater. *Sci Total Environ*, 416, 1-21.
- Stuiver, M. (1961). Variations in radiocarbon concentration and sunspot activity. *Journal of Geophysical Research*, 66(1), 273-276.
- Stumm, W., Morgan, J. J. (1996). Aquatic Chemistry: Chemical Equilibria and Rates in Natural Waters, 3rd ed., John Wiley & Sons, Inc., New York, 1022 pp.
- Stute, M. (1989). Edelgase im Grundwasser-Bestimmung von Palaotemperaturen und Untersuchung der Dynamik von Grundwasserfliesssystemen, Ph.D. thesis, University of Heidelberg.
- Stute, M., Forster, M., Frischkorn, H., Serejo, A., Clark, J., Schlosser, P., Broecker, W., Bonani, G. (1995). Cooling of tropical Brazil (5 °C) during the last glacial maximum. *Science*, 269(5222), 379-383.
- Suckow, A. (2012). Lumpy - an interactive Lumped Parameter Modeling code based on MS Access and MS Excel. *Geophysical Research Abstracts*, Vol. 14, EGU2012-2763, EGU General Assembly 2012.
- Suckow, A. (2014). The age of groundwater – Definitions, models and why we do not need this term. *Applied Geochemistry*, 50, 222-230.
- Sun, T., Hall, C. M., Castro, M. C., Lohmann, K. C., Goblet, P. (2008). Excess air in the noble gas groundwater paleothermometer: A new model based on diffusion in the gas phase. *Geophysical Research Letters*, 35(19).
- Szabo, Z., Rice, D., Plummer, L., Busenberg, E., Drenkard, S., Schlosser, P. (1996). Age dating of shallow groundwater with chlorofluorocarbons, tritium/helium: 3, and flow path analysis, Southern New Jersey Coastal Plain. *Water Resources Research*, 32(4), 1023-1038.
- Tamers, M. A. (1975). Validity of radiocarbon dates on groundwater. *Geophys. Surveys*, 2, 217-239.

- Tang, D. H., Frind, E. O., Sudicky, E. A. (1981). Contaminant transport in fractured porous media: Analytical solution for a single fracture. *Water Resources Research*, 17(3), 555-564.
- Taniguchi, M. (1993). Evaluation of vertical groundwater fluxes and thermal properties of aquifers based on transient temperature-depth profiles. *Water Resources Research*, 29(7), 2021-2026.
- Taniguchi, M., Shimada, J., Tanaka, T., Kayane, I. (1999a). Disturbances of temperature-depth profiles due to surface climate change and subsurface water flow: 1. An effect of linear increase in surface temperature caused by global warming and urbanization in the Tokyo Metropolitan Area, Japan. *Water Resources Research*, 35(5), 1507-1517.
- Taniguchi, M., Williamson, D. R., Peck, A. J. (1999b). Disturbances of temperature-depth profiles due to surface climate change and subsurface water flow: 2. An effect of step increase in surface temperature caused by forest clearing in southwest western Australia. *Water Resources Research*, 35(5), 1519-1529.
- Terraplus. (2014a). HFP-2293, heat-pulse Flowmeter probe. *User guide, Richmond Hill, ON, Canada*, 2 p.
- Terraplus. (2014b). QL 40 SFM, bidirectionnal spinner flowmeter. *User guide, Richmond Hill, ON, Canada*, 2 p.
- Terraplus. (2014c). QL-40 OBI, optical borehole imager. *User guide, Richmond Hill, ON, Canada*, 2 p.
- Terraplus. (2014d). Matrix Borehole Logging System. *User guide, Richmond Hill, ON, Canada*, 2 p.
- Thompson, G. M., Hayes, J. M., Davis, S. N. (1974). Fluorocarbon tracers in hydrology. *Geophysical Research Letters*, 4, 177-180.
- Tiedeman, C. R., Hsieh, P. A. (2001). Assessing an Open-Well Aquifer Test in Fractured Crystaline Rock. *GroundWater*, 39(1), 68-78.
- Tipping, E., Chamberlain, P., Bryant, C., Buckingham, S. (2010). Soil organic matter turnover in British deciduous woodlands, quantified with radiocarbon. *Geoderma*, 155(1-2), 10-18.
- Tolstikhin, I. N., Kamensky, I. L. (1969). Determination of groundwater age by the T-³He method. *Geochem. Int.*, 6, 810-811.
- Tóth, J. (1999). Groundwater as a geologic agent: An overview of the causes, processes, and manifestations. *Hydrogeology Journal*, 7(1), 1-14.
- USGS. (2005). Determining Age and Vertical Contribution of Ground Water Pumped from Wells in a Small Coastal River Basin. *Open-File Report 2005-1032 July 2005*, , 5 p.
- USGS. (2017). Reston Groundwater Dating Laboratory. Sampling procedures for CFCs, SF6, 3H and Noble gases. <https://water.usgs.gov/lab/>.
- USGS. (2018). Air curves CFCs SF6 and tritium. The Reston Groundwater Dating Laboratory. https://water.usgs.gov/lab/software/air_curve/.
- Vautour, G., Pinti, D. L., Méjean, P., Saby, M., Meyzonnat, G., Larocque, M., Castro, M. C., Hall, C. M., Boucher, C., Roulleau, E., Barbecot, F., Takahata, N.,

- Sano, Y. (2015). $^3\text{H}/^4\text{He}$, ^{14}C and (U-Th)/He groundwater ages in the St. Lawrence Lowlands, Quebec, Eastern Canada. *Chemical Geology*, 413, 94-106.
- Visser, A. (2009). Trends in groundwater quality in relation to groundwater age. *Netherlands Geographical Studies* 384, 188p.
- Visser, A., Broers, H. P., Purtzschert, R., Sültenfuß, J., de Jonge, M. (2013). Groundwater age distributions at a public drinking water supply well field derived from multiple age tracers (^{85}Kr , $^3\text{H}/^4\text{He}$, and ^{39}Ar). *Water Resources Research*, 49(11), 7778-7796.
- Visser, A., Fourré, E., Barbécot, F., Aquilina, L., Labasque, T., Vergnaud, V., Esser, B. K. (2014). Intercomparison of tritium and noble gases analyses, $^3\text{H}/^4\text{He}$ ages and derived parameters excess air and recharge temperature. *Applied Geochemistry*, 50, 130-141.
- Vogel, J. C. (1967). Investigation of groundwater flow with radiocarbon *Isotopes in hydrology*. International Atomic Energy Agency (IAEA), , pp. 355-369.
- Wachniew, P., Zurek, A. J., Stumpp, C., Gemitz, A., Gargini, A., Filippini, M., Rozanski, K., Meeks, J., Kvaerner, J., Witczak, S. (2016). *Towards Operational Methods for the Assessment of Intrinsic Groundwater Vulnerability: a Review*. Environmental Science and Technology.
- Walter, J., Chesnaux, R., Cloutier, V., Gaboury, D. (2017). The influence of water/rock – water/clay interactions and mixing in the salinization processes of groundwater. *Journal of Hydrology: Regional Studies*, 13, 168-188.
- Warner, M. J., Weiss, R. F. (1985). Solubilities of chlorofluorocarbons 11 and 12 in water and seawater. *Deep-Sea Research*, 32(12), 1485-1497.
- Weeks, E. P., Earp, D. E., Thompson, G. M. (1982). Use of atmospheric fluorocarbons F-11 and F-12 to determine the diffusion parameters of the unsaturated zone in the southern high plains of Texas. *Water Resour. Res.*, 15, 1365-1378.
- Weise, S., Moser, H. (1987). Groundwater dating with helium isotopes. Techniques in Water Resources Development. IAEA, Wien, pp. 105-126.
- Weiss, R. F. (1971). Solubility of helium and neon in water and seawater. *Journal of Chemical & Engineering Data*, 16(2), 235-241.
- Weiss, R. F., Price, B. A. (1980). Nitrous oxide solubility in water and seawater. *Marine Chemistry*, 8(4), 347-359.
- Yihdego, Y. (2016). Hydraulic In situ Testing for Mining and Engineering Design: Packer Test Procedure, Preparation, Analysis and Interpretation. *Geotechnical and Geological Engineering*, 35(1), 29-44.
- Zhang, H., Cloud, A. (2006). The permeability characteristics of silicone rubber. *In Proceedings of 2006 SAMPE, Fall Technical Conference*, 2006.
- Zhang, Y., Jung, Y., Freifeld, B., Finsterle, S. (2018). Using distributed temperature sensing to detect CO₂ leakage along the injection well casing. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 74, 9-18.

- Zogzas, N. P., Maroulis, Z. B. (1996). Effective moisture diffusivity estimation from drying data. A comparison between various methods of analysis. *Drying technologies*, 7(8), 1543-1573
- Zuber, A. (1986). Mathematical models for the interpretation of environmental radioisotopes in groundwater systems”, Handbook of Environmental Isotope Geochemistry, Vol. 2, Part B (FRITZ, P., FONTES, J.CH., Eds.) Elsevier, Amsterdam (1986) 1-59.