

**Variabilité spatio-temporelle du fonctionnement d'un  
aquifère karstique du Dogger : suivis hydrodynamiques  
et géochimiques multifréquences ; traitement du signal  
des réponses physiques et géochimiques**

Célestine Delbart

► **To cite this version:**

Célestine Delbart. Variabilité spatio-temporelle du fonctionnement d'un aquifère karstique du Dogger : suivis hydrodynamiques et géochimiques multifréquences ; traitement du signal des réponses physiques et géochimiques. Sciences de la Terre. Université Paris Sud - Paris XI, 2013. Français. NNT : 2013PA112290 . tel-00939300

**HAL Id: tel-00939300**

**<https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00939300>**

Submitted on 26 Mar 2014

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

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



UNIVERSITE PARIS-SUD

ÉCOLE DOCTORALE : MIPEGE

Laboratoire : Interactions et dynamiques des Environnements de Surface

*DISCIPLINE Sciences de la Terre*

THÈSE DE DOCTORAT

soutenue le 2 décembre 2013

par

**Célestine DELBART**

Variabilité spatio-temporelle du fonctionnement d'un aquifère  
karstique du Dogger

Suivis hydrodynamiques et géochimiques multifréquences

Traitement du signal des réponses physiques et géochimiques

Jury :

**Patrick Lachassagne**  
**Nicolas Massei**  
**Olivier Atteia**  
**Marie Larocque**  
**Christelle Marlin**  
**Florent Barbecot**  
**Danièle Valdés**  
**Antoine Tognelli**

Responsable, Danone Eaux France  
Professeur, Université de Rouen  
Professeur, Université de Bordeaux  
Professeur, GEOTOP, Montréal  
Professeur, Université Paris Sud  
Professeur, GEOTOP, Montréal  
Maitre de conférences, UPMC  
Ingénieur, CEA

**Rapporteur**  
**Rapporteur**  
**Examineur**  
**Examineur**  
**Examineur**  
**Directeur de thèse**  
**Co-directrice de thèse**  
**Encadrant de thèse**

---

---

## Résumé :

Les aquifères karstiques sont parmi les milieux souterrains les plus difficiles à caractériser. Ils sont connus pour avoir des réponses complexes aux événements pluvieux en raison de l'hétérogénéité de la porosité allant de la porosité matricielle (micro-porosité) à la porosité de conduits (macro-porosité). La porosité de conduits génère des vitesses de transfert élevées au sein de l'aquifère, à l'origine de la vulnérabilité des aquifères karstiques. L'objectif de cette thèse est de définir les modalités du transfert de l'eau et des solutés au sein d'un aquifère karstique du Dogger situé en Bourgogne. Deux approches complémentaires ont été utilisées : (i) l'analyse de chroniques piézométriques et débitométriques à partir d'outils de traitement du signal et (ii) une caractérisation géochimique et isotopique des eaux souterraines basée sur l'utilisation d'une large palette de traceurs, notamment des traceurs de datation. Ces deux approches ont été appliquées à différentes échelles temporelles : un suivi haute fréquence (jusqu'à 1h) lors de pics de crue pour étudier les transferts rapides et un suivi à long terme (pluri-annuel) pour caractériser les transferts lents et étudier la variabilité saisonnière des modalités d'écoulement. Ce travail a permis de mettre en évidence une très large distribution des temps de résidence de l'eau souterraine, de quelques heures, lors d'événements de crue souligné par des temps de réponse pluie-niveau piézométrique faible (inférieurs à 70 h) à quelques années pour l'écoulement de base mis en évidence par l'utilisation de traceurs de datation ( $^{39}\text{Kr}$ , CFC-12 et  $\text{SF}_6$ ). En réponse aux précipitations, différentes masses d'eau ont pu être décrites : (i) une eau à vitesse d'écoulement lente, qui correspond à l'écoulement de base mis en évidence par l'utilisation des traceurs de datation ; (ii) une eau de recharge rapide dont le temps de résidence au sein de l'aquifère varie, selon les porosités empruntées, de quelques heures à quelques jours soulignés grâce au suivi en continu de la conductivité électrique, des éléments majeurs et du tritium ; et (iii) des eaux stockées au sein de la zone non saturée, remobilisées lors de pics de crue mises en évidence par la variation des compositions géochimiques en tritium et  $\text{Ca}^{2+}$  des eaux souterraines lors de pics de crue. Malgré une forte hétérogénéité des processus d'écoulement, une logique spatiale des écoulements rapides apparaît. Le temps de réponse du niveau piézométrique à un événement pluvieux et le temps de résidence augmentent vers l'aval du dôme hydrogéologique. L'étude temporelle de la réponse impulsionnelle par la méthode du corrélogramme croisé coulissant montre que le temps de réponse des niveaux piézométriques aux précipitations varie de façon saisonnière, et est plus court en été. La variation du temps de réponse pour un forage entre été et hiver est significative et peut atteindre une centaine d'heures. Cette variabilité temporelle s'explique en partie par une variabilité temporelle de l'intensité des pluies (plus importantes en été) qui induit une variation des mécanismes d'écoulement au sein de l'épikarst. Lors d'événements de pluie intense, la saturation de l'épikarst est plus importante provoquant des transferts latéraux en son sein et permettant de transférer les eaux vers les conduits les plus ouverts.

---

## Abstract :

The karst aquifer are among the aquifer the most difficult to characterize. They are known to be characterized by complex hydrological responses to rainfall event due to the high heterogeneity of porosity, from matrix porosity to conduit porosity. The porosity of conduit induces a high transfer velocity in the aquifer which is the cause of the karst aquifer vulnerability. The study objective is to define the modality of water transfer and solute in a karst aquifer of Dogger in Burgundy. Two complementary methods are used : (i) the analyse of piezometric and debitmetric time series, (ii), the geochemical and isotopical characterization of groundwater based on the using of large panel of tracers, notably some dating tracers. These two methods are applied at different temporal scales : a high frequency monitoring (1 hour time step) during discharge event to study fast water transfer and a long time monitoring to characterize slow water transfer and study the seasonal variability of water transfer processes. This study allow to prove a large distribution of residence time of groundwater, from several hours during recharge event underlined by short response time rainfall-piezometric level (less to 70 hours) to several years for the baseflow showed by the using of dating tracers ( $^{39}\text{Kr}$ , CFC-12 et  $\text{SF}_6$ ). In response of rainfall event, several water bodies can be described : (i) a water body with slow transfer velocity ; it is the baseflow ; showed by dating tracers ; (ii) a direct recharge, whose the residence time in the karst aquifer varies depending on the porosity, from several hours to several days, underlined by a continuous monitoring of electrical conductivity, of major element and tritium ; and (iii), stored water in unsaturated zone, remobilized during recharge event, showed by the variation of geochemical composition in tritium and  $\text{Ca}^{2+}$  in groundwater during recharge event. Despite of the high heterogeneity of water transfer processes, the fast water transfer is spatially organized. The response time of piezometric level to rainfall event and the residence time increase toward the aval of hydrogeological hill. The temporal study of impulse response by the method of the sliding-window cross-correlation shows that the response time varies seasonally, it is shorter during the summer. The variability of response time is significantly, until a hundred hours. This temporal variability could be explained in part by a variability of the rainfall intensity which induces a variability of water flow processes in the epikarst. During intensive rainfall, the saturation of epikarst is higher which induces lateral transfers and allows transferring water toward large conduits.

---

## Remerciements

Et voilà, après 3 ans et quelques mois, cette aventure touche à sa fin. Elle n'aurait pas pu se dérouler et s'achever si bien sans le soutien d'un si grand nombre. Je vais donc profiter avec grand plaisir de cette partie qui m'est offerte!!

J'aimerais tout d'abord remercier les membres du jury qui ont accepté de juger mon travail : Patrick Lachassagne et Nicolas Massei, pour avoir accepté le rôle de rapporteurs du manuscrit, Christelle Marlin pour son rôle de Présidente du Jury et enfin Nicolas Atteia et Marie Larocque (merci Marie d'être venue de si loin) en tant qu'examineurs.

Je remercie ensuite mes trois directeurs de thèse. Merci beaucoup tout d'abord de m'avoir proposé ce sujet de thèse et d'avoir cru en moi du début à la fin!

Merci Florent pour le soutien tout au long de cette aventure, merci pour ton aide pour aborder ce sujet de thèse, pas toujours évident, pour avoir su m'éclairer au moment où le ciel (de la recherche) était obscur (enfin pas en Bourgogne malheureusement) et enfin pour m'avoir démontré que les traceurs " virtuels " sont aussi des outils très intéressants pour comprendre l'hydrogéologie! Pas simple tous les jours cette relation à distance directeur/thésarde, mais le Canada, ça a aussi du bon! Merci de m'avoir fait découvrir le Québec, une autre culture de la recherche et une vision de la vie. Je n'oublierai pas notre balade avec les baleines!

Danièle, cette aventure n'aurait pas existé s'il y a cinq ans, tu ne m'avais pas fait tomber dans la marmite du karst! Merci de m'avoir fait découvrir les joies du traitement du signal, des préleveurs automatiques et de l'absence de pluie! Merci pour le soutien scientifique et moral tout au long de cette aventure! Et tout ça toujours avec la bonne humeur qui te caractérise!

Merci Antoine, le oui-oui du bricolage et de l'hydrologie! Merci, merci! Sans toi et ta motivation permanente, je ne suis pas sûre que cette thèse se serait passée aussi bien! Je pense qu'on peut te décerner le titre de " super-encadrant de thèse ". Merci d'avoir accepté de venir sur le terrain, à tout moment, à toute heure de la nuit ou du jour et dans toutes les conditions météorologiques (Merci aussi à Laëtitia!). Je suis désolée d'avoir parfois dit stop à ton imagination, mais je te jure, le bulldozer pour mesurer le débit d'une source et recouvrir une source de placo-isolant, c'est peut être un peu trop! Tu as déjà suffisamment de travaux chez toi! Merci pour la bonne ambiance que tu as apportée aux missions de terrain mais également au laboratoire! Merci aussi de m'avoir poussée à me poser tant de questions, je pense que sans ces 100 000 questions (et encore je pense que l'estimation est légèrement basse), je ne maîtriserais pas autant le karst!

Je pense qu'on peut qualifier cette thèse de " multi " ! Multi-sites d'étude, multi-traceurs, et multi-laboratoires. Je veux ainsi remercier tous les gens que j'ai côtoyés pendant cette thèse, qui m'ont aidée et soutenue, en espérant n'oublier personne...

Merci à Laurent Couchoux, pour le support technique sur place! Sans toi, on n'aurait pas eu autant de données! Merci de ne pas avoir raccroché le téléphone quand je t'appelais 3 fois par jour pour savoir s'il pleuvait à Valduc! Merci pour les heures que tu as passées sur le terrain, à te battre avec les préleveurs automatiques! Merci aussi pour ton humour et ta bonne humeur!

Merci Patricia, Aude et Marjorie, je vous remets le titre de docteur en " collages d'étiquettes et filtrations d'échantillons! " Merci pour votre aide! Merci Patrick pour le soutien " radon " et traitement du signal. Merci Pierre pour le soutien " géochimie " grâce à toi, je sais à quoi ressemble Chess et surtout comment ça s'écrit! Merci à Sophie de m'avoir supportée dans ton bureau! Merci Patricia, pour ton soutien tout au long de ces trois ans. Tu m'as beaucoup aidée, des devis aux préparations des missions de terrain jusqu'à la récupération des données! Mais également de m'avoir appris tant de choses en botanique! Grâce à toi, maintenant, mon bureau est beaucoup plus agréable à vivre avec toutes ces plantes! Je suis ravie de t'avoir rencontrée. Je tenais également à remercier Christophe Moulin et Ghislaine Guinois du CEA qui m'ont intégrée au sein de leur service et laboratoire, merci pour votre soutien. Merci à tous mes collègues du CEA de Valduc et de Bruyères le Châtel.

Merci à l'équipe de Sisyphe! Je tenais à remercier tout particulièrement Pierre Ribstein qui m'a intégrée au sein de son laboratoire. Merci à tous les thésards, Brigodidonou, Pierre Gsell, Adrien, Claire, Cyrielle (allez, courage, c'est bientôt la fin!), Sarah, Thibault, Juliette, Moussu, Nejla, Polinux... pour cette ambiance si agréable au sein de ce laboratoire. Je tenais à faire une dédicace spéciale aux " thésards du voyage ", merci pour la cohabitation!

Merci à l'équipe d'IDREau d'Orsay! Je tenais à remercier tout particulièrement Jean-Luc Michelot qui m'a intégrée au sein de son laboratoire. Merci Aurélie, Karine et Léonora pour l'aide que vous m'avez apportée sur le terrain, d'avoir accepté de partir du jour au lendemain, quand il se mettait à pleuvoir! Merci à Aurélie, Marc et Gaël pour les analyses (désolée d'avoir provoqué tant de pannes sur les machines sans même les approcher!) Merci Aurélie, pour ta bonne humeur, les gâteaux délicieux (et si peu caloriques!)! Merci Delphine, merci Mélanie, merci Gildas, merci Olga! Merci pour la bonne ambiance!

Merci à la famille Tognelli (pour le support technique à toutes heures), à Rita (pour les petits plats réconfortants après les journées de terrain), à François Alban (pour les missions de terrain), à Roland Purtschert et à Elise Fourre (pour la découverte de l'échantillonnage et l'analyse des traceurs de datation).

Merci à ma famille et mes amis pour le soutien! Je tiens à remercier tout d'abord mes parents, sans qui cette aventure n'aurait jamais eu lieu et oui, si vous n'aviez pas envoyé ce dossier à l'ENS en cachette, je n'aurais jamais vécu cette aventure. Je tiens à remercier particulièrement ma mère et ma sœur, merci d'avoir accepté de relire cette thèse en un week-end (mais également tous les posters, tous les résumés!, enfin tout ce que j'ai pu écrire pendant ces trois ans...!!!) mais maintenant, vous pouvez jouer au scrabble, je pense que "corrélogramme croisé coulissant"

ça doit rapporter un maximum de points ; mon père, merci de m'avoir soutenue pendant trois ans mais aussi toutes les années d'avant, dommage que tu n'aies pas vu le final, mais tu viendras à la prochaine ! ; à ma grand-mère pour les nombreux gâteaux, merci d'être venue à ma soutenance de thèse, ça m'a fait extrêmement plaisir. Merci Kristel, pour ton aide, ton soutien pendant ces trois ans et tes envies de voyages ! Merci à Nadine, Gisèle, Victoire, Félix, Mathilde, Bérengère, Sophie, Charlotte, Gitan, Zoé, Julien et tous les autres et un gros bisou à ma petite Colette ! Enfin, je voulais remercier tout particulièrement Alexis, qui a toujours su me remonter le moral et qui a toujours cru en moi. Merci de m'avoir soutenue pendant ces trois ans, cette thèse est aussi un peu la tienne...

A tous, merci !





# Table des matières

<b>Résumé</b>	<b>3</b>
<b>Table des matières</b>	<b>9</b>
<b>Liste des figures</b>	<b>15</b>
<b>Liste des tableaux</b>	<b>23</b>
<b>Introduction générale</b>	<b>25</b>
<b>1 Contexte général</b>	<b>29</b>
1.1 Caractéristiques, fonctionnement et méthodes d'étude des aquifères karstiques . . .	30
1.1.1 Caractéristiques des aquifères karstiques . . . . .	30
1.1.1.1 Les processus de karstification . . . . .	31
1.1.1.2 Porosité multiple : origine de l'hétérogénéité des systèmes karstiques .	32
1.1.1.3 Les différents types d'aquifères karstiques . . . . .	33
1.1.2 Fonctionnement des aquifères karstiques . . . . .	34
1.1.2.1 Description et fonctionnement des différentes parties d'un aquifère karstique . . . . .	34
1.1.2.2 Schémas conceptuels des aquifères karstiques . . . . .	37
1.1.3 Méthodes d'étude des systèmes karstiques . . . . .	37
1.1.3.1 Caractérisation de la structure des aquifères karstiques . . . . .	39
1.1.3.2 Etude de chroniques de sortie (débit, niveau piézométrique) . . . . .	40
1.1.3.3 Traçages . . . . .	43
1.1.3.4 Modélisation des aquifères karstiques . . . . .	45
1.2 Présentation du site d'étude . . . . .	49
1.2.1 Contexte géographique . . . . .	49
1.2.2 Contexte climatique . . . . .	50
1.2.3 Géologie du site d'étude . . . . .	51
1.2.3.1 Contexte géologique régional . . . . .	51
1.2.3.2 Description des couches sédimentaires . . . . .	54

1.2.4	Hydrogéologie : un milieu à triple porosité . . . . .	55
1.2.4.1	Porosité de matrice . . . . .	57
1.2.4.2	Porosité de fractures . . . . .	58
1.2.4.3	Porosité de conduits . . . . .	59
1.2.5	Sols et épikarst . . . . .	59
1.2.5.1	Structure et propriétés des sols . . . . .	59
1.2.5.2	L'épikarst . . . . .	60
<b>2</b>	<b>Matériel et méthodes</b>	<b>63</b>
2.1	Mesures in-situ et traitement analytique . . . . .	65
2.1.1	Mesures en continu . . . . .	67
2.1.1.1	Mesure de la pluviométrie . . . . .	67
2.1.1.2	Mesure des paramètres hydrodynamiques : niveau piézométrique et débit . . . . .	68
2.1.1.3	Mesure des paramètres physico-chimiques (conductivité électrique, pH et température de l'eau) . . . . .	69
2.1.2	Mesures géochimiques ponctuelles . . . . .	69
2.1.2.1	Stratégie d'échantillonnage . . . . .	69
2.1.2.2	Prélèvements autonomes . . . . .	70
2.1.2.3	Prélèvements en forages peu productifs : mise au point d'un protocole d'échantillonnage . . . . .	72
2.1.2.4	Mesure de la composition géochimique des eaux souterraines . . . . .	74
2.2	Récapitulatif des données disponibles . . . . .	79
2.3	Méthodes d'analyse des données acquises . . . . .	81
2.3.1	Analyses corrélatoires et spectrales . . . . .	81
2.3.1.1	Pré-requis . . . . .	81
2.3.1.2	L'autocorrélation . . . . .	82
2.3.1.3	La fonction de densité spectrale . . . . .	85
2.3.1.4	La corrélation croisée . . . . .	86
2.3.1.5	Le spectre croisé . . . . .	88
2.3.1.6	La fonction de cohérence . . . . .	89
2.3.1.7	La fonction de gain . . . . .	90
2.3.1.8	Corrélogramme croisé à fenêtre glissante . . . . .	91
2.3.2	Traceurs environnementaux des eaux souterraines : principe et méthode d'interprétation . . . . .	93
2.3.2.1	Paramètres physico-chimiques de l'eau : température (T), conductivité électrique (EC) et pH . . . . .	93
2.3.2.2	Traceurs du système calco-carbonique . . . . .	95
2.3.2.3	Les anions et cations majeurs indépendants de l'équilibre calco-carbonique . . . . .	98
2.3.2.4	Les isotopes stables . . . . .	100

2.3.2.5	Les traceurs de datation . . . . .	103
2.3.2.6	Méthodes de décomposition d'hydrogramme de crue . . . . .	108
<b>3</b>	<b>Etude de l'aquifère karstique par traitement du signal de données hydrodynamiques (pluie-débit-piézométrie)</b>	<b>111</b>
3.1	Caractérisation du forçage d'entrée du système : la pluviométrie . . . . .	113
3.2	Présentation des chroniques piézométriques et débitométriques - critique de la qualité des données . . . . .	116
3.2.1	Présentation des chroniques piézométriques et débitométriques . . . . .	116
3.2.1.1	Les forages de la nappe supérieure . . . . .	116
3.2.1.2	Les sources de la nappe supérieure . . . . .	117
3.2.1.3	La rivière, la Douix de Léry. . . . .	117
3.2.2	Qualité des chroniques : quel est l'impact des lacunes sur les fonctions d'autocorrélation et de corrélation croisée ? . . . . .	119
3.2.2.1	Principe . . . . .	119
3.2.2.2	Résultats . . . . .	119
3.3	Apports des méthodes de traitement du signal de chroniques hydrodynamiques . . . . .	122
3.3.1	Principe . . . . .	122
3.3.2	Résultats . . . . .	123
3.3.2.1	Les fonctions d'autocorrélation . . . . .	123
3.3.2.2	Les fonctions de densité spectrale . . . . .	126
3.3.2.3	Les fonctions de corrélation croisée pluie-niveau piézométrique . . . . .	128
3.3.2.4	Les fonctions de gain . . . . .	131
3.3.2.5	Les fonctions de cohérence . . . . .	133
3.3.2.6	Synthèse des résultats obtenus à partir des analyses corrélatrices et spectrales . . . . .	134
3.4	Etude spatiale de la fonction de transfert entre pluviométrie et niveau piézométrique	136
3.4.1	Variabilité spatiale du temps de réponse . . . . .	136
3.4.2	Schéma conceptuel des écoulements rapides . . . . .	137
3.4.3	Mise en évidence d'un transfert de masse à partir de traçages artificiels . . . . .	140
3.5	Variabilité temporelle de la réponse impulsionnelle . . . . .	142
3.5.1	Résumé en français . . . . .	142
3.5.2	Résumé en anglais . . . . .	143
3.5.3	Introduction . . . . .	143
3.5.4	Study area . . . . .	146
3.5.5	Data acquisition . . . . .	148
3.5.6	Auto-correlation, cross-correlation and sliding-window cross-correlation methods . . . . .	149
3.5.6.1	Auto-correlations and cross-correlations . . . . .	149
3.5.6.2	Sliding window cross-correlation method . . . . .	150

3.5.7	Results . . . . .	151
3.5.7.1	Rainfall and piezometric level time series description . . . . .	152
3.5.7.2	Application of the sliding-window cross-correlation method . . . . .	152
3.5.8	Discussion . . . . .	154
3.5.9	Conclusion . . . . .	158
3.6	Conclusion sur l'apport de l'étude de chroniques hydrodynamiques pour la compréhension du système karstique . . . . .	159
<b>4</b>	<b>Etude de l'aquifère karstique à partir de traceurs géochimiques et isotopiques</b>	<b>161</b>
4.1	Une large distribution des temps de résidence des eaux souterraines . . . . .	163
4.1.1	Variabilité spatio-temporelle de la conductivité électrique des eaux souterraines	163
4.1.2	Signatures isotopiques, $\delta^{18}\text{O}$ et $\delta^2\text{H}$ , des eaux souterraines : variabilité saisonnière du gradient altitudinal . . . . .	165
4.1.3	Relation entre le temps de résidence et le débit moyen des sources . . . . .	166
4.1.4	Augmentation du temps de résidence des eaux souterraines de l'amont vers l'aval de l'hydrosystème . . . . .	167
4.2	Variabilité des mécanismes d'écoulement des eaux souterraines . . . . .	169
4.2.1	Transferts rapides en réponse à un événement pluvieux . . . . .	170
4.2.1.1	Arrivée rapide d'eau de surface . . . . .	171
4.2.1.2	Remobilisation d'eau ancienne stockée dans la zone non saturée . . . . .	176
4.2.1.3	Mise en évidence de plusieurs masses d'eau, transférées depuis la surface ou remobilisées, lors d'un pic de crue au niveau d'une source	179
4.2.2	Écoulements lents au sein de l'aquifère karstique . . . . .	181
4.2.2.1	Écoulement lent et diffus à travers la zone non saturée mis en évidence au niveau du forage A2 . . . . .	181
4.2.2.2	Déphasage entre la variation du niveau piézométrique et la variation de la composition géochimique . . . . .	183
4.2.2.3	Mise en évidence de transfert de pression sans transfert de masse . . . . .	184
4.2.3	Les différents transferts au sein de l'aquifère . . . . .	185
4.3	Variabilité saisonnière des processus de recharge . . . . .	187
4.3.1	Une réponse aux événements pluvieux fonction des conditions initiales . . . . .	187
4.3.2	Variabilité saisonnière de la recharge efficace . . . . .	188
4.3.3	Variabilité saisonnière de la conductivité, de la température et de la composition géochimique et isotopique des eaux souterraines au niveau des sources	190
4.3.3.1	Variabilité saisonnière de la température des eaux souterraines au niveau des sources . . . . .	190
4.3.3.2	Variabilité saisonnière de la conductivité électrique des eaux souterraines . . . . .	191
4.3.3.3	Variabilité saisonnière de la composition géochimique et isotopique des eaux souterraines . . . . .	192

---

4.4 Apports et limites des traceurs de datation dans la compréhension du fonctionnement de l'aquifère karstique . . . . .	195
4.4.1 Tritium/hélium . . . . .	195
4.4.2 $^{85}\text{Kr}$ et $^{39}\text{Ar}$ . . . . .	196
4.4.3 CFC-12 et $\text{SF}_6$ . . . . .	198
4.5 Conclusion sur l'apport de l'utilisation de traceurs géochimiques et isotopiques pour la compréhension du système karstique . . . . .	201
<b>5 Conclusion générale</b>	<b>203</b>
<b>Annexes</b>	<b>225</b>



## Table des figures

1.1	Schéma d'un aquifère karstique. Un aquifère karstique se différencie des aquifères fracturés ou poreux par la présence de conduits ouverts ou de rivières souterraines qui induisent des vitesses de transfert potentiellement très rapides (Bakalowicz, 2003).	31
1.2	Les différentes zones constituant un système karstique (modifié depuis Jeannin and Grasso, 1995)	34
1.3	Modèles conceptuels des aquifères karstiques, (a) Mangin (1975), (b) White (2002), (c) Bakalowicz (2003).	38
1.4	Schéma de l'hydrogramme d'une source (Kovacs et al., 2008)	42
1.5	Présentation du modèle de Mangin (1970). Le modèle est constitué de deux réservoirs indépendants, un représentant la zone noyée et l'autre la zone d'infiltration. Le réservoir représentant la zone noyée est décrit par le modèle de Maillet. Celui représentant la zone d'infiltration a été établi empiriquement ( $\alpha$ est le coefficient de tarissement, $q_0$ est le débit d'infiltration à l'instant $t_0$ , $\epsilon$ le coefficient d'hétérogénéité d'écoulement et $\eta$ le coefficient de vitesse d'infiltration) (modifié à partir de Marsaud, 1997).	43



1.6	Exemples de modèles réservoirs (Jukic et Denic-Jukic, 2009 ; Geyer et al., 2008 ; Fleury et al., 2007).	46
1.7	Localisation du site d'étude.	49
1.8	Topographie de la zone d'étude (Fond de carte, IGN 2003a).	50
1.9	Caractéristique des précipitations. (a) Précipitations mensuelles moyennes et températures mensuelles moyennes (période 1993-2012, Station MétéoFrance de Saint Martin du Mont). (b) Intensité moyenne mensuelle des précipitations et nombre d'heures de pluie moyen par mois (10/2006-09/2012). L'intensité moyenne des pluies, en mm/h, est définie comme la moyenne des intensités de pluie, en mm/h, en ne prenant en compte que les pluies supérieures à zéro.	51
1.10	Coupe géologique du seuil de Bourgogne (Rat, 2006).	52
1.11	Géologie sur le site d'étude. Localisation des limites du bassin versant associé à la rivière Douix de Léry, du dôme topographique et du Centre CEA de Valduc. Fond cartographique BRGM (2004)	53
1.12	Echelle lithostratigraphique	55
1.13	Carte piézométrique de la zone d'étude.	56
1.14	Les différents types de porosités observables sur le site d'étude : fractures à l'échelle d'une carotte de roche (a), réseau poreux matriciel intergranulaire sur lame mince (b) et karsts plurimétriques à l'affleurement (c et d).	57
1.15	Propriétés réservoirs par unité lithostratigraphique (Alban, 2010)	58
1.16	Horizons constituant le sol du site d'étude (fosses pédologiques).	60
1.17	Densité de fractures en fonction de la profondeur sur trois forages de la nappe supérieure.	61
2.1	Carte de localisation des sources et forages échantillonnés.	65
2.2	Comparaison des mesures de la pluie au niveau de la station Saint Martin du Mont (Météo France) et sur le site (au niveau du forage F7) sur la période de février 2008 à février 2009.	67
2.3	Photomontage des différents types de préleveur utilisés : préleveur ISCO 3700 (a et b), préleveurs Avalanche ISCO réfrigérés (c) et pluvio-collecteur (d).	71
2.4	Prélèvement d'eau au niveau du forage F7. (a) Schéma du montage pour le prélèvement d'eau souterraine dans le forage F7 (niveau de nappe à -52 m/sol). Trois mètres séparent les forages F1 et F7, ils ont un comportement piézométrique identique. La conductivité électrique, le pH et la température de l'eau sont mesurés dans le forage F1. (b) Evolution des paramètres physico-chimiques durant un pompage au niveau du forage F7 et détermination de la durée du pompage afin de réaliser un échantillonnage représentatif de la nappe.	72

2.5	Résultats des tests d'échantillonnages lors de pompage en forage pour le radon (a) et le tritium (b). Le premier échantillonnage a lieu au début du pompage après vidange du volume mort. Le second a lieu soit quand les paramètres physico-chimiques sont stabilisés (forage B4), soit quand la colonne d'eau du forage est entièrement rabattue (forages C2, B3 et A4D). Le troisième échantillonnage a lieu lorsque le niveau d'eau est suffisamment remonté pour permettre un échantillonnage. . . . .	73
2.6	Mesure du Radon dans l'eau. (a) Compteur à photomultiplicateur Margnac. (b) Dégazage de l'échantillon d'eau dans une fiole scintillante (Richon, 2011). (c) Détermination du réglage optimal de la THT des photomultiplicateurs : le réglage optimal de la THT se situe au milieu du plateau de la courbe de l'évolution du comptage en fonction de la tension d'alimentation des photomultiplicateurs. . . . .	78
2.7	Chronique du débit d'une source de l'aquifère Almyros durant le cycle hydrologique (1996-1997) (a) et du niveau piézométrique de l'aquifère Trifilia (b) durant le cycle hydrologique (2001-2002) (Panagopoulos et al., 2006) . . . . .	82
2.8	Exemple de calage d'une fonction logarithmique sur la fonction d'autocorrélation d'une chronique de conductivité électrique (Massei et al., 2006) . . . . .	83
2.9	Exemples d'autocorrélogramme de la pluie et du débit de deux aquifères karstiques. EM1 et EM2 correspondent respectivement aux effets mémoires pour $r(k)$ égale à 0.2 (selon Mangin(1984)) pour l'aquifère Almyros et l'aquifère Trifilia (modifié depuis Panagopoulos et al., 2006). . . . .	84
2.10	Exemples de fonctions de densité spectrale de la pluie et du débit de deux aquifères karstiques (Panagopoulos et al., 2006) . . . . .	86
2.11	Exemples de fonctions de corrélation croisée pluie-débit de deux aquifères karstiques (Panagopoulos et al., 2006) . . . . .	87
2.12	Exemples de fonctions de cohérence du débit de deux aquifères karstiques (Panagopoulos et al., 2006) . . . . .	90
2.13	Exemples de fonction de gain du débit de deux aquifères karstiques (Panagopoulos et al., 2006) . . . . .	91
2.14	Principe du corrélogramme croisé coulissant. TR correspond au temps de réponse.	92
2.15	Distribution des fréquences de conductivité (Bakalowicz, 1979) . . . . .	94
2.16	: Relations et constantes d'équilibre du système calco-carbonique (Bakalowicz, 1992). (X) est l'activité de l'espèce X et m dans $mX$ est la molalité de X. . . . .	96
2.17	Le cycle de l'eau et évolution du rapport Br/Cl (Barbecot, 1999) . . . . .	99
2.18	Schéma des sources de carbone et leur signature isotopique $\delta^{13}C$ et $A^{14}C$ (modifié depuis Gillon et al., 2012). . . . .	101
2.19	Signature $\delta^{13}C$ du $CO_2$ du sol mesurée sur le site d'étude en fonction de la profondeur du prélèvement. . . . .	102

2.20	Traceurs isotopiques et chimiques utilisés pour l'estimation de l'âge des eaux souterraines (IAEA, 2013).	104
2.21	Exemples de modèles de mélange utilisés pour la datation des eaux souterraines (Jurgens et al. 2012).	104
2.22	Concentrations atmosphériques en CFCs et SF <sub>6</sub> en Amérique du Nord (Cook and Herczeg, 1999).	105
3.1	Pluie horaire (histogramme gris) et précipitations cumulées par année (courbe noire).	113
3.2	Précipitations annuelle par cycle hydrologique (a) et précipitations mensuelles par cycle hydrologique (b).	113
3.3	Moyenne mensuelle de l'intensité des précipitations (figuré croix) et nombre d'heures de pluie par mois (figuré point).	114
3.4	Fonctions d'autocorrélation de la pluie sur la période du 16/06/2007 au 15/06/2011 et sur cinq cycles hydrologiques compris entre oct 2007 et sept 2012.	114
3.5	Fonctions de densité spectrale de la pluie à pas journalier sur la période du 16/06/2007 au 15/06/2011 et sur le cycle hydrologique 2010-2011.	115
3.6	Chroniques pluviométriques, piézométriques et débitométriques de la nappe supérieure. Les fortes diminutions du niveau piézométrique, au niveau des forages F7, C4, S5 et C2 sont liées à des pompages effectués ponctuellement (F- correspond au forage, S- correspond au source).	118
3.7	Fonctions d'autocorrélation du niveau piézométrique (a,c) et corrélation croisée pluie-niveau piézométrique (b,d) selon la taille des lacunes introduites.	120
3.8	Schéma du principe des méthodes de traitement du signal appliquées à l'hydrodynamique : la chronique de pluie, est transformée en une chronique de piézométrique, par une fonction de transfert que les méthodes de traitement du signal essaye d'approcher. La fonction de transfert représente le système karstique.	122
3.9	Fonctions d'autocorrélation des niveaux piézométriques et des débits sur les périodes A (a et b) et B (c). Les calculs sont effectués avec un décalage temporel d'une heure. Sur la figure b, les pentes interpolées sur la fonction d'autocorrélation du piézomètre S3 illustrent la méthode utilisée pour "quantifier" l'inertie des différents piézomètres. La droite 1 traduit l'inertie des écoulements rapides, la droite 2 l'inertie des écoulements plus lents ou de base.	124
3.10	Fonctions de densité spectrale des niveaux piézométriques pour la période A et la période B.	127
3.11	Fonctions de corrélation croisée entre la pluie et le niveau piézométrique ou le débit sur les périodes A et B. Les calculs sont effectués à pas de temps horaire.	129
3.12	Paramètres déduits de la fonction de corrélation croisée. TR correspond au temps de réponse, $r(k)_{max}$ , le coefficient de corrélation maximum et L, la largeur du pic.	130
3.13	Fonctions de gain entre la pluie et le niveau piézométrique sur les périodes A et B.	132

3.14 Temps de réponse (pluie-niveau piézométrique) des différents piézomètres (période A) en fonction de l'épaisseur de la zone non saturée . . . . .	136
3.15 Temps de réponse (pluie-niveau piézométrique) des différents piézomètres (période A) en fonction de la distance au dôme. La distance au dôme est définie comme la distance entre le haut du dôme hydrologique et le forage. . . . .	137
3.16 Schéma du modèle conceptuel expliquant l'augmentation du temps de réponse en fonction de la distance au dôme. . . . .	138
3.17 Variabilité de différents paramètres en fonction de la distance au dôme : (a) pente de l'autocorrélation (plus la pente est forte, moins le signal est inertiel), (b) largeur de la fonction de corrélation croisée, (c) fréquence de coupure, (d) période à laquelle le gain vaut 0,4, représentant la durée des transferts rapides, (e) temps de réponse sur la période B et coefficient de corrélation de la fonction de corrélation croisée, période B. . . . .	139
3.18 Conductivité et débit de la source R14. La source R14 se situe en aval des bassins de la station d'épuration. Les rejets d'eau usée induisent une variation de la conductivité électrique de la source R14. Entre les deux signaux, le décalage temporel est d'environ 24h pour une distance parcourue d'environ 1600 m. . . . .	140
3.19 Description of the study area. The blue line represents the catchment limit, the grey area represents the urban area, the black line represents the faults and the black points represent the locations of the monitored boreholes. . . . .	146
3.20 Monthly averaged rainfall (histogram), monthly average air temperature (black dots) and monthly average rainfall intensity (black dots), which is the average of rainfall intensity in mm/h without taking into account the intensities equal to zero, from meteorological data at Saint Martin du Mont (data Météo France) during the period 1992-2012. . . . .	147
3.21 (a) is the time series of rainfall and the piezometric level. Both time series are sliced with superposed windows. (b) is the cross-correlation function between rainfall and piezometric level on the first window. (c) and (d) are the cross-correlation functions for two following windows. For each cross-correlation function, the response time (RT) is determined. The time series of the response time is defined as (e). . . . .	151
3.22 Rainfall and piezometric level time series for each borehole. . . . .	152
3.23 Time series of rainfall and response time for each borehole. The response time varies through the year. The dotted line (...) represents the absence of calculated response time due to a gap in the piezometric level data or a non-significant (<0.043) correlation coefficient of the cross-correlation function. . . . .	153
3.24 Monthly response time for the D1, D35, F7 and C2 boreholes. The response time varies seasonally for these boreholes ; the response time is lower during the summer period, from June to October. . . . .	154

3.25	Time series of response time at the F7 borehole calculated for each sliding cross-correlogram window and of 3-month moving average of the piezometric level. The response time decreases when the thickness of the saturated zone increases.	155
3.26	Time series of rainfall and response time at the F7 borehole. The rainfall and response time are anti-correlated, with a minimum of response time when the rainfall intensity is at a maximum.	156
3.27	Rainfall intensity versus response time for each studied borehole. For the A1, D35, F7, D1 and C2 boreholes, the response time decreases when the rainfall intensity increases, and the response time appears to tend towards a limit at high rainfall intensities.	157
4.1	Conductivité électrique des eaux souterraines lors de la campagne de prélèvements de juillet 2012 (hors pic de crue).	164
4.2	Distributions de fréquence de la conductivité électrique de l'eau souterraine.	164
4.3	Signature isotopique des eaux souterraines des sources en fonction de l'altitude de celles-ci lors de deux campagnes de mesures, en mars 2011 et en juillet 2013.	165
4.4	Concentration en radon (a) et rapport Ca/Mg (b) des eaux souterraines (juillet 2012) en fonction du débit moyen des sources (annexe 3).	167
4.5	Concentration en radon (a) et en $\delta^{13}\text{C}$ (b) des eaux souterraines prélevées dans des forages (juillet 2012) en fonction de la distance par rapport au sommet du dôme. Les points noirs correspondent aux forages prélevés à l'aide de pompes, les points gris correspondent aux forages prélevés à la canne.	168
4.6	Chroniques pluviométriques, piézométriques, de conductivité électrique et de température de l'eau souterraine au niveau des forages de la nappe supérieure (juillet 2010- février 2013).	169
4.7	Chroniques de la conductivité électrique et de la température de l'eau souterraine au niveau des sources de la nappe supérieure (juillet 2010- juillet 2013).	170
4.8	Chroniques du niveau piézométrique, de la conductivité électrique (CE) et de la température de l'eau au niveau des forages A1, A4D et C2.	171
4.9	Evolution des précipitations, des paramètres physico-chimiques et des concentrations en éléments majeurs des eaux souterraines au niveau de la source R24 lors du pic de crue RE2. L'aire noire représente la partie du débit due à la recharge directe d'eau de pluie estimée par calcul de mélange à partir de la concentration en $\text{Cl}^-$ dans les eaux souterraines et dans l'eau de pluie.	172
4.10	Analyses en composantes principales des paramètres physico-chimiques et des concentrations en anions et cations majeurs lors du pic de crue RE2 des eaux souterraines de la source R24.	173

4.11	Pluie, débit et signature isotopique, $\delta^{18}\text{O}$ et tritium de la source R14 lors du pic de crue RE1. Lors de l'événement pluvieux, la signature isotopique de la pluie vaut en $\delta^{18}\text{O}$ , $-8,8\%$ et en $^3\text{H}$ , 0,06 UA. L'aire noire représente la partie du débit due à la recharge directe d'eau de pluie estimée par calcul de mélange, à partir des données $\delta^{18}\text{O}$ et $^3\text{H}$ .	175
4.12	Chroniques pluviométriques, de conductivité électrique (CE), pH (a) et de teneur en tritium et du rapport $\text{Ca}^{2+}/\text{Mg}^{2+}$ des eaux souterraines lors du pic de crue RE2 (b) au niveau du forage F1.	177
4.13	Rejets atmosphériques en tritium par le centre de Valduc depuis 1963 (Source Seiva, 2008).	177
4.14	Chroniques pluviométriques, de conductivité électrique, de concentration en éléments majeurs, en tritium et en $^{13}\text{C}$ sur la source R06 lors du pic de crue RE2.	178
4.15	Chroniques de précipitations, de la concentration en éléments majeurs, en tritium et en $^{13}\text{C}$ sur la source R08 lors du pic de crue RE2.	179
4.16	Chroniques de précipitations, de niveau piézométrique, de température et de conductivité électrique de l'eau souterraine au niveau du forage A2 (juillet 2010-mars 2013).	181
4.17	Chroniques de pluviométriques, du niveau piézométrique, de conductivité électrique (CE) et de température de l'eau au niveau des forages S3 et S5.	183
4.18	Chroniques pluviométrique et du niveau piézométrique et de conductivité électrique (CE) au niveau des forages B4 et C3. Les variations de la conductivité au niveau du forage B4 sont liées à des pompages.	184
4.19	Schéma des trois types d'écoulement rapide mis en évidence au sein de l'aquifère karstique.	186
4.20	Chroniques de pluviométrie et de conductivité électrique (CE) au niveau des sources R24 et R04. Les débits de R04 et R24 n'étant pas disponibles, le débit de R14 est donné à titre indicatif, comme proxys des débits sur ces sites.	187
4.21	Signature isotopique des pluies et des eaux souterraines (les barres d'erreur sont comprises dans les figurés).	189
4.22	Pluviométrie et variabilité saisonnière de la température de l'eau souterraine au niveau des sources de la nappe supérieure et inférieure (juillet 2010-juillet 2013).	190
4.23	Variabilité saisonnière de la conductivité électrique de l'eau au niveau des sources (juillet 2010-juillet 2013).	191
4.24	Chroniques de la composition géochimique et isotopique au niveau de la source R06. Le débit n'est pas mesuré au niveau de la source R06, il est illustré par le débit de la source R14 qui a un comportement similaire (octobre 2010 à février 2012).	193
4.25	Pluviométrie et variation des concentrations en CFC-12 et $\text{SF}_6$ des eaux souterraines de la source R24 lors du pic de crue RE2.	199

4.26	Concentration en SF <sub>6</sub> en fonction de la part du débit dû à la recharge directe, estimé à partir des concentrations en chlorure lors du pic de crue RE2 . . . . .	199
4.27	Courbes CFC-12 et SF <sub>6</sub> obtenues à partir des différents modèles de mélange et échantillons d'eau souterraine prélevés au niveau de la source R24. Le modèle PFM correspond au modèle "piston flow", le modèle EMM correspond au modèle "Exponential Mixing Model" et le "BMM-EMM-EPF" correspond à un modèle de mélange avec une composante dont l'écoulement est modélisé comme un mélange exponentiel et une seconde composante qui correspond à de l'eau transférée par "piston-flow". . . . .	200
5.1	Schéma des mécanismes d'écoulement des quatre masses d'eau identifiées au sein de l'aquifère. La masse d'eau A correspond à de l'eau de surface transférée très rapidement vers la zone non saturée et les sources, la masse d'eau B correspond à de l'eau stockée dans l'épikarst, remobilisée et déplacée rapidement lors de pics de crue, la masse d'eau C correspond à de l'eau de surface transférée rapidement vers la zone saturée et les sources, et la masse D se caractérise par des transferts lents. En fonction du point d'étude, de l'épisode de pluie et de la saison, les proportions entre les différentes masses d'eau (A, B, C et D) ne sont pas conservées. . . . .	206
5.2	Schéma de fonctionnement des essais de perméabilité à l'air . . . . .	226
5.3	Analyses de porosimétrie mercure . . . . .	227
5.4	Précipitations, débits et composition géochimique des eaux souterraines au niveau de la source R08 (pas mensuel, octobre 2010-février 2012) . . . . .	231
5.5	Précipitations, débits et composition géochimique des eaux souterraines au niveau de la source R04 (pas mensuel, octobre 2010-février 2012) . . . . .	232
5.6	Précipitations, débits et composition des eaux souterraines au niveau de la source R24 (pas mensuel, octobre 2010-février 2012) . . . . .	232

---

## Liste des tableaux

1.1	Solubilité de la calcite en fonction de la pression partielle en CO <sub>2</sub> (Bakalowicz, 1986). . . . .	32
2.1	Précision et incertitude des sondes de mesure in-situ . . . . .	68
2.2	Récapitulatif des paramètres physico-chimiques mesurés par sondes autonomes . . . . .	69
2.3	Récapitulatif des données acquises au niveau des forages de la nappe supérieure. . . . .	79
2.4	Récapitulatif des données acquises au niveau des sources de la nappe supérieure. . . . .	80
3.1	Amplitude des variations du niveau piézométrique pour les forages de la nappe supérieure, cycle 2010-2011. . . . .	116
3.2	Qualité des chroniques : pourcentage de données manquantes sur les périodes A et B . . . . .	123
3.3	Quantification de l'inertie à partir des fonctions d'autocorrélation sur la période A. La première droite est relative aux écoulements rapides et la seconde aux écoulements plus lents. . . . .	125
3.4	Périodes correspondant aux fréquences de coupure déterminées graphiquement à partir des fonctions de densité spectrale des niveaux piézométriques et des débits. . . . .	128



3.5	Temps de réponse, coefficient de corrélation maximum et largeur des fonctions de corrélation croisée pluie-niveau piézométrique ou débit. . . . .	131
3.6	Périodes pour lesquelles la fonction gain vaut 0,4 (analyse croisée pluie-niveau piézométrique ou débit sur les périodes A et B) . . . . .	133
3.7	Moyenne de la cohérence calculée les périodes A et B . . . . .	134
3.8	Key characteristics of monitored boreholes. The unsaturated zone was measured at the same date for each borehole during a low water level (July 2010). . . . .	149
3.9	Results of the application of the sliding cross-correlogram between rainfall and the piezometric level : characteristics of response times and coefficient correlations of the time series. . . . .	154
3.10	Results of the application of the sliding cross-correlogram between rainfall and the piezometric level : characteristics of response times and coefficient correlations of the time series. . . . .	157
4.1	Composition géochimique de l'eau souterraine au niveau du forage A2 lors de deux campagnes de mesures. . . . .	182
4.2	Variabilité saisonnière de la température de l'eau. Résultats des corrélations croisées entre température de l'air et température de l'eau. . . . .	191
4.3	Concentrations en $^{20}\text{Ne}$ , $^3\text{He}$ et $^4\text{He}$ dans les eaux souterraines prélevées durant la campagne de juillet 2012. . . . .	195
4.4	Rapport $^{85}\text{Kr}/\text{Kr}$ et $^{39}\text{Ar}/\text{Ar}$ dans les eaux souterraines. . . . .	196
5.1	Résultats des tests d'échantillonnage des forages peu productifs . . . . .	228
5.2	Caractéristiques des forages de la nappe supérieure . . . . .	229
5.3	Caractéristiques des sources étudiées durant la thèse. Pour l'altitude, en italique, les mesures proviennent de l'IGN MNT, les autres données proviennent d'un nivellement au GPS différentiel. . . . .	230

# **Introduction générale**

De Marsily qualifie le karst comme un milieu où “ l’hétérogénéité atteint son paroxysme ” (De Marsily, 1984). La forte hétérogénéité des aquifères karstiques est liée la distribution des porosités allant de la porosité matricielle (micro-porosité) à la porosité de conduits (macro-porosité). La porosité de conduits induit des transferts rapides au sein de l’aquifère, à l’origine de la vulnérabilité de ce type d’aquifères karstiques. La protection de ces milieux nécessite donc une connaissance approfondie des écoulements souterrains pour comprendre les transferts de polluants du sol à la zone saturée. L’objectif général de cette étude est de définir les modalités du transfert de l’eau et des solutés au sein d’un aquifère karstique.

Ce travail s’intègre dans un projet d’étude du transfert du tritium dans un aquifère karstique situé sous un site du CEA (Commissariat à l’Energie Atomique et aux Energies Alternatives). En effet, en raison de ses activités, le CEA de Valduc (département de la Côte d’Or) dispose d’une autorisation de rejets atmosphériques tritiés. Depuis 1963, les diverses activités industrielles occasionnent des rejets de tritium dans l’atmosphère sous forme gazeux. Cet élément entre dans le cycle naturel de l’eau : une partie des rejets est transférée au sol lors d’événements pluvieux et migre ensuite dans le sous-sol situé autour du site du CEA, entraînant un marquage des eaux souterraines. L’objectif appliqué de cette étude est donc d’améliorer les connaissances sur les écoulements souterrains dans l’aquifère situé sous le site du CEA, et plus largement la caractérisation des circulations souterraines essentielle sous tout centre industriel.

Un aquifère karstique étant caractérisé par une distribution des porosités générant la présence de crues rapides et violentes et par une forte hétérogénéité des vitesses de transferts (Mangin, 1975; Marsaud, 1996), il paraît nécessaire de mettre en place des méthodes adaptées à échelles temporelles et spatiales fines. Ainsi, l’utilisation du couplage des hydrogrammes et chimio-grammes de crues, ayant déjà prouvé son intérêt dans la compréhension des fonctionnements hydrologiques des systèmes karstiques (Mangin, 1975; Plagnes, 1997; Ladouche et al., 2001; White, 2002; Valdes, 2005), trouve ici toute sa place.

De plus, la distribution des vitesses de transfert au sein d’un aquifère karstique nécessite l’utilisation d’une méthodologie d’investigation adéquate au fonctionnement de cet aquifère. Afin de définir les mécanismes de transferts des eaux souterraines, l’approche adoptée repose sur la discrétisation des masses d’eau présentes au sein de l’aquifère en fonction de leurs vitesses de transfert et donc de leurs temps de résidence. Pour cela, l’approche consiste à caractériser géochimiquement et hydrodynamiquement les différentes masses d’eau afin de définir leurs mécanismes d’écoulement au sein de l’aquifère (vitesses de transfert, stockages, porosités mises en jeu) et dans la mesure du possible de déterminer leurs proportions relatives au sein de l’aquifère.

L’aquifère karstique étudié se situe en Bourgogne dans les calcaires du Dogger. Sa faible superficie (40 km<sup>2</sup>) et la forte densité de sources et de forages échantillonnables en font donc un site expérimental remarquable. En effet, la plupart des études des aquifères karstiques s’intéresse soit à un exutoire (par exemple, la fontaine de Vaucluse (Emblanch et al., 2003; Fleury et al.,

2007), soit étudie les réponses à une large échelle spatiale (Plagnes, 1997; Valdes, 2005), ce qui induit une variabilité du forçage d'entrée. Dans le cas d'étude, la faible superficie permet de supposer un forçage d'entrée (pluie) homogène sur la totalité du site de l'aquifère. La forte densité de sources et de forages permet une étude à échelle spatiale fine. Enfin, l'étude de ces deux ouvrages permet d'investiguer à différentes échelles spatiales la réponse de l'aquifère à un même forçage.

Afin de discriminer les différentes masses d'eau composant l'aquifère et de définir leur vitesse de transfert, deux approches complémentaires ont été utilisées : (i) une approche hydrodynamique qui s'appuie sur l'analyse de chroniques piézométriques et débitométriques à partir d'outils de traitement du signal et (ii) une approche géochimique et isotopique basée sur l'utilisation de nombreux traceurs (conductivité électrique, température, isotopes stables, éléments majeurs,  $\delta^{13}\text{C}$ , radon,  $\text{SF}_6$ , CFC,  $^3\text{H}/\text{He}$ ,  $^{85}\text{Kr}$ ). La première approche a pour objectif de définir la réponse impulsionnelle de l'aquifère au niveau de nombreux points de mesure à partir de données acquises par des sondes autonomes. La seconde a pour objectif de caractériser géochimiquement les masses d'eau constituant l'aquifère à partir de nombreux traceurs des eaux souterraines permettant d'étudier la large distribution des temps de résidence qui caractérise un aquifère karstique. Ces deux approches ont été appliquées à différentes échelles temporelles : un suivi haute fréquence (jusqu'à 1h) lors de pics de crue afin d'analyser les transferts rapides et un suivi long terme (pluri-annuel) afin de caractériser les transferts lents et étudier la variabilité saisonnière des modalités d'écoulement.

La démarche suivie dans cette thèse a consisté dans un premier temps à équiper un maximum d'ouvrages (sources et forages) avec des sondes multi-paramètres (débit, niveau piézométrique, conductivité électrique, température). L'analyse de ces données a démontré la forte hétérogénéité des processus d'écoulement et la forte réactivité de l'aquifère aux événements pluvieux. Ceci a mis en lumière la nécessité d'étudier la composition géochimique des eaux souterraines à haute fréquence lors d'un pic de crue au niveau de plusieurs forages et sources pour pouvoir discriminer les différentes eaux souterraines intervenant dans la recharge de l'aquifère. En parallèle, des échantillonnages plus espacés (mensuels) et des campagnes de cartographie ont été réalisés pour définir la composition géochimique de référence hors événement de recharge mais également pour étudier la variabilité saisonnière des processus d'écoulement.

Pour répondre aux objectifs cités précédemment, ce mémoire s'organise en 5 parties.

La première partie "Contexte général" présente les connaissances actuelles de la structure et du fonctionnement des systèmes karstiques, ainsi qu'un descriptif du site étudié.

La seconde partie "Matériel et méthodes" détaille la présentation des protocoles expérimentaux mis en œuvre pour l'acquisition des données hydrogéologiques et géochimiques et les méthodes d'interprétation de ces données.

Le troisième partie “ Etude de l’aquifère karstique par traitement du signal de données hydrodynamiques (pluie-débit-piézométrie)” expose le fonctionnement de l’aquifère karstique à partir d’analyses corrélatoires et spectrales effectuées sur des données hydrodynamiques (pluie-débit-piézométrie). Cette approche permet l’étude spatiale et temporelle de la réponse impulsionnelle du système et la caractérisation des mécanismes d’écoulements souterrains en décomposant les signaux hydrodynamiques (vitesse d’écoulement, présence de réservoir).

La quatrième partie “Etude de l’aquifère karstique à partir de traceurs géochimiques et isotopiques” permet de discriminer les différentes masses d’eau et détermine leur modalités d’écoulement à partir de multiples traceurs géochimiques et isotopiques. Cette partie repose sur l’étude de chroniques géochimiques et isotopiques à différentes échelles de temps afin d’étudier un large panel de vitesses de distribution. Dans cette partie, les apports et les limites de l’utilisation de traceurs de datation tels que SF<sub>6</sub>, CFC, <sup>3</sup>H/He, <sup>85</sup>Kr seront discutés.

Enfin, la cinquième partie “Conclusion générale” permet de faire le point sur les contributions conjointes des deux approches utilisées et de coupler les apports de l’une et de l’autre afin de schématiser des écoulements souterrains qui ont lieu dans cet aquifère karstique.

# 1

## Contexte général

## 1.1 Caractéristiques, fonctionnement et méthodes d'étude des aquifères karstiques

L'origine du mot **karst** vient d'une région du Nord de la Slovénie dont le relief, constitué de plateaux calcaires, présente une morphologie particulière : vallées sèches, dépressions fermées, grottes, gouffres, rivières souterraines. Cette morphologie est liée à la dissolution des roches calcaires qui constituent les sous-sols de cette région.

Le mot karst est défini comme un : « *ensemble de formes superficielles et souterraines résultant de la dissolution de roches carbonatées (calcaires, dolomies) par l'eau rendue acide par le dioxyde de carbone. Par extension, ensemble de formes comparables se développant dans les roches salines (gypse, anhydrite, halite)* » (Dictionnaire Hydrologique Français du Comité National des Sciences Hydrologiques).

Selon [Drogue \(1969\)](#), un aquifère karstique est constitué de blocs fissurés séparés par des chenaux assurant le drainage de l'eau, une continuité entre milieu fissuré et karstifié est supposée. [Mangin \(1975\)](#) souligne que le terme "système karstique" est mieux adapté. A l'inverse des aquifères dits classiques, dans un aquifère karstique, la zone non saturée et la zone saturée ne sont pas nécessairement superposées et la recharge peut inclure des zones non karstifiées du bassin versant. Ainsi, [Mangin \(1975\)](#) définit le système karstique comme "l'ensemble au niveau duquel les écoulements souterrains de type karstique s'organisent pour constituer une unité de drainage".

D'un point de vue hydrogéologique, les aquifères karstiques se caractérisent par des crues rapides et violentes, un tarissement lent, une variabilité de la vitesse de variation des niveaux d'eau et une forte variabilité spatiale et temporelles de la géochimie des eaux ([Marsaud, 1996](#)). Un système karstique se distingue par une forte hétérogénéité structurelle (porosité, perméabilité, écoulements). [Mangin \(1984\)](#) qualifie le karst comme un milieu où "l'hétérogénéité atteint son paroxysme".

### 1.1.1 Caractéristiques des aquifères karstiques

Les aquifères se différencient des aquifères poreux et fracturés par l'existence de conduits karstiques ou/et de rivières souterraines (figure 1.1) qui sont la conséquence de la dissolution des carbonates (processus de karstification). Ceci induit la coexistence de trois types de porosité : matricielle, de fractures et de conduits au sein de ce type d'aquifère.

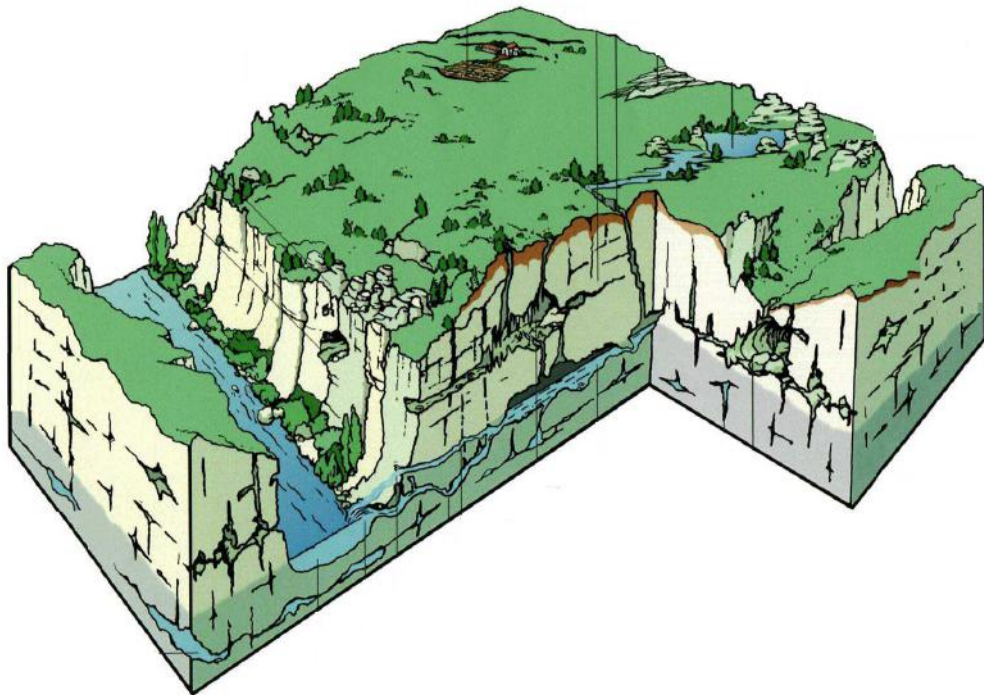


FIGURE 1.1: Schéma d'un aquifère karstique. Un aquifère karstique se différencie des aquifères fracturés ou poreux par la présence de conduits ouverts ou de rivières souterraines qui induisent des vitesses de transfert potentiellement très rapides (Bakalowicz, 2003).

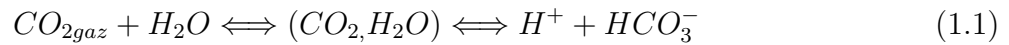
### 1.1.1.1 Les processus de karstification

La karstification est responsable de la formation de vides, parfois de grandes dimensions, qui modifient profondément les caractéristiques initiales de la roche. Il s'agit d'un processus évolutif d'érosion physico-chimique des formations carbonatées qui élargit les vides originels et établit progressivement une structure de drainage organisée. A l'échelle des temps géologiques, la dissolution des carbonates est un processus rapide qui induit des changements significatifs en quelques milliers d'années (White, 2002).

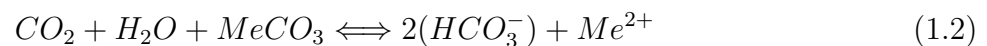
Le potentiel de karstification est tributaire de l'**écoulement souterrain** (fonction de la morphologie et du gradient hydraulique) et du **pouvoir de dissolution de l'eau** (fonction du  $\text{CO}_2$  dissous). La solubilité des carbonates dans l'eau pure est très faible (produit de solubilité  $K_{\text{calcite}}=3,8.10^{-9}$ ). C'est l'augmentation de la teneur en  $\text{CO}_2$  de l'eau qui élève considérablement la solubilité de la roche (tableau 1.1) (Dreybrodt, 1996). Le  $\text{CO}_2$  est principalement d'origine pédologique (respiration racinaire, dégradation de la matière organique du sol par l'activité biologique et bactériologique), parfois d'origine profonde ou volcanique.



La dissolution du  $\text{CO}_2$  dans l'eau apporte des ions  $\text{H}^+$  qui l'acidifient (équation 1.1), c'est le processus de conversion du  $\text{CO}_2$  (Langmuir, 1997) :



La réaction de dissolution des carbonates, réaction triphasique (roche carbonatée, eau et  $\text{CO}_2$ ) est un ensemble d'équilibres réversibles, l'équation générale est la suivante :



où  $\text{Me}^{2+}$  représente un cation bivalent :  $\text{Ca}^{2+}$  ou  $\text{Mg}^{2+}$  (Langmuir, 1997).

La mise en solution du  $\text{CO}_2$  gaz et la dissolution des carbonates entraînent la formation d'espèces carbonatées dissoutes ( $\text{H}_2\text{CO}_3$ ,  $\text{HCO}_3^-$  et  $\text{CO}_3^{2-}$ ) dont la somme constitue le carbone inorganique total dissous (CITD).

TABLEAU 1.1: Solubilité de la calcite en fonction de la pression partielle en  $\text{CO}_2$  (Bakalowicz, 1986).

$\text{pCO}_2$ (atm)	Concentration en $\text{CaCO}_3$ d'une eau à l'équilibre avec la calcite (mg/L)
0	5
$0,03 \cdot 10^{-2}$ (atmosphère)	50
$0,1 \cdot 10^{-2}$ (sol de montagne)	115
$1 \cdot 10^{-2}$ (sol, climat tempéré)	215
$3 \cdot 10^{-2}$ (sol, climat méditerranéen)	315
$10 \cdot 10^{-2}$ (production de $\text{CO}_2$ profond)	650

La karstification est le processus chimique qui permet le développement de conduits karstiques ou de fractures élargies au sein de l'aquifère. La karstification en élargissant les fractures et en créant des conduits induit la présence de trois types de porosité au sein des aquifères carbonatés karstiques.

### 1.1.1.2 Porosité multiple : origine de l'hétérogénéité des systèmes karstiques

L'existence de trois types de porosité au sein des aquifères karstiques induit une hétérogénéité spatiale importante de la perméabilité et des écoulements, complexifiant les écoulements en comparaison à des aquifères plus homogènes.

Au sein d'un aquifère carbonaté karstifié, 3 types de porosité sont distingués en fonction de leur origine :

- la **porosité matricielle (primaire)**, liée à la lithologie et au mode de dépôt. Cette porosité est généralement faible dans les carbonates. La porosité matricielle est très variable selon la nature de la roche carbonatée. Elle est estimée expérimentalement par [Burger \(1983\)](#) entre 1 % pour les micrites et 15 % pour des faciès bréchiqes. La porosité matricielle totale peut être importante mais sa porosité efficace est souvent très faible. Cette porosité a donc principalement une fonction capacitive,
- la **porosité de fractures (secondaire)**, liée à l'action de contraintes tectoniques (fissures, diaclases, failles). La transmissivité de cette porosité varie selon la taille des fractures,
- la **porosité de conduits**, liée à la karstification. Elle évolue constamment et permet d'atteindre des perméabilités comprises entre  $10^{-1}$  et  $10^{-6}$  m/s ([Kiraly, 1975](#)) et des porosités efficaces pouvant atteindre 15 % à l'échelle du massif ([Marsaud, 1996](#)).

La porosité matricielle a une fonction principalement capacitive alors que la fonction des porosités de fractures et de conduits est essentiellement transmissive.

La distribution de porosité dans les aquifères karstiques induit une distribution des vitesses d'écoulement et des temps de résidence des eaux souterraines. La présence de fractures et de conduits donne aux systèmes carbonatés leurs propriétés aquifères.

### 1.1.1.3 Les différents types d'aquifères karstiques

En fonction des propriétés structurelles et fonctionnelles des aquifères karstiques, une classification est proposée par [Mangin \(1975\)](#) :

- *Type 1 : Systèmes non-fonctionnels à faible ou fort potentiel hydraulique et structure peu karstique.* Ils correspondent aux systèmes faiblement ou peu karstiques dont la structure de drainage est encore trop peu organisée pour avoir une influence sur les écoulements. Ce type d'aquifère est assimilé à un milieu fracturé d'un point de vue méthodes d'étude et fonctionnement,
- *Type 2 : Systèmes fonctionnels à fort potentiel hydraulique et structure karstique.* Ils correspondent aux systèmes où les vides et les écoulements sont organisés. Le système est fonctionnel car il a un comportement de type karstique (crues rapides et violentes, hétérogénéité des vitesses de transfert), en adéquation avec la structure,
- *Type 3 : Systèmes non fonctionnels à faible potentiel hydraulique et structure karstique.* Ils correspondent aux systèmes pour lesquels il existe une organisation des vides mais pour lesquels l'écoulement ne rend pas compte de cette organisation. Il s'agit d'un milieu karstique dont le potentiel hydraulique est faible et ne permet pas la présence de grandes vitesses d'écoulement.

L'identification du type d'aquifère karstique est primordiale pour utiliser des méthodes d'étude adéquates. Celle-ci passe principalement par l'analyse de la forme de l'hydrogramme unitaire.

Au niveau de l'aquifère du Dogger étudié, des études préliminaires notamment par traçages artificiels Antea (2010) ont montré que certains écoulements se font à vitesse élevée. Le site étudié dans ce manuscrit est donc de *type 2*.

## 1.1.2 Fonctionnement des aquifères karstiques

### 1.1.2.1 Description et fonctionnement des différentes parties d'un aquifère karstique

Un aquifère se divise en deux grandes parties, la zone d'infiltration et la zone saturée. La zone d'infiltration correspond à la partie de l'aquifère où trois phases coexistent ; liquide, solide, gaz. La zone saturée ne comporte que deux phases : solide et liquide. Dans un système karstique, la zone d'infiltration est divisée en plusieurs sous-parties : le sol, l'épikarst et la zone de transition figure 1.2.

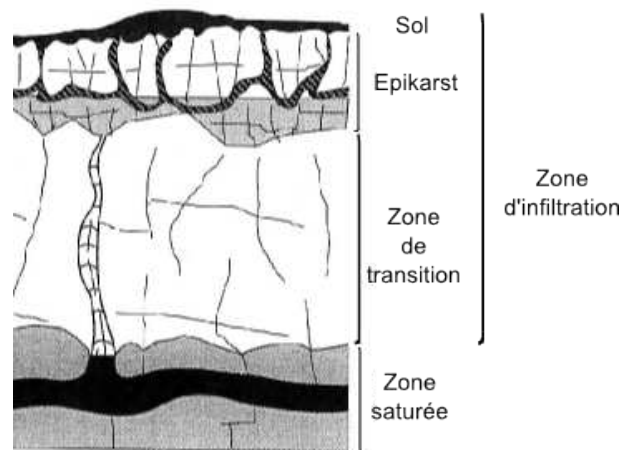


FIGURE 1.2: Les différentes zones constituant un système karstique (modifié depuis Jeannin and Grasso, 1995)

#### *La zone d'infiltration*

La zone d'infiltration peut également être appelée zone non saturée. Néanmoins, en raison de la présence d'un aquifère épikarstique perché, certains auteurs préfèrent utiliser le terme de zone d'infiltration (Bakalowicz, 2005). La zone d'infiltration est composée du sol, de l'épikarst et de la zone de transition.

## Le sol

Le sol correspond à la formation superficielle résultant de l'altération sur place des roches par l'eau, l'air et les êtres vivants, et de leur mélange à une proportion variable de matière organique (Foucault & Raoult, 2005).

Ses propriétés et son rôle varient en fonction de sa nature et de son épaisseur :

- un sol imperméable concentre par ruissellement les eaux dans des conduits ou des zones plus perméables,
- un sol perméable favorise l'infiltration de l'eau sur toute sa surface.

L'humidité du sol module les vitesses et les quantités d'eau qui le traversent jusqu'à l'épikarst (Marsaud, 1996). Il est le siège de l'évapotranspiration.

## L'épikarst ou aquifère épikarstique

L'épikarst correspond à la zone apicale des carbonates, située sous le sol. Il s'agit d'une zone où les calcaires sont fortement altérés et corrodés en raison de processus de gélifraction, de décompression mécanique des roches, de processus biochimiques qui participent à la dissolution des carbonates et à la présence de racines. L'altération augmente de façon exponentielle vers la surface (Perrin et al., 2003). L'épikarst est parfois considéré comme la "peau" du système karstique, car c'est la zone d'échange entre l'atmosphère et le système karstique (Williams, 2008). L'épikarst peut mesurer jusqu'à plusieurs mètres d'épaisseur et il est caractérisé par une forte porosité efficace (Klimchouk, 2004). Le contraste de perméabilité et de porosité entre l'épikarst et le reste de la zone d'infiltration permet le développement dans la zone basale de l'épikarst d'un aquifère perché parfois permanent et d'épaisseur variable, appelé aquifère épikarstique.

Différentes approches ont mis en évidence la présence des aquifères épikarstiques. Par modélisation numérique, Kiraly (1998) montre la nécessité mathématique de l'existence d'une zone proche de la surface qui concentre les infiltrations d'eau et les conduit vers le réseau karstique. Par suivi géochimique, Emblanch et al. (2003) s'appuient sur la signature du  $\delta^{13}\text{C}$  pour mettre en évidence la vidange d'une partie de la zone non saturée, celle-ci soutenant l'étiage. Par gravimétrie, Jacob et al. (2009) mettent en évidence la présence d'un épikarst et la variation saisonnière de sa saturation. Ces études soulignent la présence de deux types de transfert de l'épikarst vers la zone saturée, un transfert rapide à travers les conduits et une infiltration diffuse par percolation verticale de l'eau stockée à la base de l'épikarst.

En terme de morphologie la présence de l'épikarst est incontestable, cependant sa fonction, ses propriétés transmissives et capacitatives, peuvent varier d'un aquifère à l'autre (Williams, 2008).

La plupart des études sur le fonctionnement de la zone épikarstique convergent. Le rôle principal de l'épikarst est de concentrer les écoulements. Lors d'événements pluvieux, l'épikarst très

perméable absorbe immédiatement l'infiltration d'eau de surface. Une partie de l'infiltration est stockée dans la partie basale de l'épikarst et s'égoutte lentement vers les roches peu perméables du karst (infiltration différée). Une seconde partie est transférée rapidement dans le réseau de conduits, soit en court-circuitant l'épikarst par des discontinuités verticales ou sub-verticales soit par transferts horizontaux et débordement dans les conduits verticaux lorsque les infiltrations sont suffisantes (Jeannin, 1996; Puech & Jeannin, 1997; Bakalowicz, 2005). L'épikarst a la caractéristique de concentrer les écoulements rapides à l'image d'un entonnoir. Ainsi la composante latérale des écoulements est importante dans l'épikarst : l'eau stockée se déplace latéralement vers la fissure verticale la plus proche. Le stockage de l'eau dans l'épikarst dépend de l'épaisseur et de la continuité de l'épikarst, de la porosité et du ratio entre les flux entrants (pluie efficace) et sortants (percolation ou débordement). Il peut être très important et même prépondérant par rapport au stockage dans la zone saturée. La réserve épikarstique peut participer à l'écoulement tout au long de l'année, y compris en période d'étiage (Perrin et al., 2003).

L'épikarst joue un rôle important dans la géochimie de l'eau par l'intermédiaire de deux mécanismes : la mise en solution du CO<sub>2</sub> présent dans le sol et la concentration d'anions et cations météoriques par évaporation (Bakalowicz, 2005).

### **La zone de transition**

La zone de transition connecte les formes superficielles de l'aquifère (sol ou épikarst) à la zone saturée par drainage, principalement verticale, dans des réseaux de conduits ou de fractures. Différents types d'écoulement peuvent avoir lieu :

- les écoulements lents qui s'effectuent dans des vides de petites tailles avec de fortes pertes de charge,
- les écoulements rapides, principalement par des fractures ou conduits verticaux ou subverticaux ouverts.

Lors d'écoulements rapides, les eaux gardent quasiment intacte leur composition géochimique et leur pouvoir de dissolution (forte teneur en CO<sub>2</sub> dissous) car elles transitent rapidement jusqu'à la zone saturée (Marsaud, 1996).

### **La zone saturée**

La zone saturée est également appelée zone basale ou zone noyée. Cette zone est généralement divisée en deux parties : un réseau de conduits à forte perméabilité, siège de la fonction transmissive (Mangin, 1975) et des volumes à faibles perméabilités. La circulation y est principalement sub-horizontale permettant le drainage de l'eau vers l'exutoire. La fonction de stockage de la zone saturée quant à elle reste en questionnement. Différents modèles existent :

- *l'eau est stockée dans la matrice ou les fractures.* Dans ce modèle, l'aquifère est vu comme un ensemble de blocs séparés par des conduits. Selon Drogue (1974), Mudry (1990) et Kiraly (1998),

ce modèle suppose que la zone saturée est hydrauliquement continue avec une perméabilité relativement faible,

- *l'eau est stockée dans des vides karstiques connectés entre eux par des zones à forte perte de charge.* Selon [Mangin \(1994\)](#), le fort contraste de la perméabilité entre matrice et conduit est responsable de l'absence d'échange et rend négligeable le stockage dans la matrice. Ainsi, la zone saturée est hydrauliquement discontinue,

- *le stockage dans la zone saturée n'existe pas.* Les réseaux karstiques drainent l'eau souterraine depuis la zone non saturée. Dans ce modèle, l'épikarst qui peut être saturé en partie, joue un rôle important.

### 1.1.2.2 Schémas conceptuels des aquifères karstiques

Les aquifères karstiques sont composés de différentes parties qui ont des structures et des fonctionnements variés. Les caractéristiques de l'écoulement des eaux dans le milieu souterrain (temps de résidence, géochimie, vitesse de transfert) résultent de l'intégration des processus hydrodynamiques qui ont lieu dans chacune de ces parties mais également des relations structurelles et fonctionnelles qui les relient. De nombreux auteurs construisent à partir de l'interprétation des résultats et des modélisations, des schémas conceptuels du fonctionnement des aquifères karstiques dans son ensemble. Quelques exemples sont présentés en figure [1.3](#).

Chacun de ces schémas conceptuels souligne un point caractéristique des aquifères karstiques, leur dualité, qui est une conséquence directe de la structure ([Király, 1998](#)) et qui se retrouve à différents stades de l'aquifère :

- *dualité des processus d'infiltration* : infiltration diffuse ou lente dans le volume de faible perméabilité, infiltration concentrée ou rapide dans le réseau de conduits,
- *dualité des conditions d'écoulement* : débits diffus depuis les volumes à faible perméabilité et concentrés dans les réseaux de conduits.

### 1.1.3 Méthodes d'étude des systèmes karstiques

L'hétérogénéité des karsts, liée à leur structure et à leur distribution de porosités et de perméabilités, en font des aquifères très complexes à comprendre et à modéliser. Les études hydrogéologiques des aquifères karstiques ont pour objectif de protéger la qualité des ressources en eaux et de prédire les crues et les étiages pour réduire leurs impacts. Elles reposent sur l'évaluation des ressources et de leur renouvellement, sur la détermination des systèmes karstiques les plus favorables à l'exploitation et sur la protection des aquifères exploités par des méthodes

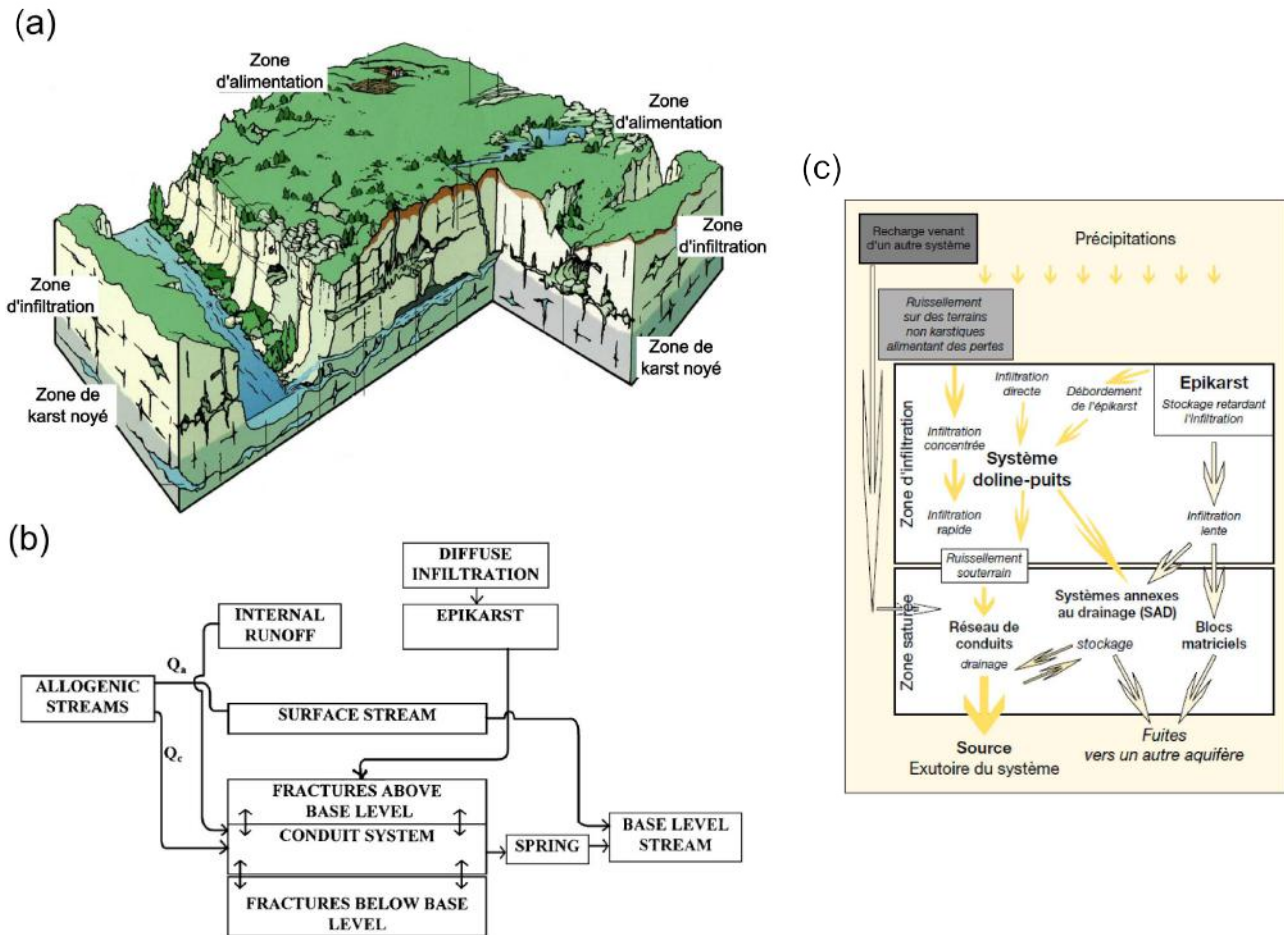


FIGURE 1.3: Modèles conceptuels des aquifères karstiques, (a) Mangin (1975), (b) White (2002), (c) Bakalowicz (2003).

adaptées, en adéquation avec leur forte vulnérabilité (Plagnes & Bakalowicz, 2002). De nombreuses méthodes ont été développées par les scientifiques, la partie suivante en présente une liste non exhaustive mais qui inclut les méthodes les plus classiques.

### *Approche fonctionnelle et approche structurelle*

Deux types de démarche ont été développées pour l'étude des systèmes karstiques :

- *Les approches déterministes ou structurelles* qui reposent sur la description de la structure de l'aquifère et de l'application de lois physiques d'écoulement ou d'hydraulique par exemple la loi de Darcy. Dans le cas d'application de lois physiques d'écoulement, elles se basent classiquement sur la notion de "volume élémentaire homogène" qui consiste à affecter à un point la valeur moyenne d'un paramètre hydrologique mesuré pour un certain volume de terrain. Deux grandes difficultés apparaissent dans l'adaptation de ces approches en milieux karstiques : (i) la détermination des paramètres hydrauliques en tout point de l'aquifère compte tenu de la forte hétérogénéité des aquifères karstiques et (ii) l'adaptation de lois d'hydrodynamiques aux écoulements turbulents caractéristiques des aquifères karstiques. Ces approches sont essentiellement utilisées dans les milieux karstiques de type 1, se rapprochant des milieux fracturés,

- les approches globales ou fonctionnelles, où l'aquifère est considéré comme une boîte noire dont on étudie le comportement par des fonctions mathématiques (Mangin, 1975). Ces approches reposent sur l'analogie existante entre l'organisation d'un karst et celle d'un bassin versant de surface. Elles s'appuient principalement sur l'étude de la relation entre la fonction d'entrée du système (pluie) et la fonction de sortie du système (source) en supposant que l'eau d'une source est imprimée (quantitativement et qualitativement) de tout ce qu'elle a pu subir en traversant le système. Ces approches ne font pas intervenir de processus physiques des écoulements et du transport, elles apportent une description du fonctionnement du système à travers l'étude de ses réponses à divers forçages qui permet ensuite d'approcher indirectement la structure.

L'aquifère étudié dans cette thèse est un aquifère de type 2 (*Système fonctionnels à fort potentiel hydraulique et structure karstique*) dans la classification de Mangin (1975). L'approche adoptée pour l'étude sera l'approche fonctionnelle, plus adaptée à ce type de milieu. Ainsi, dans cette partie, nous aborderons succinctement les approches structurelles.

### 1.1.3.1 Caractérisation de la structure des aquifères karstiques

#### Approche morphologique et spéléologique

L'approche morphologique repose que la description de la morphologie de surface et notamment de la localisation de structures karstiques ou de points d'infiltration préférentielle tels que des dolines, des lapiaz ou des gouffres. L'approche spéléologique repose sur des descriptions souterraines réalisées par des spéléologues lors d'explorations de grottes ou de formations souterraines. Cette approche ne s'intéresse donc qu'au système karstique dont la karstification est très avancée et permet le passage d'un homme. Elle ne fournit pas d'information hydrogéologique au sens strict mais donne des renseignements sur la karstification, l'organisation, la forme et les dimensions du réseau de drainage principal.

#### Investigations géophysiques

La géophysique permet de caractériser le sous-sol, d'identifier sa géométrie (localisation des cavités ou vides). Elle peut également fournir des informations sur les propriétés physiques du sol telles que la teneur en eau, la fracturation, la porosité, la présence d'argile. Ces méthodes sont appliquées soit en surface, soit au niveau de forages (diagraphie), soit au niveau de conduits. De nombreuses méthodes existent, en voici une liste non exhaustive :

-les *méthodes électriques* ou électro-magnétiques qui sont sensibles à la conductivité électrique et donc fournissent des informations sur le contenu en eau ou en argile,

-les *méthodes sismiques* étudient les variations des vitesses sismiques dans le sous-sol. Ces variations peuvent être interprétées comme des variations de la fracturation, de la saturation...,



-les *méthodes gravimétriques* mesurent l'accélération de la pesanteur due à un excès ou un manque de masse dans le sous-sol. Utilisées ponctuellement, ces méthodes permettent de détecter des cavités. Utilisées sur le long terme, elles peuvent fournir des informations sur les variations du contenu en eau des aquifères épikarstiques ([Jacob et al., 2008](#)),

-les *méthodes à résonances magnétiques de protons* donnent la distribution de la teneur en eau en fonction de la profondeur.

### 1.1.3.2 Etude de chroniques de sortie (débit, niveau piézométrique)

#### Analyses statistiques de séries temporelles

Les analyses statistiques de séries temporelles permettent d'étudier les relations qui existent entre deux chroniques. Elles sont classiquement utilisées dans le cadre d'étude des systèmes karstiques entre une chronique d'entrée du système, par exemple la pluie et une chronique qui correspond à la sortie du système, par exemple le débit de source. Les relations de causalité qui existent entre ces deux signaux peuvent fournir des informations sur le fonctionnement et la structure de l'aquifère.

Les analyses corrélatoires et spectrales reposent sur l'approche fonctionnelle développée par [Mangin \(1975\)](#) et s'appuient principalement sur les outils d'analyses statistiques de séries chronologiques développés par [Jenkins & Watts \(1968\)](#) et [Box et al. \(1994\)](#). Les chroniques peuvent être traitées soit en analyse simple signifiant que l'on étudie une seule chronique soit en analyse croisée qui permet d'étudier les relations existantes entre deux chroniques. Ces différentes analyses peuvent être réalisées soit dans le domaine temporel (analyse corrélatoire) soit dans le domaine fréquentiel (analyse spectrale). Une description détaillée de certaines méthodes statistiques est présentée dans la section "Matériel et Méthodes".

L'origine de cette approche repose sur le fait qu'un système possède un comportement de filtre. La structure du filtre imprègne la fonction de sortie du système. L'étude des fonctions d'entrée, de sortie et de leur relation fournit des informations sur les caractéristiques du filtre et donc du système.

[Mangin \(1975\)](#) a été le précurseur de l'adaptation de ces méthodes statistiques à l'étude des milieux karstiques. Il compare principalement les précipitations en signal d'entrée et les débits de source en sortie, obtenant ainsi des informations sur la totalité du système. Depuis, ces méthodes ont été adaptées à d'autres types de chroniques. Utilisées sur des chroniques piézométriques, elles fournissent des informations en différents points de l'aquifère et permettent d'évaluer le rôle de l'épikarst ([Larocque et al., 1998](#)). A partir de chroniques piézométriques, les marées terrestres peuvent être mises en évidence et permettent de déterminer l'emmagasinement spécifique et la porosité totale au voisinage du piézomètre [Larocque et al. \(1998\)](#). Certains

auteurs proposent d'étudier le transport de masse au sein de l'aquifère à partir d'analyses corrélatoires et spectrales effectuées sur des chroniques de conductivité électrique (Hanin, 2010; Larocque, 1997; Bailly-Comte et al., 2011), de turbidité (Bouchaou et al., 2002; Amraoui et al., 2003; Massei et al., 2006; Bailly-Comte et al., 2011) et de température (Bailly-Comte et al., 2011). A partir de ces analyses, on peut déduire certains processus hydrogéologiques qui ont lieu au sein de l'aquifère comme des arrivées rapides d'eau de surface (Hanin, 2010), et estimer des temps de résidence moyens (Bailly-Comte et al., 2011). La taille des chroniques sur lesquelles les analyses corrélatoires et spectrales sont appliquées varie selon les objectifs : plusieurs dizaines d'années (Andreo et al., 2006), un cycle hydrologique (Angelini, 1997; Hanin, 2010), quelques mois (Larocque, 1997; Valdes, 2005; Lee et al., 2006; Valdes et al., 2006) ou quelques jours (Bailly-Comte et al., 2011). Jemcov & Petric (2009) proposent d'utiliser les infiltrations efficaces en entrée. Une meilleure corrélation est alors obtenue par rapport aux précipitations brutes, notamment pour les sites où l'infiltration lente domine et où l'interception de la pluie par les végétaux est plus importante. Les analyses corrélatoires et spectrales sont également utilisées pour valider des modèles numériques en comparant les corrélations croisées calculées à partir des données simulées et observées (Jukić & Denić-Jukić, 2004; Larocque et al., 2000).

La comparaison de modèles numériques et statistiques permet de s'interroger sur la validité de certaines interprétations des analyses corrélatoires et spectrales. Ainsi, Eisenlohr et al. (1997) montrent que l'interprétation de l'autocorrélation ne dépend pas uniquement de la densité de drainage et de la taille des réserves mais aussi du climat, de la fréquence des événements pluvieux, de la distribution spatiale des pluies et des mécanismes d'infiltration dans le karst. Pulido-Bosch et al. (1995) montrent qu'une inflexion dans la courbe d'autocorrélation n'est pas liée obligatoirement à un changement du type d'écoulement mis en jeu, mais par exemple peut être induite par la présence de neige. Ainsi, l'interprétation des analyses corrélatoires et spectrales doit être réalisée avec prudence et en cohérence avec le système étudié.

De nouvelles méthodes statistiques se développent depuis les années 2000. Par exemple, la réalisation d'analyse partielle, proposé par Jukić & Denić-Jukić (2011), cette méthode permet de séparer les effets de l'évapotranspiration du fonctionnement de l'épikarst. Les ondelettes (Labat et al., 2000) permettent de détecter des structures spatiales et temporelles et donnent ainsi des informations sur la variation du contenu fréquentiel des signaux dans le temps.

### Décomposition des courbes de récession

L'étude de courbes de récession fournit des informations sur la structure et le fonctionnement d'un aquifère, plus particulièrement sur les paramètres hydrodynamiques tels que la perméabilité et le coefficient d'emmagasinement. La courbe de récession des sources est l'image de la vidange de l'aquifère. Elle est habituellement séparée en deux parties, une première partie "flood recession", influencée par les flux rapides et une seconde partie "baseflow recession" qui correspond à la vidange hors pic de crue (figure 1.4).

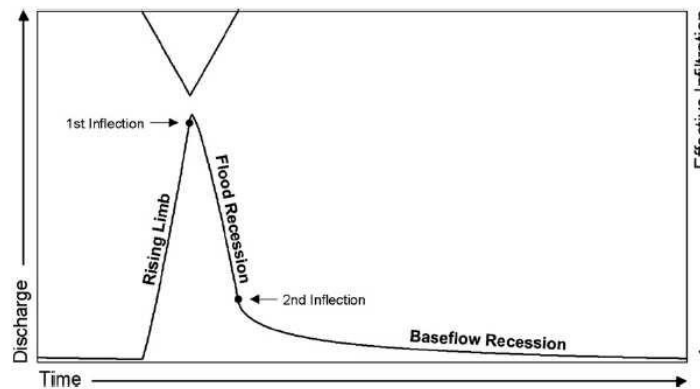


FIGURE 1.4: Schéma de l'hydrogramme d'une source (Kovacs et al., 2008)

Cette méthode repose sur les travaux de [Maillet \(1905\)](#) qui démontre que la forme globale de la récession peut être représentée par une courbe exponentielle. Les différences observées d'une source à une autre sont liées aux propriétés hydrodynamiques de l'aquifère telles que la conductivité hydraulique, le coefficient d'emménagement et le gradient hydraulique. [Maillet \(1905\)](#) approxime la courbe de récession en utilisant un modèle analogue à celui d'un réservoir qui se vidange à travers un bouchon poreux (figure 1.5).

Pour les systèmes karstiques, [Mangin \(1970\)](#) propose un modèle conceptuel en posant l'hypothèse qu'un tel aquifère est représenté par deux "réservoirs" successifs : (i) une composante linéaire représentée par l'équation de [Maillet \(1905\)](#) correspondant à la vidange de la zone saturée et (ii) un réservoir non linéaire représentant les flux dans la zone non saturée (figure 1.5). Cette méthode permet d'estimer les parts de transfert rapide et lent grâce à plusieurs paramètres comme le volume dynamique qui correspond au volume en mouvement dans le réservoir et qui intègre donc une partie des volumes de réserves située sous le niveau d'exutoire ([Mangin, 1970](#); [Marsaud, 1996](#)). [Shevenell \(1996\)](#) propose d'adapter les modèles pour l'analyse des courbes de récession des niveaux piézométriques afin de calculer le rendement spécifique de chaque volume de l'aquifère (conduit, fracture, karst) et leur transmissivité respective.

De nombreux travaux ont été développés en complexifiant les modèles afin de mieux les ajuster aux chroniques mesurées. Ces modèles reposent principalement sur des relations empiriques ou sur les équations de la diffusion ou des approximations de celles-ci ([Dewandel et al., 2003](#)). [Dewandel et al. \(2003\)](#) passent en revue une liste de méthodes d'analyse des courbes de récession. Certains modèles s'appuient sur une succession de réservoir, type Maillet pour caractériser la totalité de la courbe de récession. Chaque réservoir est caractérisé par un coefficient de récession. Dans un premier temps, les coefficients de récession ont été interprétés comme l'image de la perméabilité du réservoir représenté ([Schoeller, 1965](#)). Cette hypothèse a été remise en cause par [Kovács & Perrochet \(2008\)](#) qui ont démontré analytiquement que des hydrogrammes simulés

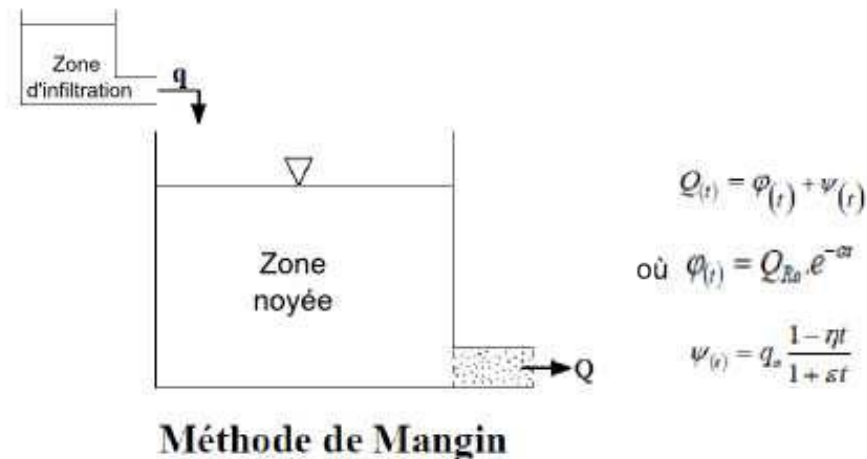


FIGURE 1.5: Présentation du modèle de Mangin (1970). Le modèle est constitué de deux réservoirs indépendants, un représentant la zone noyée et l'autre la zone d'infiltration. Le réservoir représentant la zone noyée est décrit par le modèle de Maillet. Celui représentant la zone d'infiltration a été établi empiriquement ( $\alpha$  est le coefficient de tarissement,  $q_0$  est le débit d'infiltration à l'instant  $t_0$ ,  $\epsilon$  le coefficient d'hétérogénéité d'écoulement et  $\eta$  le coefficient de vitesse d'infiltration) (modifié à partir de Marsaud, 1997).

avec des réservoirs individuels homogènes peuvent être décomposés en trois ou plus de trois composantes. Birk & Hergarten (2010) représentent les deux parties de la courbe de récession à partir de solutions analytiques 2D de modèles à géométries simples. Ils montrent que la première partie de la récession n'est pas une fonction exponentielle mais correspond à une loi puissance décroissante qui dépend des conditions initiales, illustrant la nécessité de prendre en compte de nouvelles composantes comme les infiltrations dans la zone non saturée, le stockage dans les conduits, etc...

### 1.1.3.3 Traçages

L'objectif des traçages est de définir le bassin d'alimentation des sources et les chemins préférentiels d'écoulement et de déterminer les vitesses d'écoulement et le temps de résidence des eaux souterraines.

Le terme traceur définit tout caractère spécifique ou toute substance solidaire d'un corps en mouvement, notamment de l'eau en déplacement, permettant de l'identifier et de décrire son mouvement (Castany & Margat, 1977). En hydrogéologie, un traceur peut être soit une substance transportée par l'eau à l'état solide ou dissous, soit une propriété physique de l'eau telle que la conductivité ou la température. Deux types de traceurs sont classiquement utilisés pour l'étude des systèmes karstiques : les traceurs artificiels et naturels. L'utilisation d'un troisième type de traceurs se développe : les traceurs de datation.

## Les traçages artificiels

L'objectif des traçages artificiels est de définir le bassin d'alimentation, d'identifier l'organisation du réseau de drainage et de déterminer les vitesses de transfert. Un traçage artificiel consiste à associer aux molécules d'eau une substance, absente dans les conditions naturelles de l'aquifère qui permet de suivre leur mouvement (sel, colorant...).

Le traceur artificiel est une substance qui doit donc être détectable quand elle est incorporée dans l'eau (Castany & Margat, 1977). Idéalement, il doit avoir les mêmes propriétés physiques et chimiques que l'eau (viscosité, densité...) et ses variations de concentrations ne doivent pas affecter les propriétés des molécules d'eau.

Le traçage artificiel consiste à injecter en un point défini (forage, doline, conduit) une quantité connue de traceurs et de suivre la restitution de celui-ci au niveau de sources au cours du temps. A partir des courbes de restitution du traceur, différents paramètres peuvent être extraits dont le temps de transit minimal, qui correspond à l'apparition des premières molécules de traceur à l'exutoire, le temps modal de transit, qui correspond au temps du maximum du pic de restitution, et le taux de restitution. La réponse impulsionnelle est représentée par la courbe de distribution des temps de séjours. Il s'agit d'une fonction de densité de probabilité qui donne la probabilité qu'une molécule reste dans le système durant un temps  $t$ . A partir de cette courbe, la vitesse apparente peut être calculée ; elle rend compte de la vitesse de propagation du centre de gravité du nuage à l'intérieur du système.

Le développement de matériel in-situ mesurant les concentrations de traceur en continu et de préleveurs automatiques permet d'obtenir des courbes de restitution plus juste (Goldscheider et al., 2008). De nombreuses études s'intéressent aux propriétés des traceurs et à l'impact du choix des points d'injection (Käss, 1998; Kogovsek & Petric, 2003; Goldscheider et al., 2008).

En raison de l'hétérogénéité des aquifères karstiques, les informations apportées par les traçages artificiels ne caractérisent que la partie parcourue par le traceur (Marsaud, 1996).

## Les traceurs naturels dans l'hydrologie karstique

La composition géochimique de l'eau souterraine reflète son parcours et son évolution au sein de l'aquifère carbonaté. Les traceurs naturels géochimiques et isotopiques qui sont contenus dans l'eau souterraine sont des indicateurs des processus d'infiltration, des temps de transit de l'eau dans le milieu souterrain, des interactions eau-roche, des conditions d'écoulement (par exemple, écoulements en système fermé ou ouvert) et de la participation relative des différents réservoirs de l'aquifère.

Les traceurs naturels géochimiques et isotopiques habituellement utilisés pour l'étude des milieux karstiques sont les anions et cations majeurs et notamment les éléments du système calco-carbonique, qui caractérisent le temps de résidence de l'eau souterraine (Ladouche et al.,

2001; Valdes, 2005; Moral et al., 2008; Mudarra et al., 2011), la composition isotopique du  $^{13}\text{C}$  qui permet de dissocier les sources de carbone (Lee & Krothe, 2001; Emblanch et al., 2003; Adinolfi et al., 2008), les isotopes stables de l'eau qui fournissent des informations sur la recharge (Ladouche et al., 2001; Emblanch et al., 2003; Perrin et al., 2003; Long & Putnam, 2004; Aquilina et al., 2005; Barbieri et al., 2005; Doctor et al., 2006), le radon qui peut mettre en évidence des arrivées d'eau de surface (Adinolfi et al., 2008; Savoy et al., 2011) et les isotopes du strontium (Widory et al., 2004). La majorité des études reposent sur l'utilisation de plusieurs traceurs en parallèle, étudiés à différentes échelles spatiales et temporelles (étiage, pic de crue).

La connaissance de la composition géochimique des différents "réservoirs" des systèmes karstiques (zone saturée, épikarst, zone d'infiltration) permet à partir de modèles conceptuels et de calcul de mélange de déterminer l'importance relative des différents compartiments dans la composition des eaux souterraines (Lee & Krothe, 2001; Emblanch et al., 2003; Mudarra et al., 2011).

Une description détaillée de certains traceurs est présentée dans la section "Matériel et Méthodes".

### Les traceurs de datation

Afin d'étudier l'écoulement des eaux souterraines dans les milieux karstiques, et estimer les temps de résidence de celles-ci, des traceurs de datation peuvent être utilisés (Katz et al., 2001; Gooddy et al., 2006; Happell et al., 2006). Il s'agit principalement de traceurs de datation des eaux récentes (moins de 50 ans). Les plus utilisés sont les CFCs, le  $\text{SF}_6$ , le  $^3\text{H}$  et le rapport  $^3\text{H}/^3\text{He}$ . Ces traceurs de datation fournissent une information sur le temps de résidence moyen des eaux souterraines. Couplés à des modèles "lumped parameter model", ils permettent de décomposer ces eaux souterraines et de mettre en évidence certains processus d'écoulement tels que les transferts par effet piston ou la présence de mélange d'eau d'âge différents.

Une description détaillée de ces traceurs est présentée dans la section "Matériel et Méthodes".

#### 1.1.3.4 Modélisation des aquifères karstiques

La modélisation en milieu karstique est complexe en raison de l'hétérogénéité des paramètres hydrodynamiques. Pourtant la modélisation est un outil important d'analyse, de prévision et de test d'hypothèses. Différents types de modèle apparaissent dans la littérature : les modèles réservoir, les modèles de déconvolution et les modèles physiques.

## Les modèles réservoir

Il s'agit de l'adaptation de modèles d'hydrologie de surface. Le principe est de simuler la transformation de la pluie en débit par une succession de réservoirs simulant les principaux mécanismes du cycle de l'eau. Le stockage est représenté par des réservoirs qui se remplissent et se vident au cours du temps. Les transferts d'un réservoir à l'autre sont régis par des lois simples, elles-mêmes contrôlées par les paramètres de modèles. Classiquement, ce type de modèle comporte deux types de fonction (Fleury et al., 2007) :

- une fonction de production qui détermine quelle quantité d'eau sera apportée au modèle et quelle quantité sera évapotranspirée ou s'infiltrera dans les horizons inférieurs,
- une fonction de transfert qui détermine à quel moment l'eau qui n'a pas été évapotranspirée ressortira à l'exutoire du bassin ou arrivera à la nappe.

De nombreux modèles existent dans la littérature (Jukić & Denić-Jukić, 2004; Fleury et al., 2007; Geyer et al., 2008; Tritz et al., 2011), quelques exemples sont présentés en figure 1.6. Certains modèles sont extrêmement complexes et nécessitent de déterminer de nombreuses variables rendant difficile leur généralisation à d'autres systèmes karstiques.

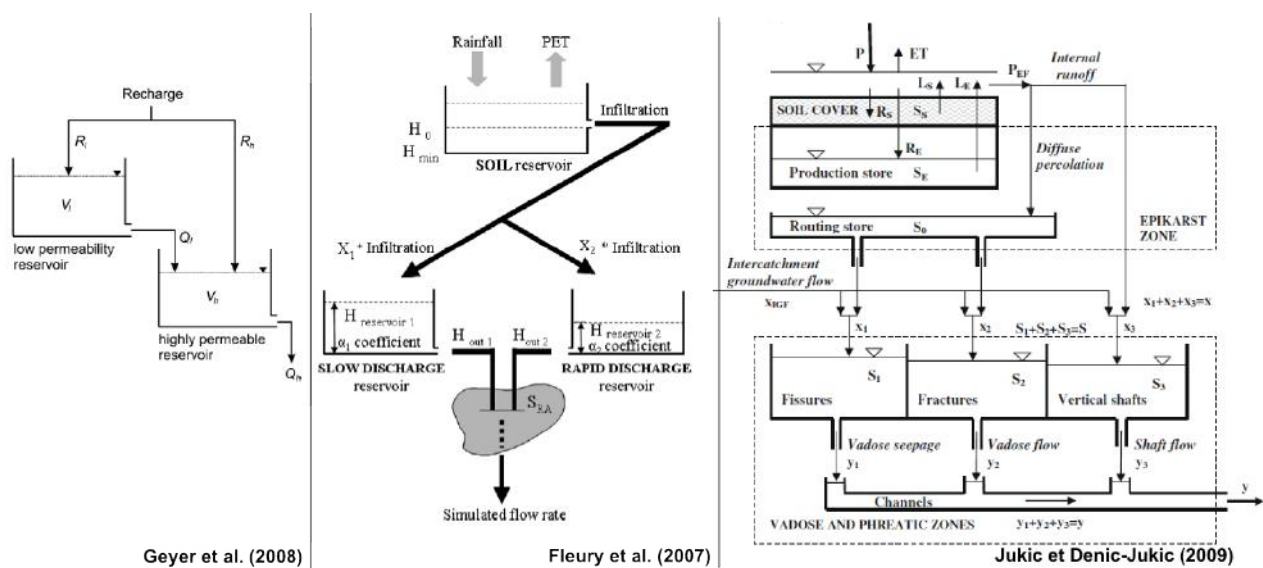


FIGURE 1.6: Exemples de modèles réservoirs (Jukić et Denić-Jukić, 2009; Geyer et al., 2008; Fleury et al., 2007).

## Les modèles de déconvolution, ajustement des hydrogrammes de sources

Ce type de modèle cherche à déterminer l'hydrogramme unitaire du système par déconvolution des chroniques de débit, c'est la réponse impulsionnelle.

Ces modèles ont pour but d'identifier et de quantifier les différentes composantes des écoulements. Ils reposent sur l'hypothèse qu'une équation de convolution relie les pluies et les débits

par une fonction de transfert, caractéristique du système : la réponse impulsionnelle  $h(\tau)$ . Elle intervient dans l'équation :

$$Q(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} h(\tau)P(t - \tau)d\tau \quad (1.3)$$

où  $Q(t)$  correspond au débit au temps  $t$ ,  $P(t)$  représente la pluie,  $h(\tau)$  est la fonction de transfert ou réponse impulsionnelle,

La réponse impulsionnelle peut être calculée à partir des chroniques d'entrée comme par exemple la pluie et de sortie comme par exemple le débit d'une source.

Ces modèles reposent sur une hypothèse forte : ils supposent le karst linéaire. Or, un aquifère karstique n'est pas linéaire du fait de l'hétérogénéité de ces écoulements et du stockage dans l'épikarst. Ces modèles induisent donc une erreur significative. Pour pallier ce problème, [Jukić & Denić-Jukić \(2004\)](#) proposent de nouvelles formes de fonction de transfert appelées "composante transfert function" qui simulent le débit à partir de deux fonctions de transfert, représentant respectivement les deux types d'écoulement présents au sein d'un aquifère karstique (rapide, lent).

### Les modèles physiques ou distribués

Ces modèles reposent sur la physique des écoulements et les processus qui ont lieu au sein de l'aquifère. Ils reposent pour l'essentiel sur une représentation du milieu karstique, sur les lois d'écoulement et sur leur résolution en différences ou éléments finis. Ils simulent les hydrographes de sources ou les niveaux d'eau dans des piézomètres et les comparent aux valeurs observées. Différents types de modèles existent et se développent :

- les modèles dits à milieu poreux équivalent, où les caractéristiques de l'aquifère sont moyennées. En raison de la forte hétérogénéité des aquifères karstiques (champ de perméabilité, porosité, gradient hydraulique) ils restent difficiles à mettre en place,
- les modèles à réseau de fracture : le milieu karstique est représenté par un réseau de fractures. La matrice est considérée comme imperméable,
- les modèles à double porosités : ces modèles considèrent la juxtaposition de deux milieux : le réseau de conduits et le réseau de fractures,
- les modèles à triple porosités : ces modèles considèrent la juxtaposition de trois milieux : le réseau de conduits, le réseau de fractures et la matrice.

Ces modèles reposent tous sur la connaissance de paramètres hydrogéologiques du milieu tels que la densité des fractures, la porosité, la perméabilité. Ces paramètres ne peuvent pas être



connus en tout point dans un aquifère karstique en raison de l'hétérogénéité des systèmes karstiques. Néanmoins, la comparaison de ces modèles avec la réalité permet de mieux comprendre les processus physiques qui ont lieu au sein de l'aquifère karstique.

## 1.2 Présentation du site d'étude

### 1.2.1 Contexte géographique

#### *Localisation et topographie*

Le site d'étude se situe en Bourgogne, dans le département de la Côte d'Or, à environ 30 km au Nord Ouest de Dijon figure 1.7. La zone d'étude correspond au bassin versant de surface de la Douix de Léry, d'une superficie d'environ 40 km<sup>2</sup> (figure 1.8).

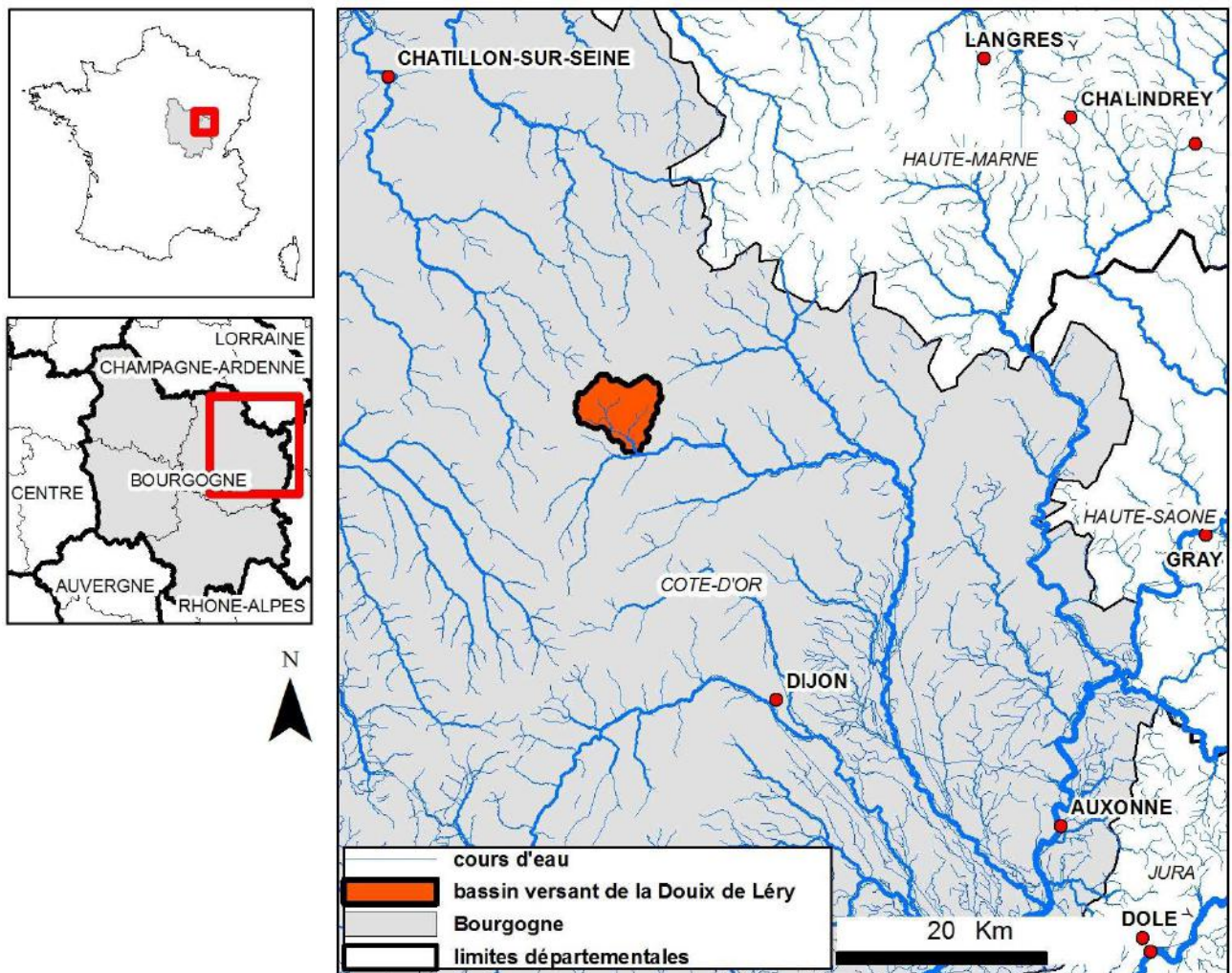


FIGURE 1.7: Localisation du site d'étude.

D'un point de vue topographique, la partie centrale de la zone d'étude possède une morphologie caractéristique en **dôme topographique** sur lequel est implanté le site du CEA de Valduc (figure 1.8). Il s'agit d'une configuration topographique intéressante, l'impluvium et les exutoires (nombreuses sources connues à la base du dôme) étant bien définis. L'altitude du dôme topographique varie de 365 m NGF à 501 m NGF .

L'étude se fera à deux échelles : celle du bassin versant et celle du dôme topographique délimitée dans la figure 1.8.

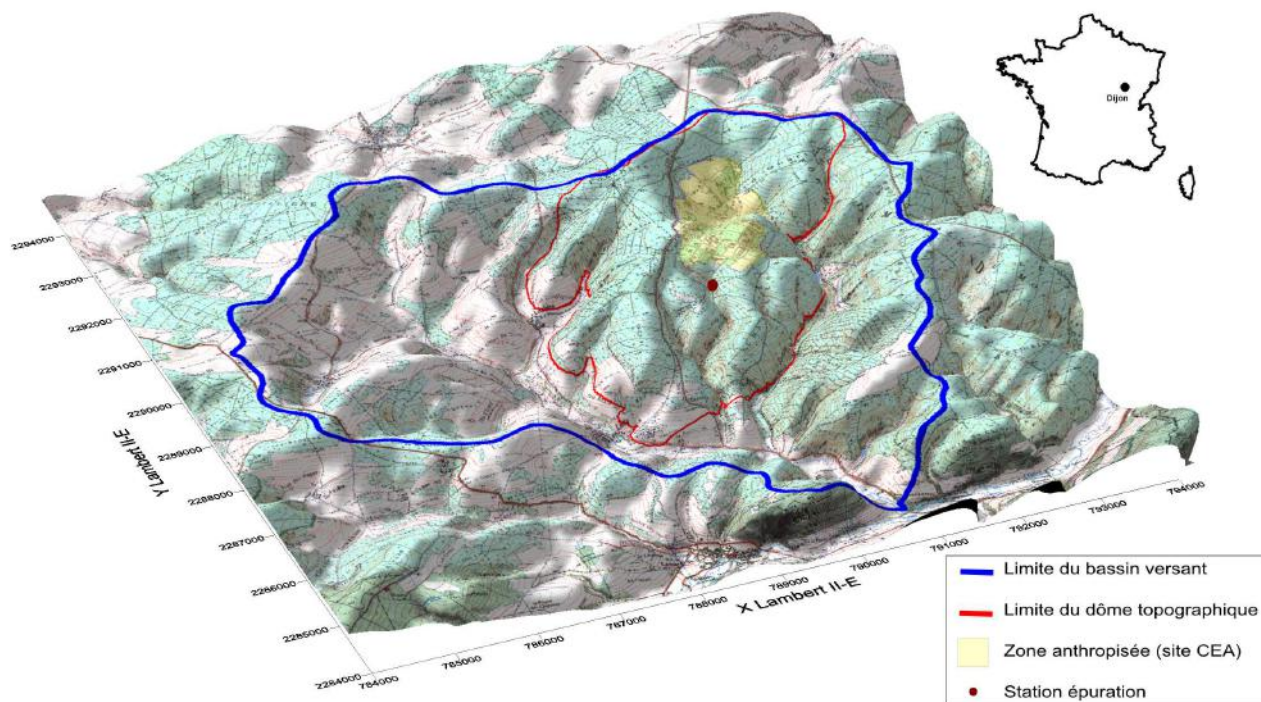


FIGURE 1.8: Topographie de la zone d'étude (Fond de carte, IGN 2003a).

### *Occupation du sol*

L'occupation du sol du bassin de la Douix de Léry est de 3 grands types (figure 1.8) :

- *forestier* : ce type est majoritaire sur le site d'étude, il représente environ 82,5 % du bassin versant de la Douix de Léry,
- *agricole* : principalement lié à la culture céréalière,
- *anthropique* : lié aux routes, aux villages mais surtout au Centre CEA de Valduc, situé dans la partie haute du dôme topographique. Le site du CEA, d'une superficie d'environ 1,8 km<sup>2</sup>, constitué principalement de bâtiments, de routes et de parkings goudronnés, induit la présence de ruissellement et de zones d'infiltration préférentielles ponctuelles. Les eaux usées du site sont traitées puis rejetées dans une combe au sud du site (figure 1.8), les rejets sont de l'ordre de 500 m<sup>3</sup> d'eau par semaine. Enfin, des campagnes de salage des routes ont lieu durant les périodes hivernales.

### 1.2.2 Contexte climatique

La région est sous l'influence d'un climat de type continental tempéré. Les données climatiques sont fournies par MétéoFrance au niveau de la station de Saint Martin du Mont, située à 18 km

au Sud-Sud-Ouest du site d'étude.

La température moyenne annuelle de l'air est de  $+9,7^{\circ}\text{C}$ , avec une moyenne mensuelle minimum de  $+1,6^{\circ}\text{C}$  durant le mois de janvier et une moyenne mensuelle maximum de  $+18,3^{\circ}\text{C}$  durant le mois d'août (1993-2012, figure 1.9).

La région est caractérisée par un cumul de précipitations allant de 689 mm à 1215 mm par cycle hydrologique (octobre-octobre), avec une moyenne de 947 mm et un écart type de 157 mm (1993-2012). Les mois les plus pluvieux sont octobre, novembre, décembre et mai, et les mois les moins pluvieux sont février et mars (figure 1.9).

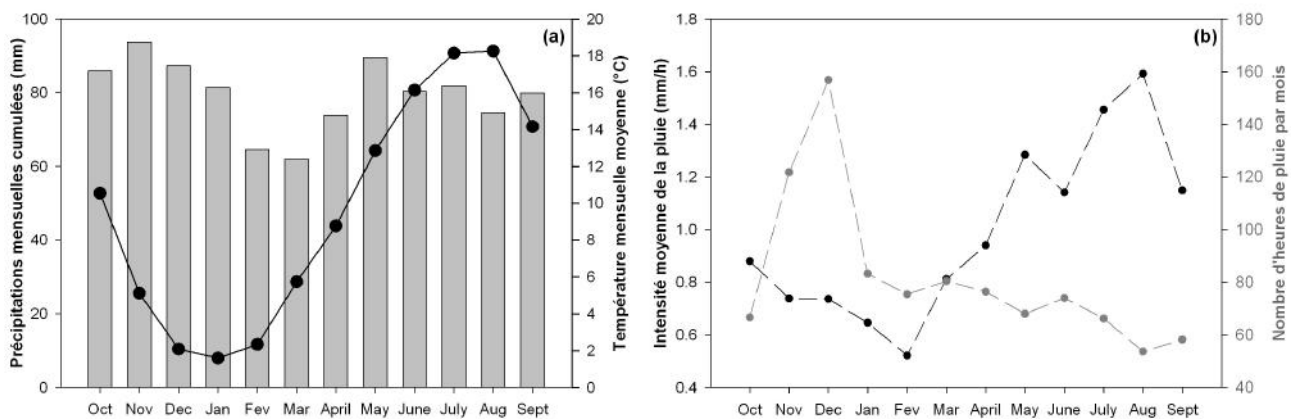


FIGURE 1.9: Caractéristique des précipitations. (a) Précipitations mensuelles moyennes et températures mensuelles moyennes (période 1993-2012, Station MétéoFrance de Saint Martin du Mont). (b) Intensité moyenne mensuelle des précipitations et nombre d'heures de pluie moyen par mois (10/2006-09/2012). L'intensité moyenne des pluies, en mm/h, est définie comme la moyenne des intensités de pluie, en mm/h, en ne prenant en compte que les pluies supérieures à zéro.

L'intensité des pluies varie saisonnièrement avec un maximum en juillet et août alors que durant cette période, le nombre d'heures de pluie par mois est le plus faible (figure 1.9). La période où les épisodes de pluie sont les plus fréquents correspond à la période d'excédent hydrique de l'aquifère, en novembre-décembre. Durant cette période, l'intensité des pluies est faible mais elles sont régulières.

## 1.2.3 Géologie du site d'étude

### 1.2.3.1 Contexte géologique régional

La région nord de la Côte d'Or est une vaste étendue de plateaux calcaires du Dogger entaillés de talwegs aux pentes fortes (Rat, 2006). Ces plateaux sont soulevés par une structure anticlinale qui sépare deux bassins sédimentaires : au nord-ouest le bassin de Paris, au sud-est le bassin

bressan (figure 1.10). L'érosion de l'anticlinal met à nu des formations du Dogger. Vers le sud-est, le Dogger s'effondre sous le fossé bressan à la faveur d'accidents normaux mettant en jeux des systèmes de demi-grabens. Le seuil de Bourgogne est aujourd'hui la limite de partage des eaux entre les bassins versants de la Seine au nord et de la Saône au sud.

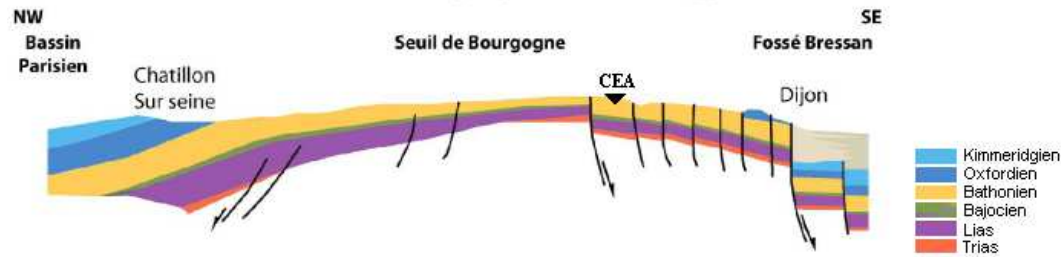


FIGURE 1.10: Coupe géologique du seuil de Bourgogne (Rat, 2006).

### *Histoire sédimentaire*

Trois grandes phases géologiques ont façonné l'actuel seuil de Bourgogne :

a. Formation du socle paléozoïque témoin de l'orogénèse hercynienne :

Les plus anciennes roches de la Bourgogne datent du Cambrien inférieur. L'ensemble des roches formées et préservées consécutivement à l'orogénèse hercynienne est regroupé sous le terme générique de socle. La base métamorphique ancienne est recouverte par des dépôts sédimentaires et volcaniques annonçant les déformations orogéniques qui les plissent et les métamorphisent. Le paroxysme orogénique est daté du Carbonifère moyen par de nombreuses intrusions granitiques. L'enregistrement du Paléozoïque s'achève par la vaste pénéplaination antétriasique reconnue à l'échelle du territoire national.

b. Accumulation des formations marines cénozoïque :

Au Mésozoïque, plusieurs épisodes transgressifs de grande ampleur se traduisent par un empilement de séries sédimentaires majoritairement marines et d'étendues régionales. Les dépôts témoignent d'une mer peu profonde, où l'accumulation sédimentaire importante a été favorisée par une subsidence. Trois phases sont identifiées et correspondent à des cycles de transgression/régression marines. Le premier cycle commence au Trias moyen par l'inondation de la vaste étendue laissée par la pénéplaination, et s'achève au Jurassique supérieur par la régression dite purbeckienne. Dans un premier temps, les apports silico-clastiques, amenés par l'érosion des reliefs environnants, accumulent une puissante formation à dominante argileuse du Trias au Lias. Une production carbonatée franche s'installe dès la fin du Lias et devient dominante sur la deuxième moitié du cycle. Ce premier cycle est constitué d'une répétition de séquences très similaires dont font partie les marnes et calcaires intéressant notre étude. Aucun témoin des deux cycles suivants, cycles Crétacé inférieur et Crétacé supérieur, n'est préservé sur le seuil de Bourgogne. Les premiers faciès crétacés rencontrés autour du seuil semblent indiquer

une profondeur permettant une inondation complète de la région. L'émergence définitive du seuil de Bourgogne date du début de l'ère tertiaire avec les dépôts terrigènes lacustres de l'Eocène au nord de Dijon. Cependant, il est difficile de connaître l'importance des émergences durant le Crétacé. Cette émergence amorce les processus d'altération et de karstification.

### c. Émergence et influence tectonique du Tertiaire à l'actuel :

Depuis l'ère tertiaire jusqu'à nos jours, le seuil de Bourgogne reste émergé. Du Paléocène à la fin de l'Oligocène, la mer s'est retirée laissant place à une vaste étendue où se développent une pédogénèse et une sédimentation terrigène.

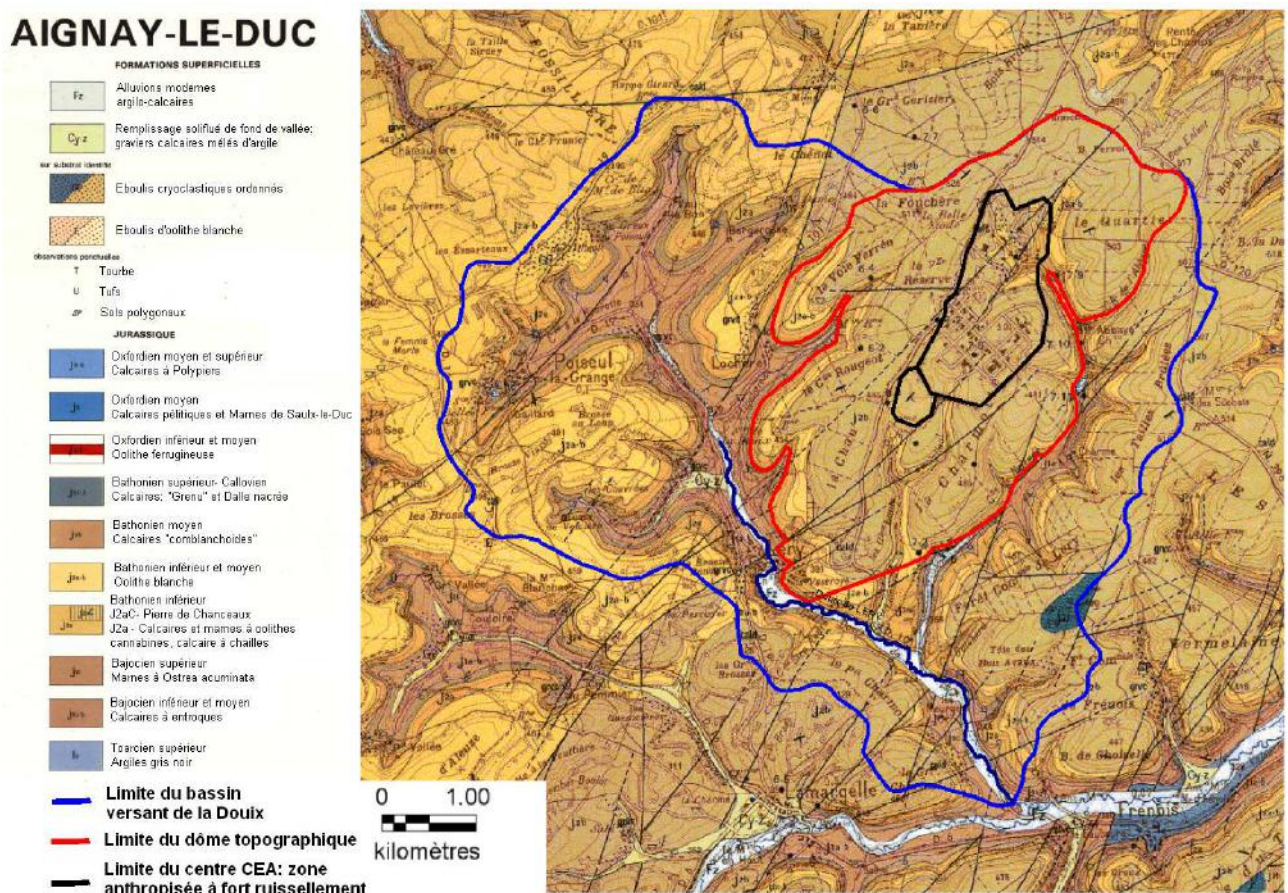


FIGURE 1.11: Géologie sur le site d'étude. Localisation des limites du bassin versant associé à la rivière Douix de Léry, du dôme topographique et du Centre CEA de Valduc. Fond cartographique BRGM (2004)

### *Histoire tectonique*

La structuration du seuil de Bourgogne est polyphasée. Pour rendre compte de son organisation actuelle, il faut remonter aux déformations qui ont affecté profondément le sous sol bourguignon durant la surrection hercynienne, avec une direction principale NW-SE, ainsi qu'une plage de direction balayant de 45° centrée sur le NE-SW. La phase de relâchement des contraintes post-hercyniennes provoque un effondrement de blocs différenciés entre ces directions. Ces effondrements de blocs amorcent un système de déformation qui se reproduira au secondaire et au

tertiaire. Durant le secondaire, une phase de subsidence a lieu. A l'Eocène apparaît le premier évènement tectonique qui démantèle la couverture sédimentaire bajocienne-bathonienne. Les faiblesses du socle sont remises en mouvement par les jeux plus récents et se dessinent dans la structuration de la couverture. Les directions varisques NW-SE et SE-NW affectant profondément le socle sont réactivées. Elles engendrent en Bourgogne la mise en place de grands cisaillements, aboutissant à la formation de bassins quadrangulaires. Des fractures de décrochement senestre de direction NE-SW apparaissent. Une direction NW-SE à coulissement dextre apparaît de manière moins courante. Ces deux directions constituent un maillage de la couverture qui est réemprunté par les différentes phases tectoniques actives post-éocènes. A l'Oligocène, l'ouverture du fossé bressan s'accroît lors d'une phase distensive. Au Miocène, la compression de l'orogénèse alpine inverse le mouvement. Actuellement, la remontée du continent africain tend à ouvrir toute la fracturation, parallèle au sens de contraintes N-S.

### 1.2.3.2 Description des couches sédimentaires

Sur les 200 premiers mètres de profondeur, le sous-sol du bassin versant de la Douix de Léry est constitué de formations géologiques du Bathonien, Bajocien et Toarcien avec une alternance de formations calcaires aquifères et de formations marneuses et argileuses très peu perméables (figure 1.11 et figure 1.12).

L'empilement sédimentaire (figure 1.12) est constitué du bas vers le haut :

- d'*argiles micacées du Toarcien supérieur*. Cet étage présente une seule unité stratigraphique : les argiles quartzo-micacées, gris noires. Ces argiles calcaires (8 à 12 % de CaCO<sub>3</sub>) sont finement sableuses et micacées,

- des *calcaires à entroques du Bajocien* : ensemble de faciès bioclastiques ou construits avec de fréquentes variations latérales, caractérisé par les nombreux crinoïdes observables d'où la dénomination « calcaire à entroque »,

- des *marnes à Ostrea Acuminata du Bajocien* : alternance de marnes et de calcaires argileux (40 à 90 % de CaCO<sub>3</sub>). L'analyse de carottes de roche a montré que sous le dôme de Valduc, l'épaisseur moyenne des marnes est de 17 mètres. Elles sont caractérisées par une très faible perméabilité,

- des *calcaires à oncholites cannabines et calcaires à chaille du Bathonien* : alternance de bancs à oncholites cannabines et de bancs qui en sont dépourvus. Divers niveaux de calcaire à chailles s'y intercalent. A la base de cette unité stratigraphique apparaissent des bancs lumachelliques,

- des *oolithes blanches du Bathonien* : calcaire très pur (99,5 % de CaCO<sub>3</sub>) et très blanc, à oolithes et bioclastes roulés, gélifractés et délitables

-des *calcaires comblanchoïdes du Bathonien* : calcaires compacts en bancs massifs (0,05 à 2 mètres), à grains très fins et cassures franches, conchoïdales, avec de nombreux joints stylolithiques.

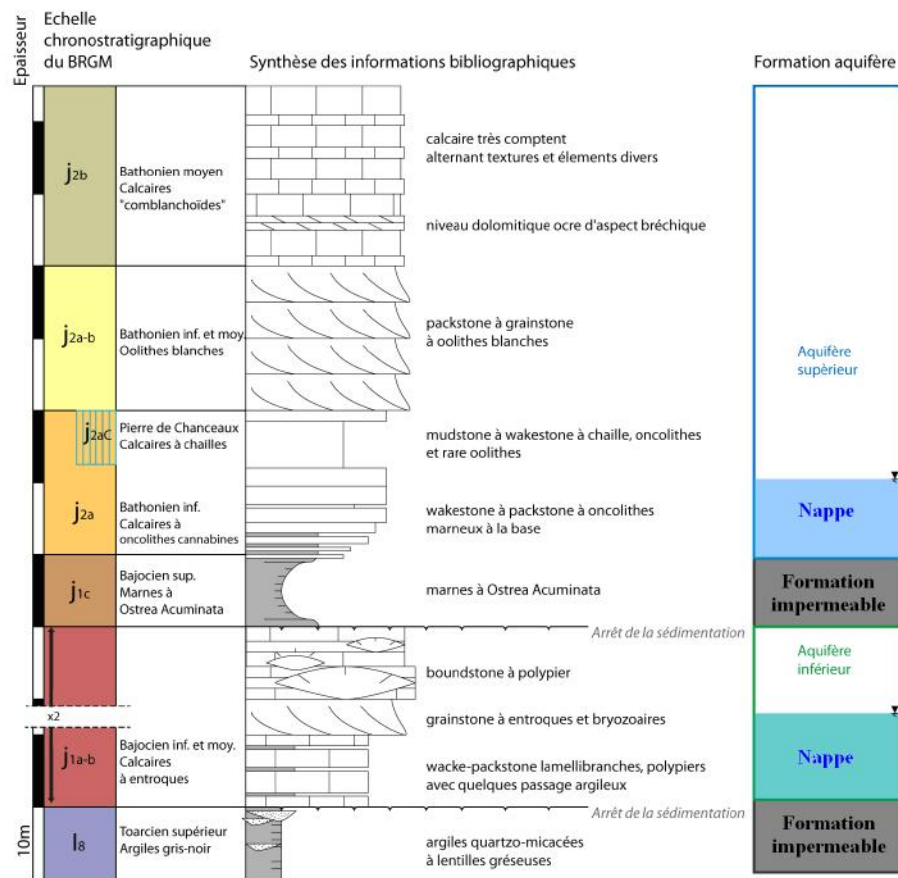


FIGURE 1.12: Echelle lithostratigraphique

#### 1.2.4 Hydrogéologie : un milieu à triple porosité

La stratigraphie est caractérisée par une alternance de formations calcaires et de formations marneuses et argileuses très peu perméables qui permet le développement de **deux aquifères superposés**, respectivement dans les calcaires de Bajocien et du Bathonien, séparés par les marnes à *Ostrea acuminata*. Les noms de nappe inférieure et nappe supérieure sont employés (figure 1.12). L'analyse de carottes de roche a permis d'estimer les épaisseurs moyennes des deux nappes. Ainsi, l'épaisseur moyenne de la nappe supérieure est de 10 m, l'épaisseur de sa zone non saturée varie fortement sur le site, atteignant 70 m sur la partie haute du dôme topographique. Pour la nappe inférieure, la moyenne de l'épaisseur de la zone non saturée est de 16 m et l'épaisseur de la zone saturée d'environ 24 m. L'infiltration de la nappe supérieure vers la nappe inférieure par drainance verticale est faible en raison de la faible perméabilité des marnes à *Ostrea acuminata*. Néanmoins, au niveau des zones à fortes discontinuités géologiques, la nappe supérieure peut être en contact avec la nappe inférieure, ceci peut induire des pertes d'eau de la nappe supérieure vers la nappe inférieure.



Une carte piézométrique de l'aquifère de la nappe supérieure réalisée à partir de 27 points de mesure (sources et forages) est présentée sur la figure 1.13. Cette carte permet de visualiser le sens majeur des écoulements et souligne la forme de “dôme” de la surface piézométrique. En milieu karstique, des écoulements peuvent avoir lieu dans les autres directions par les réseaux de fractures et de conduits.

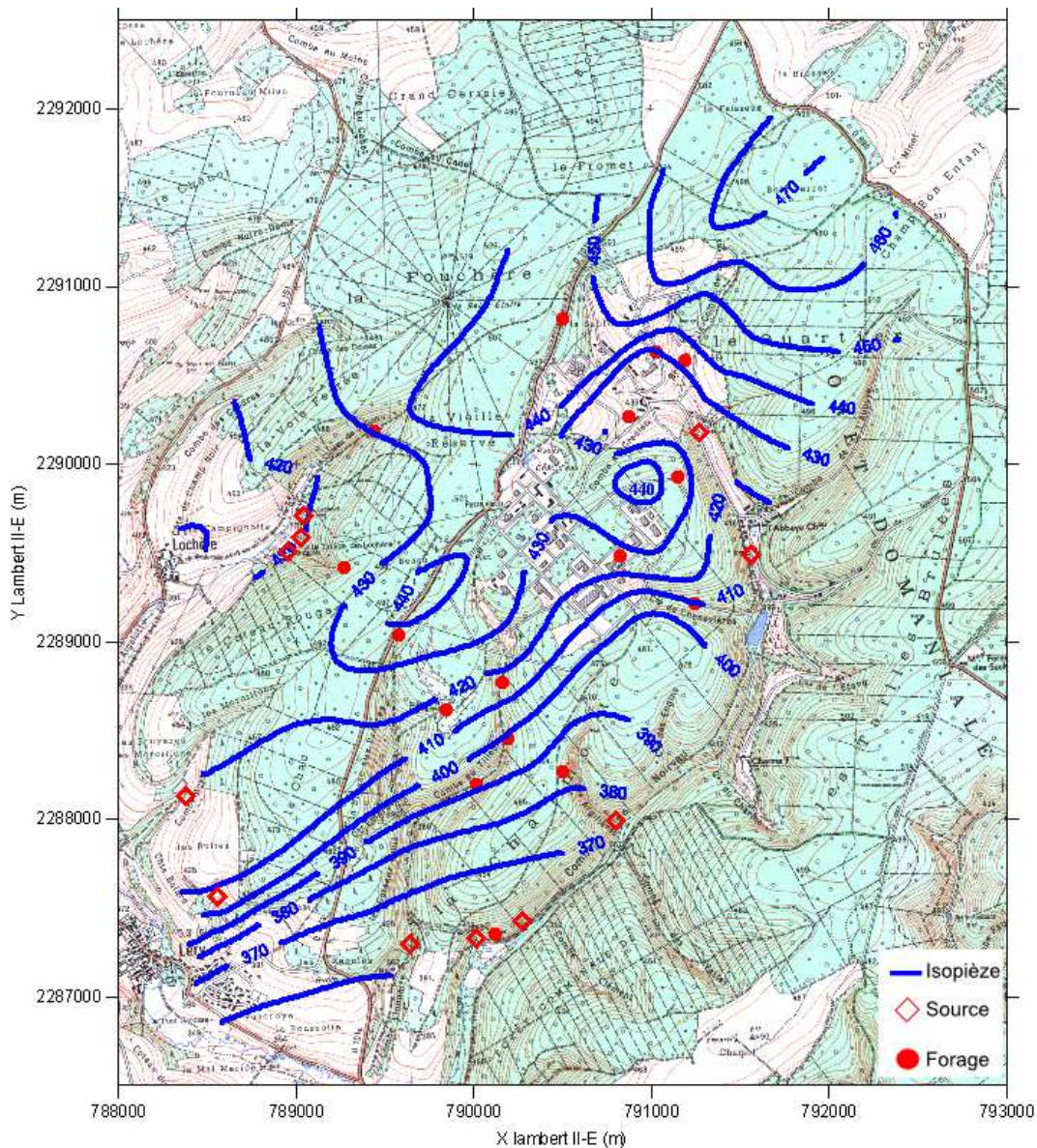


FIGURE 1.13: Carte piézométrique de la zone d'étude.

L'histoire sédimentaire et tectonique de la zone d'étude confère aux calcaires une triple porosité : une porosité de matrice liée à la structure interne des calcaires, une porosité de fracture liée à l'histoire tectonique de la région et aux nombreuses failles et blocs basculés présents sur la zone, et une porosité de conduits liée à la karstification par dissolution des calcaires (figure 1.14).

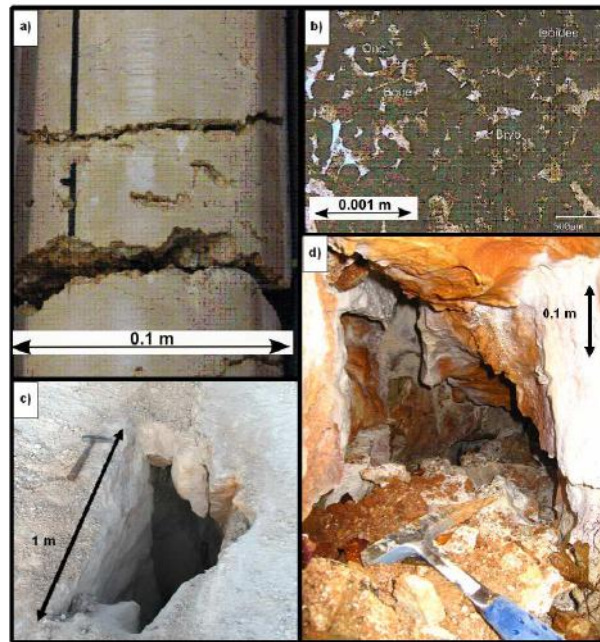


FIGURE 1.14: Les différents types de porosités observables sur le site d'étude : fractures à l'échelle d'une carotte de roche (a), réseau poreux matriciel intergranulaire sur lame mince (b) et karsts plurimétriques à l'affleurement (c et d).

#### 1.2.4.1 Porosité de matrice

La conductivité hydraulique et la porosité de la roche constituant les différentes couches stratigraphiques ont été mesurées à l'aide d'un perméamètre à air et par porosimétrie mercure. Les méthodes sont rappelées dans l'annexe 1 (Alban, 2010, 2011). Afin d'approcher les propriétés réservoirs du sous-sol du site d'étude, la totalité des informations pétrophysiques mesurées pour chaque couche a été moyennée. La densité de stylolithes observées sur les sondages carottés est aussi prise en compte. La figure 1.15 illustre les résultats obtenus.

L'étude stratigraphique a permis de caractériser les calcaires caractéristiques des aquifères étudiés à l'échelle matricielle et d'en déduire leurs propriétés réservoir. Ainsi, la porosité totale de ce milieu matriciel est de l'ordre de 10 % en volume et la conductivité hydraulique est en moyenne de  $4 \cdot 10^{-8}$  m/s (Lassus & Loisy, 2006; Cerepi & Loisy, 2008, 2009).

Plus précisément, à l'échelle matricielle, les calcaires à entroques (J1a-b) présentent une porosité efficace importante malgré une faible porosité totale. Du toit des marnes (J1c1) au toit des calcaires comblanchoïdes (J2b), il est possible d'identifier deux ensembles. Le premier s'étend du toit des marnes J1c1 au toit des oolithes blanches (J2a-b2). L'augmentation croissante de la taille des pores vers le haut de cet ensemble aboutit à une porosité importante de 16 % (7 % de porosité efficace) dans les unités J2a-b1 et J2a-b2. L'accroissement de la perméabilité et de la taille des pores se corrèle à l'augmentation de la porosité. Le deuxième ensemble, les calcaires comblanchoïdes, se caractérise par une porosité totale de 5 %, la porosité liée et la perméabilité intrinsèque y sont très faibles (figure 1.15).

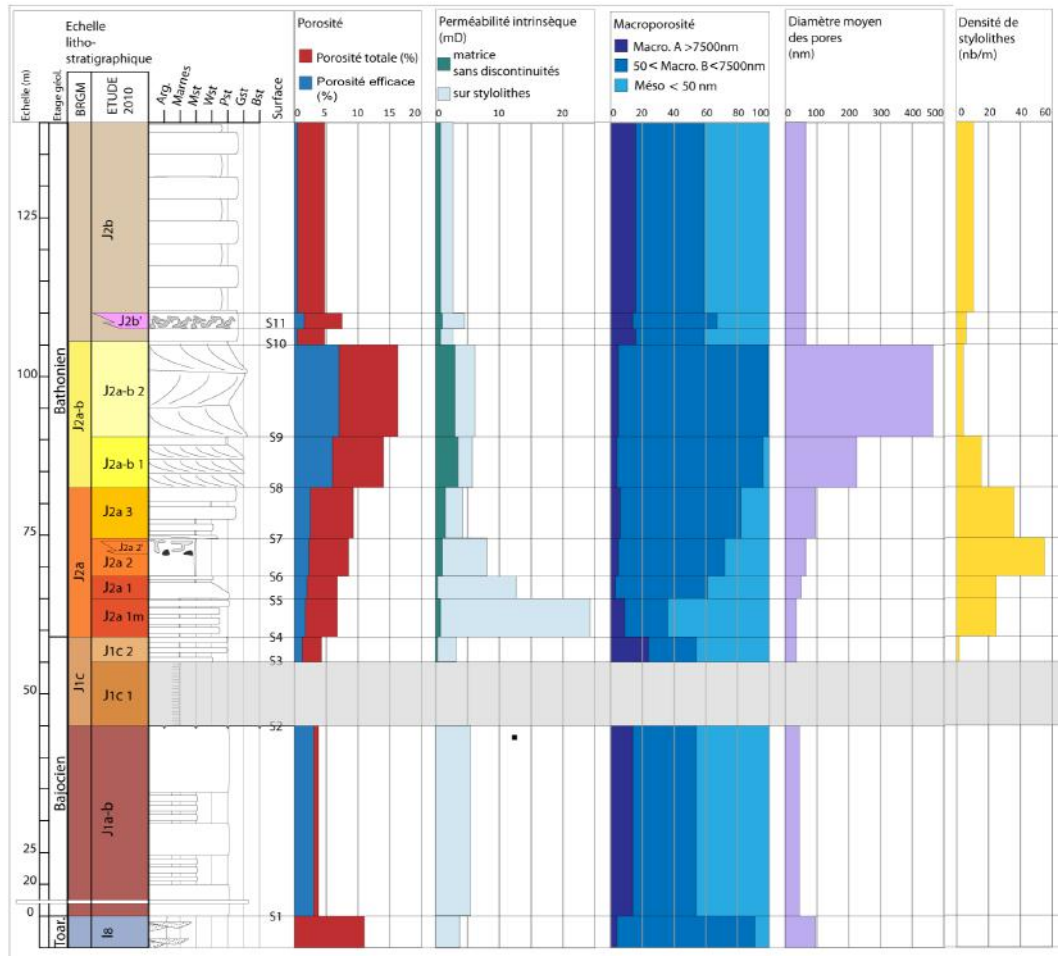


FIGURE 1.15: Propriétés réservoirs par unité lithostratigraphique (Alban, 2010)

Dans l'unité J2a2, de nombreuses stylolithes sont identifiables. Les stylolithes de type diagénétique ne permettent pas de conclure sur d'éventuelle propriété réservoir. Cependant, l'essai de perméabilité à l'air effectué sur un échantillon traversé par une stylolithe tectonique recristallisée et partiellement karstifiée (ouverture de l'ordre du demi-millimètre) donne une valeur de perméabilité intrinsèque de  $2,01 \cdot 10^{-7}$  m/s dans l'unité du comblanchoïdes qui contraste avec la valeur matricielle de  $9,6 \cdot 10^{-9}$  m/s (Alban, 2011).

#### 1.2.4.2 Porosité de fractures

De nombreuses fractures (figure 1.14), témoins de la tectonique passée qui a impacté les calcaires du Bathonien et du Bajocien sont identifiables sur le site d'étude, en affleurement ou sur des sondages. L'ouverture ainsi que le pendage ont pu être mesurés. L'estimation de la porosité de fracture est très difficile en raison de la forte hétérogénéité de la fracturation sur le site d'étude. Néanmoins, on observe que l'ouverture des fractures varie du mm jusqu'à atteindre 20 cm pour certaines. La majorité d'entre elles sont de l'ordre de quelques centimètres, avec une moyenne de 3 cm pour 654 fractures observées. Il est difficile d'établir un lien entre taille des fractures et lithologie, cependant, on peut noter que les fractures le plus ouvertes observées se situent dans

la couche sédimentaire J2a2. Sur 18 affleurements de roche observés sur le site, l'écartement moyen entre les fractures est de 2 m, mais celui-ci varie de façon significative entre 0,10 et 9 m.

### 1.2.4.3 Porosité de conduits

Régionalement, des conduits karstiques de diamètre important ont pu être identifiés. Sur le site, des conduits karstiques de tailles variables mais ne dépassant par quelques mètres ont pu être observés à l'affleurement (figure 1.14) ou par sondage géologique (au niveau des forages F7 et C4). Aucune cavité souterraine permettant une reconnaissance spéléologique n'est connue sur le site. D'un point de vue stratigraphique, la karstification la plus intense se situe dans le Bathonien. Des traçages artificiels ont été effectués à différents endroits du site, ces traçages ont permis de mesurer une vitesse modale variant entre 15 et 555 m/j (Antea, 2010).

*Le site d'étude est caractérisé par trois types de porosité, plus exactement une distribution de la taille des vides, du micrométrique pour la matrice au métrique pour les conduits. Cette distribution induit une distribution de la perméabilité au sein de l'aquifère, avec une perméabilité beaucoup plus importante dans les conduits et les fractures. La localisation précise des conduits karstiques et des fractures est très difficilement cartographiable malgré une quantité importante d'affleurements et de sondages analysés, en raison de la forte hétérogénéité du milieu.*

## 1.2.5 Sols et épikarst

### 1.2.5.1 Structure et propriétés des sols

Sur le site d'étude, le creusement de fosses pédologiques a permis de décrire les premiers mètres du sous-sol (Csolenvironnement, 2008). L'épaisseur du sol observée varie entre 20 cm et 1,60 m. Dans la majorité des observations réalisées, le premier horizon est caractérisé par une texture limono-argileuse ou limono-sablo-argileuse. Les horizons situés plus en profondeur sont constitués de sol à texture limono-argileuse, d'argile, localement de grèze, ou de calcaire en plaquette (figure 1.16).

Des mesures de rétention en eau du sol par presse de Richards sur les horizons couramment rencontrés sur le site (Aca1, Aca2, Dca) ont montré que le volume de pore total est compris entre 30 et 50 % et est composé majoritairement de micropores (Sow, 2009).

La conductivité hydraulique proche de la saturation du sol est un paramètre important pour prédire les mouvements d'eau dans le sol. La formation du ruissellement, qui dépend en premier lieu de la capacité d'infiltration des premiers centimètres du sol est fortement dépendante de la conductivité hydraulique du sol. La conductivité hydraulique proche de la saturation a été

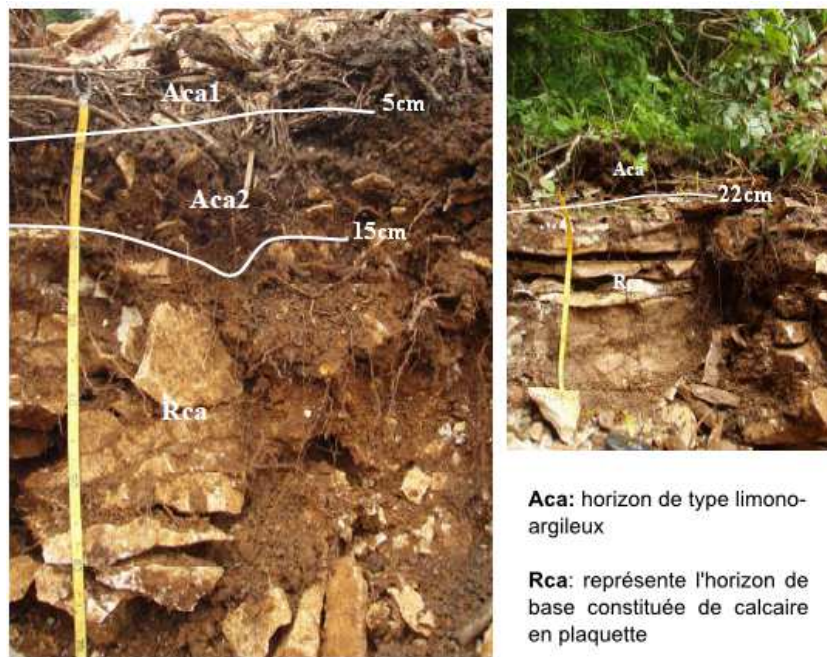


FIGURE 1.16: Horizons constituant le sol du site d'étude (fosses pédologiques).

mesurée grâce à un infiltromètre à succion contrôlée. Les mesures réalisées sur les sols de type Aca (limono argileux) et Aci (limono argileux sableux) montrent que la conductivité hydraulique proche de la saturation est comprise entre  $4,0 \cdot 10^{-5}$  et  $1,4 \cdot 10^{-4}$  m/s. L'augmentation de la conductivité hydraulique lorsque l'on se rapproche de la saturation s'explique par la présence de fissures naturelles ou de macropores liés à la faune.

La conductivité hydraulique à saturation a été mesurée par la méthode de double anneau (Sow, 2009). Ces mesures ont été réalisées à deux endroits du site, sur un sol composé d'un horizon superficiel d'Aca et sur un horizon superficiel Aci. Les modèles de Philip (1957) et Reynolds (Reynolds et al., 2002) sont appliqués pour obtenir les conductivités hydrauliques à saturation. Elles varient selon la méthode de calcul utilisée entre  $8,10^{-5}$  et  $1,10^{-3}$  m/s pour l'horizon Aca et entre  $5,10^{-5}$  et  $1,10^{-4}$  m/s pour l'horizon Aci

Les valeurs de conductivité hydraulique à saturation et proche de la saturation du sol sont élevées ( $8,10^{-5}$  à  $1,10^{-3}$  m/s). Ceci induit un faible risque de ruissellement et une forte circulation verticale. Ces résultats sont cohérents avec les observations de terrain, aucune zone d'infiltration préférentielle n'est observée. L'infiltration au niveau du sol est homogène.

### 1.2.5.2 L'épikarst

Sur la quasi-totalité des sondages géologiques, les premiers mètres de roche sont plus particulièrement fracturés (jusqu'à 30 fractures par mètre) et altérés par l'association des processus de gélifraction et de pédogénèse, formant l'épikarst (Blein, 2005). La forte densité de fractures et

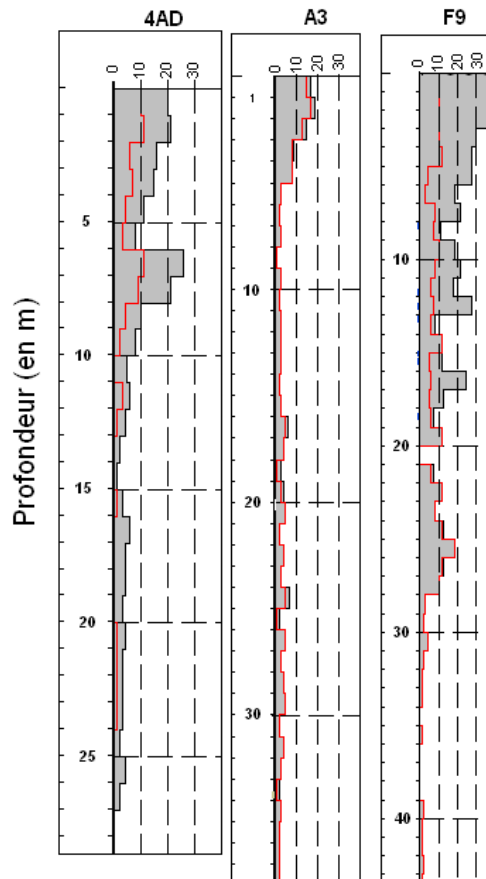


FIGURE 1.17: Densité de fractures en fonction de la profondeur sur trois forages de la nappe supérieure.

la forte variabilité des pendages de celles-ci induisent une perméabilité importante. La localisation de l'épikarst est déduite à partir de relevées de fractures sur des carottes de forages et de l'évolution de la densité de fractures avec la profondeur (figure 1.17). L'épaisseur de l'épikarst est estimée à partir de relevés de fractures entre 5 et 10 m (figure 1.17).



# 2

## **Matériel et méthodes**



Un aquifère karstique est un système hydrogéologique hétérogène et complexe, où les processus de mélange sont prépondérants. Il nécessite une méthodologie d'étude adaptée. En effet, ce type d'aquifère se caractérise par une distribution importante des porosités, allant de pores très fins (matriciels) à des conduits de taille métrique, qui induit une distribution des vitesses de transfert. Ainsi, les eaux souterraines d'un aquifère karstique peuvent être séparées en différentes masses d'eau différenciées par leur composition géochimique, leur modalité d'écoulement (vitesse de transfert, origine de l'eau). Comprendre le fonctionnement d'un aquifère karstique revient à définir les mécanismes d'écoulements de chaque masse d'eau et leur interaction entre elles. Pour cela, deux méthodes ont été couplées.

D'une part, des chroniques hydrodynamiques continues à haute fréquence (pluie-débit-niveau piézométrique) sont étudiées par diverses méthodes de traitement du signal afin de suivre spatialement l'onde de recharge au sein de l'aquifère grâce à une densité de point de mesure particulièrement importante sur le site (19 forages et 6 sources). De plus, ces chroniques pluri-annuelles permettent d'étudier la variabilité temporelle des processus de recharge.

D'autre part, l'étude de la variabilité de la composition géochimique et isotopique ( $^{13}\text{C}$ , isotopes stables de l'eau, anions et cations majeurs) des eaux souterraines à l'échelle d'un pic de crue (pas d'échantillonnage de quatre heures) et d'une année (pas d'échantillonnage d'un mois) a pour objectif de discriminer les différentes masses d'eau qui composent l'eau souterraine, de déterminer leurs caractéristiques géochimiques et leur temps de résidence.

En raison de la distribution large probable des temps de résidence, il est proposé de tester également l'utilisation de traceurs de datation variés, allant de traceurs de datation des eaux "récentes" ( $\text{SF}_6$ , CFC,  $^3\text{H}/\text{He}$ ,  $^{39}\text{Kr}$ ) aux traceurs de datation d'eaux "anciennes" ( $^{14}\text{C}$  et  $^{39}\text{Ar}$ ) dans le but de caractériser les écoulements retardés.

Dans cette partie, dans un premier temps, les techniques et matériels pour l'acquisition des données hydrodynamiques et des mesures géochimiques seront présentées, puis les méthodes d'interprétation de ces données seront exposées.

## 2.1 Mesures in-situ et traitement analytique

Dans cette thèse, deux méthodes d'étude des aquifères karstiques sont couplées. D'une part des méthodes d'analyse de séries temporelles appliquées aux chroniques hydrodynamiques (pluie, débit, niveau piézométrique), d'autre part des méthodes de datation des eaux à partir de mesures géochimiques de traceurs naturels et anthropiques. Le couplage de ces deux méthodes nécessite l'acquisition de données de terrain, d'une part des **mesures continues haute fréquence** (1h) grâce à des sondes autonomes (conductivité électrique, température, débit, niveau piézométrique) et d'autre part des **mesures géochimiques ponctuelles**. Durant ces trois années de thèse, une part importante du travail a été consacrée à l'échantillonnage des eaux souterraines au niveau de forages et de sources (développement de protocoles adaptés, tests de pompages, prélèvements, filtration).

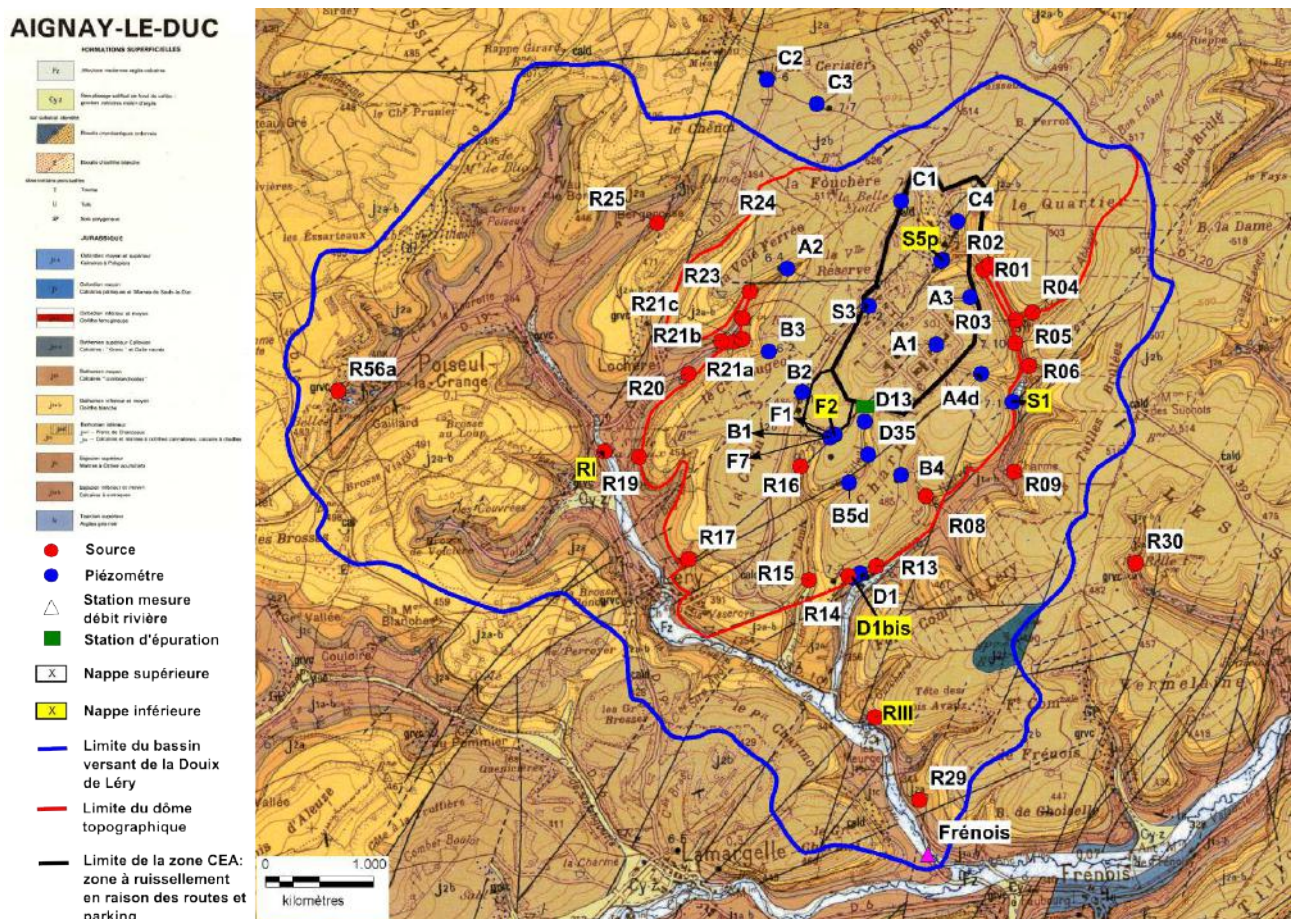


FIGURE 2.1: Carte de localisation des sources et forages échantillonnés.

Au total, 24 sources et les 19 forages ont été étudiés dans ce projet (figure 2.1). Le niveau piézométrique de 18 forages a été suivi en continu pendant 6 ans. Les paramètres physico-chimiques (conductivité électrique, température) des eaux souterraines ont été mesurés en continu au niveau de 14 forages et 7 sources de la nappe supérieure. Différentes campagnes d'échantillonnage des eaux souterraines en vue de déterminer la composition isotopique et géochimique ont été

réalisées : des campagnes de cartographie (16 sources et 15 forages), des suivis mensuels au niveau de 6 sources et des suivis haute fréquence (4h) lors de pics de crue au niveau de 2 forages et 5 sources.

## 2.1.1 Mesures en continu

Des mesures du niveau piézométrique, du débit et de certains paramètres physico-chimiques tels que la conductivité, le pH et la température de l'eau ont été enregistrés en continu au niveau de forages et de sources à pas de temps horaire sur des périodes allant jusqu'à 5 cycles hydrologiques pour le niveau piézométrique. Au total, 22 forages et 6 sources ont été équipés de sondes multi-paramètres autonomes.

### 2.1.1.1 Mesure de la pluviométrie

La pluviométrie est mesurée sur le centre CEA grâce à deux pluviomètres à auget incrémenté à 0,2 mm et situés à côté des piézomètres F7 et S5. Les nombreuses lacunes (pannes de matériel) ne permettent pas d'utiliser ces données pour réaliser des analyses corrélatoires et spectrales. Ainsi, pour ce type d'approche, les données pluviométriques utilisées proviennent de la station météorologique de Saint Martin du Mont (MétéoFrance) située à 18 km au Sud-Sud-Ouest du site d'étude. Les pluies cumulées ont une bonne similitude entre les deux stations (figure 3.2). Une corrélation croisée à pas de temps horaire sur la période 02/2008-06/2010 entre les données Météo France et les données mesurées grâce aux pluviomètres présents sur le site montre une corrélation correcte avec un coefficient de corrélation maximum de 0,4 et un temps de réponse inférieur ou égal à 1h.

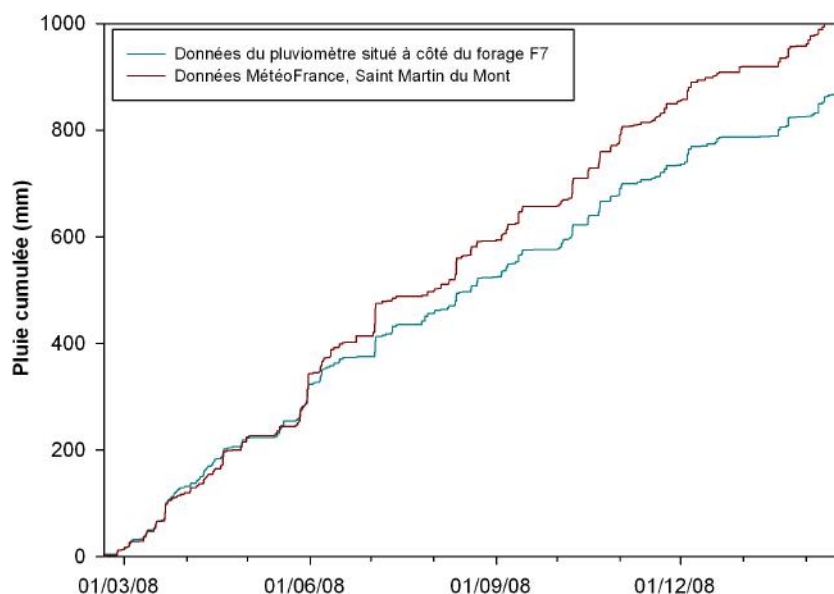


FIGURE 2.2: Comparaison des mesures de la pluie au niveau de la station Saint Martin du Mont (Météo France) et sur le site (au niveau du forage F7) sur la période de février 2008 à février 2009.

### 2.1.1.2 Mesure des paramètres hydrodynamiques : niveau piézométrique et débit

#### *Le niveau piézométrique*

Le niveau piézométrique est mesuré à pas de temps horaire grâce à des sondes “mini-diver” dont les valeurs mesurées sont compensées de la pression atmosphérique ambiante au moyen d’une sonde barodiver (Schlumberger Water Services). Selon les piézomètres, le choix du type de mini-diver varie en fonction du battement de la nappe. Deux types de mini-diver ont été utilisés, le DI-505, pour des piézomètres à fort battement de nappe, supérieur à 10 m (forage S3) et le DI-501, pour les autres piézomètres. La précision et la résolution des “mini-divers” utilisés sont présentées dans le tableau (2.1). Au total, 18 forages de la nappe supérieure et 6 de la nappe inférieure ont été suivis.

TABLEAU 2.1: Précision et incertitude des sondes de mesure in-situ

Type de diver	Précision	Résolution
Mini-diver DI 501 *	1 cm H <sub>2</sub> O	0,2 cm H <sub>2</sub> O
Mini-diver DI 505 *	3 cm H <sub>2</sub> O	1 cm H <sub>2</sub> O
Solinst Levelogger	0,3 cm	0,005 cm
CTD conductivité	0,3 $\mu$ S/cm	0.03 $\mu$ S/cm
CTD température	0,1 °C	0,01 °C
YSI conductivité	2,5 $\mu$ S/cm	1 $\mu$ S/cm
YSI température	0,15°C	0,01°C
YSI pH	0,2	0,01

\* la précision intègre la compensation barométrique.

#### *Le débit des eaux superficielles*

Les débits des sources et de la rivière sont mesurés en continu à pas de temps horaire.

Les débits de la source R14 et de la rivière sont calculés à partir du niveau d’eau mesuré par des sondes OTT Orpheus Mini (capteur de pression avec centrale d’acquisition intégrée, gamme 0,4 bars). Ces mesures de niveau sont ensuite converties en débit grâce au seuil jaugé pour la source R14 et à une courbe de tarage pour la rivière. Au niveau des sources R25, R24 et R08, les débits sont mesurés grâce à des déversoirs triangulaires et des sondes de mesure du niveau d’eau “Solinst Levelogger”, les valeurs mesurées sont compensées de la pression atmosphérique au moyen d’un Barologger Solinst (les précisions et résolutions sont présentées dans le tableau 2.1). Au niveau des sources R06 et R04, dont l’agencement en vasques ne permet pas la mise en place de déversoir, les niveaux d’eau dans les vasques ont été mesurés en continu grâce à des sondes “mini-divers” et d’un “barodiver”.

### 2.1.1.3 Mesure des paramètres physico-chimiques (conductivité électrique, pH et température de l'eau)

Les paramètres physico-chimiques des eaux souterraines tels que la conductivité électrique (corrigée à 25°C), la température et le pH de l'eau ont été mesurés en continu à pas de temps horaire au niveau de certains forages et certaines sources grâce à des sondes multi-paramètres. Les sources et les forages ont été équipés de sondes CTD (Schlumberger Water Services) permettant de mesurer la température et la conductivité spécifique de l'eau et/ou de sondes multi-paramètres YSI "600 XLM-M" disposant d'un capteur de conductivité/température, d'un capteur de pH. Les sondes YSI et CTD ont été étalonnées et calibrées avant la mise en place sur le terrain. Ensuite, il a été choisi de ne pas re-calibrer les sondes durant la période d'enregistrement afin d'obtenir des chroniques continues, sans saut de valeur, car l'étude des chroniques physico-chimiques repose sur l'analyse de l'évolution des paramètres physico-chimiques. Les précisions et résolutions sont présentées dans le tableau 2.1. Un récapitulatif du nombre de forages et sources suivis est présenté en 2.2.

TABLEAU 2.2: Récapitulatif des paramètres physico-chimiques mesurés par sondes autonomes

Paramètres	Forage nappe supérieure	Forage nappe inférieure	Source nappe supérieure	Source nappe inférieure
Conductivité	14	2	7	2
Température	18	4	7	2
pH	1	0	4	1

## 2.1.2 Mesures géochimiques ponctuelles

### 2.1.2.1 Stratégie d'échantillonnage

La stratégie d'échantillonnage des mesures ponctuelles géochimiques repose sur l'étude préliminaire des chroniques continues, notamment la conductivité électrique, mesurées sur 9 sources et 18 forages. L'un des objectifs de l'étude est de différencier les masses d'eau qui composent les eaux souterraines, de déterminer leurs origines et leurs proportions respectives. Les sources et les forages sélectionnés pour le suivi géochimique ponctuel ont été choisis en raison de la variabilité de leur conductivité électrique à l'échelle annuelle et/ou événementielle. A partir des chroniques de conductivité électrique, la période d'échantillonnage et le pas de temps sont choisis.

Trois types de campagne d'échantillonnage ont eu lieu : des campagnes de cartographie, des suivis mensuels et événementiels (lors de pics de crue à pas de temps fin).

### *Campagnes de cartographie*

Ces campagnes ayant pour but de **cartographier la géochimie des eaux souterraines**, un maximum d'ouvrages doit être échantillonné. Trois campagnes ont eu lieu :

- deux campagnes, une en basses eaux (octobre 2010) et une en hautes eaux (mars 2011) ont permis de déterminer les compositions en anions et cations majeurs, l'alcalinité, les isotopes stables de l'eau, le  $\delta^{13}\text{C}_{\text{CITD}}$ , l'activité  $^{14}\text{C}_{\text{CITD}}$  et le tritium avec 15 et 19 sources échantillonnées respectivement,

- une campagne en juillet 2012 (basses eaux) où les éléments précédemment cités ont été complétés par la mesure de traceurs de dynamique des écoulements : CFC,  $\text{SF}_6$ ,  $^{85}\text{Kr}$ ,  $^{39}\text{Ar}$ ,  $^3\text{H}/\text{He}$ . Lors de cette campagne, 15 forages et 16 sources ont été échantillonnés.

### *Suivis mensuels*

Six sources ont été échantillonnées pendant un an à pas de temps mensuel afin d'étudier les **variations saisonnières de la composition géochimique des eaux**. Les compositions en anions et cations majeurs, l'alcalinité, les isotopes stables de l'eau, le  $\delta^{13}\text{C}_{\text{CITD}}$ , l'activité  $^{14}\text{C}_{\text{CITD}}$  et le tritium sont mesurés.

### *Suivis événementiels*

Lors de pics de crue, des sources et forages ont été échantillonnés à pas de temps réduit **pour étudier les transferts rapides**. La difficulté de ce type de campagne réside dans leur planification, ainsi, différents modèles de prévision météorologique ([Achim et al. 2010](#)) ont été utilisés. Pour pallier le problème de planification, des préleveurs automatiques ont été mis en place sur le terrain mais seules les mesures des concentrations en anions et cations majeurs, en isotopes stables de l'eau et en tritium peuvent être effectuées sur ces prélèvements.

En mai 2012, une campagne de prélèvements manuels a pu avoir lieu au niveau de 2 forages et 5 sources sur 18 jours. Des mesures d'alcalinité sur le terrain et des prélèvements pour des mesures en  $\delta^{13}\text{C}$ ,  $\text{A}^{14}\text{C}$ , CFC,  $\text{SF}_6$ ,  $^3\text{H}/\text{He}$  ont été effectués. Durant cette campagne, le pas de temps a été réduit au maximum avec des échantillonnages toutes les 4 heures avec les préleveurs automatiques et deux fois par jour pour les prélèvements manuels.

#### **2.1.2.2 Prélèvements autonomes**

##### *Prélèvements de la pluie*

La pluie a été échantillonnée grâce à un pluviocollecteur (figure [2.3 d](#)). Chaque pluviocollecteur est prérempli avec de la paraffine liquide ( $\sim 1$  cm) pour éviter le contact eau-atmosphère après

l'événement pluvieux. Les pluies ont été collectées sur des périodes de 15 à 45 jours. Des aliquotes sont réalisés en vue d'être analysés (anions et cations majeurs, isotopes stables de l'eau et tritium) et stockés à 4°C.



FIGURE 2.3: Photomontage des différents types de préleveur utilisés : préleveur ISCO 3700 (a et b), préleveurs Avalanche ISCO réfrigérés (c) et pluvio-collecteur (d).

### *Prélèvements automatiques*

Deux types de préleveurs automatiques sont utilisés : des préleveurs “ISCO 3700” au niveau des sources et des préleveurs “Avalanche, ISCO” réfrigérés au niveau du forage F7 (figure 2.3a, b et c). La réfrigération permet une meilleure conservation des échantillons, mais nécessite une alimentation électrique plus puissante. Au niveau des sources, les préleveurs ont été branchés sur des batteries et/ou de panneaux solaires pour obtenir une autonomie suffisante. Chaque flacon (figure 2.3b) est prérempli avec de la paraffine liquide ( $\sim 1\text{cm}$ ) ceci permet d'isoler instantanément l'échantillon de l'atmosphère après chaque prélèvement automatique.

Le problème majeur lié à ce type d'échantillonnage est la congélation des échantillons dans les préleveurs durant les mois d'hiver. La congélation modifie de façon significative et irréversible les concentrations en ions. Les concentrations mesurées sont plus faibles lorsqu'un échantillon a subi une congélation. Ceci est particulièrement marqué pour les mesures en calcium, la concentration en calcium diminue de 35 %. Cette diminution est liée à la précipitation de la calcite en réponse à une diminution de l'indice de saturation par rapport à la calcite de l'eau lors du gel (Marlin et al., 1993). Ce type de prélèvement, par préleveur automatique permet de réaliser un suivi de la composition en anions et cations majeurs, isotopes stables de l'eau et tritium.

Afin de réaliser des échantillonnages automatiques d'eau souterraine dans les forages, un dispositif spécifique a du être mis en place. Ainsi, au niveau du forage F7 (niveau de nappe à



-52 m/sol), les prélèvements sont réalisés à l'aide d'une pompe immergée MP1 (figure 2.4a). La mise en fonctionnement et l'arrêt de la pompe sont gérés par un programmateur en surface. Les prélèvements sont synchronisés avec des préleveurs automatiques en surface (figure 2.4a). Le forage F7 est couplé au forage F1, situé à 3 mètres et dont le comportement piézométrique est identique. Pour des raisons pratiques (espace insuffisant, emmêlement de câbles), les mesures de conductivité électrique, de pH et de température de l'eau sont effectuées par des sondes multi-paramètres placées dans le forage F1. Le temps de pompage avant échantillonnage a été optimisé lors d'un essai de dimensionnement. Les paramètres physico-chimiques (température, pH, conductivité) ont été mesurés à pas de temps de 15 secondes dans le forage avec une sonde YSI durant un pompage. La qualité de l'eau prélevée se stabilise après 45 minutes (figure 2.4b). L'automatisation des prélèvements a permis de faire des échantillonnages réguliers lors de pics de crue.

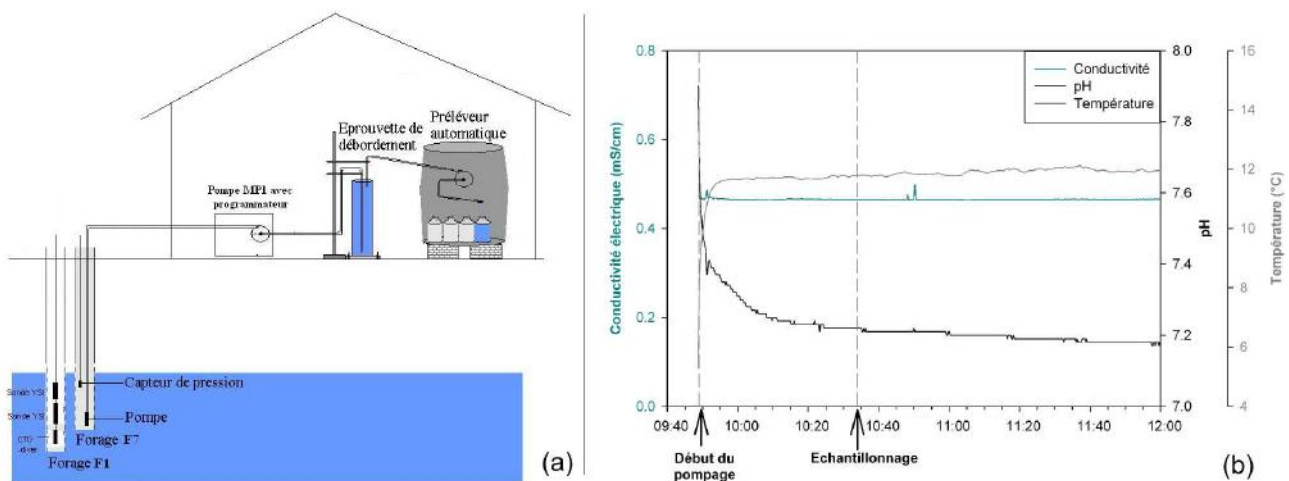


FIGURE 2.4: Prélèvement d'eau au niveau du forage F7. (a) Schéma du montage pour le prélèvement d'eau souterraine dans le forage F7 (niveau de nappe à -52 m/sol). Trois mètres séparent les forages F1 et F7, ils ont un comportement piézométrique identique. La conductivité électrique, le pH et la température de l'eau sont mesurés dans le forage F1. (b) Evolution des paramètres physico-chimiques durant un pompage au niveau du forage F7 et détermination de la durée du pompage afin de réaliser un échantillonnage représentatif de la nappe.

### 2.1.2.3 Prélèvements en forages peu productifs : mise au point d'un protocole d'échantillonnage

Sur le site d'étude, de nombreux forages sont peu productifs. Dans ce cas, un pompage de plusieurs minutes ne peut pas être effectué pour atteindre un état stationnaire des paramètres physico-chimiques. Néanmoins, il est nécessaire de s'assurer que les échantillons prélevés dans les forages peu productifs sont les plus représentatifs possible de l'eau de la nappe. Afin de valider une méthode d'échantillonnage des forages peu productifs, des tests ont été effectués sur 4 forages de productivités différentes, B4, C2, B3, A4D avec des pompes à débits variables.

Une pompe SQ2 à fort débit pour le forage très productif B4, deux pompes MP1 pour les forages B3 et A4D et une pompe hydrolift pour le forage C2. Ces deux derniers forages sont caractérisés par une très faible productivité. Pour chaque piézomètre, 3 échantillons d'eau ont été prélevés : le premier au début du pompage (après vidange du volume "mort" du tuyau), un second à la fin du pompage (quand les paramètres sont stabilisés pour B4, quand le forage est presque "vide" pour les forages C2, B3 et A4D et un dernier échantillon après arrêt de la pompe lorsque le niveau d'eau est remonté et permet un nouveau pompage. Pour chaque échantillon, des mesures de la concentration en tritium, en éléments majeurs et en radon ont été réalisées (figure 2.5). La totalité des résultats obtenus sont présentés dans l'annexe 2.

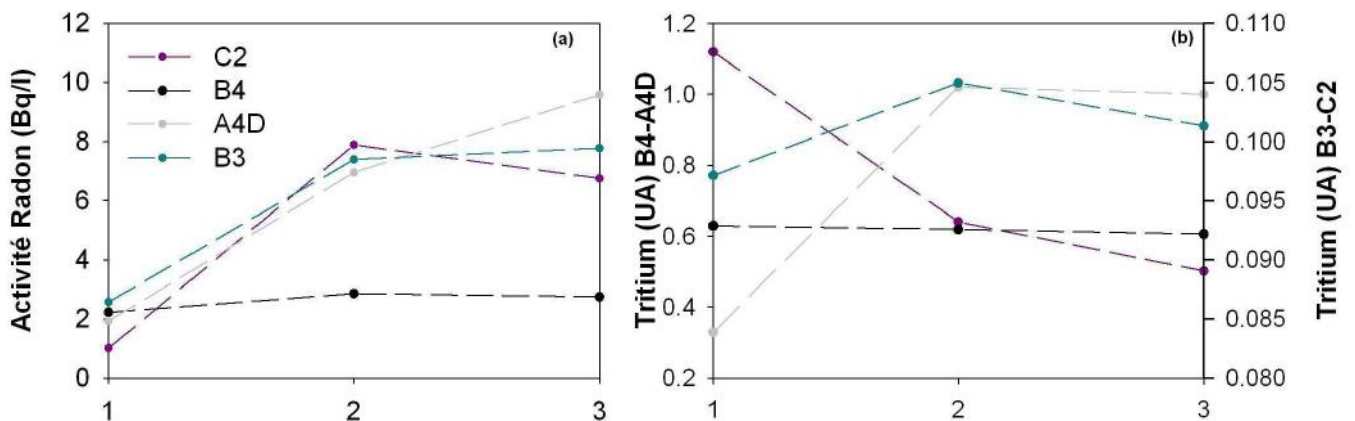


FIGURE 2.5: Résultats des tests d'échantillonnages lors de pompage en forage pour le radon (a) et le tritium (b). Le premier échantillonnage a lieu au début du pompage après vidange du volume mort. Le second a lieu soit quand les paramètres physico-chimiques sont stabilisés (forage B4), soit quand la colonne d'eau du forage est entièrement rabattue (forages C2, B3 et A4D). Le troisième échantillonnage a lieu lorsque le niveau d'eau est suffisamment remonté pour permettre un échantillonnage.

Les résultats obtenus varient en fonction du type de mesure et du forage. Ainsi, le forage A4D montre la plus forte variabilité entre les 3 échantillonnages.

Au niveau des 3 forages peu productifs, la teneur en radon augmente fortement entre le 1er et le 2ème échantillonnage mettant en évidence un renouvellement de l'eau dans le forage. Entre le 2ème et le 3ème échantillonnages, les valeurs se stabilisent. (figure 2.5). Des résultats semblables sont obtenus pour les compositions en anions et cations majeurs. Au niveau des forages C2, B4 et B3, les valeurs en tritium varient très peu entre les 3 échantillonnages. Pour le forage A4D, la concentration en tritium augmente fortement entre le 1er et le 2nd échantillonnages puis se stabilise.

La variation importante des mesures effectuées sur le premier et le second échantillons d'eau montre qu'il n'est pas concevable d'effectuer un simple prélèvement à la canne dans les forages, en raison de l'équilibration de l'eau contenu dans le forage avec l'atmosphère. Du fait de la stabilisation des résultats entre le deuxième et le troisième échantillonnage, nous considérerons

qu'après vidange "complète" du forage et re-remplissage partiel de celui-ci, l'échantillon prélevé est représentatif de l'eau de l'aquifère. Bien évidemment, cette méthode n'est pas idéale mais par défaut, elle sera appliquée afin de pouvoir échantillonner un maximum de forages.

#### 2.1.2.4 Mesure de la composition géochimique des eaux souterraines

##### *Paramètres physico-chimiques*

Lors des campagnes d'échantillonnage des eaux souterraines, des mesures supplémentaires de pH, température et conductivité ont été réalisées in-situ, grâce à des instruments de mesure multi-paramètres portables "multi 240i, WTW". Le pH est mesuré grâce à une sonde pH Sentix 41-3 avec une précision de  $\pm 0,025$  pH. La conductivité électrique spécifique (à  $+ 25$  °C) et la température sont mesurées grâce à une sonde TetraCon 325, dont la précision est de  $\pm 0,5\%$  et  $\pm 0,1$ °C respectivement. Dans ce manuscrit, les conductivités électriques présentées sont des conductivités électriques spécifiques à 25°C.

##### *Éléments majeurs*

Les concentrations en anions ( $\text{Cl}^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ) et cations ( $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ) majeurs ont été mesurées par chromatographie ionique en phase liquide à l'aide d'un appareil DIONEX ICS-3000 au laboratoire Sisyphe, UMR 7619 (Univ. Paris VI). Les échantillons prélevés pour les analyses des cations sont filtrés et acidifiés ( $\text{HNO}_3$ ) lors du prélèvement sur le terrain.

##### *Alcalinité*

L'alcalinité est mesurée lors des prélèvements par titrage avec une solution d'acide sulfurique (1,6 N) à l'aide d'un titrateur digital. Le dosage est réalisé par la méthode de Gran (Stumm & Morgan, 1996) qui consiste à transformer la courbe de titrage en une fonction linéaire.

##### *Rapport Br/Cl*

Les concentrations Br et Cl ont été mesurées par chromatographie ionique sur ICS1100 de marque DIONEX au Laboratoire d'Hydrogéologie UFR Sciences d'Avignon. L'incertitude des mesures est estimée à 3 % avec un indice de confiance de 95 %.

##### *Isotopes stables*

Les teneurs en isotopes stables de l'eau ( $\delta^2\text{H}$  et  $\delta^{18}\text{O}$ ) ont été mesurées au laboratoire IDES (Univ. Paris XI). Deux méthodes ont été utilisées :

- la spectroscopie d'absorption laser à l'aide d'un LGR Laser Water Isotope Analyser OA-ICOS DLT-100. L'analyse est basée sur la loi de Beer-Lambert : un micro-échantillon d'eau est vaporisé sur le trajet du faisceau laser et les interférences créées sont proportionnelles aux

rapports isotopiques de l'échantillon. Le spectromètre laser permet d'analyser des échantillons aussi petits que 100  $\mu\text{L}$ . La précision sur les mesures est de  $\pm 1$  ‰ VSMOW pour  $\delta^2\text{H}$  et  $\pm 0,2$  ‰ VSMOW pour  $\delta^{18}\text{O}$ ,

- *la spectroscopie de masse grâce au Finnigan Delta*. Ce spectromètre de masse IRMS est couplé à un banc d'équilibration qui permet d'analyser le  $\delta^2\text{H}$  et  $\delta^{18}\text{O}$  d'échantillons d'eau. Un gaz ( $\text{H}_2$  pour  $\delta^2\text{H}$  et  $\text{CO}_2$  pour  $\delta^{18}\text{O}$ ) est mis en contact avec l'échantillon d'eau. Après un temps d'équilibration adapté, la signature isotopique de l'échantillon est imposée au gaz. Celui-ci est alors transféré à la source et le signal isotopique est comparé au gaz de référence. Une calibration externe permet de remonter au signal isotopique de l'échantillon d'eau. La précision sur les mesures est de  $\pm 2$ ‰ VSMOW pour  $\delta^2\text{H}$  et  $\pm 0,2$  ‰ VSMOW pour  $\delta^{18}\text{O}$ .

Toutes les valeurs sont normalisées par rapport au standard SMOW. La résolution analytique entre échantillons mesurés au sein du laboratoire est supérieure à la précision des mesures par rapport aux standards internationaux :  $\pm 1$  ‰ pour  $\delta^2\text{H}$  et  $\pm 0,1$  ‰ pour  $\delta^{18}\text{O}$ .

### ***$\delta^{13}\text{C}$ du carbone inorganique total dissous***

Les eaux souterraines prélevées en vue d'être analysées pour la mesure du  $\delta^{13}\text{C}_{\text{CITD}}$  sont filtrées lors de l'échantillonnage et stockées dans des flacons en verre ambré. Lors de l'échantillonnage, quelques gouttes de  $\text{CuSO}_4$  sont ajoutées et permettent une meilleure conservation des échantillons, en prévenant le développement de l'activité microbienne (Winslow et al., 2001).

Les teneurs en  $^{13}\text{C}_{\text{CITD}}$  ont été mesurées au laboratoire IDES (Univ. Paris XI) et au laboratoire du GEOTOP (Université du Québec à Montréal, Canada) par spectrométrie de masse IRMS (Isotope-Ratio Mass Spectrometry).

Au laboratoire IDES, le spectromètre, VG SIRA 10, ne peut mesurer que du gaz. Une préparation préalable des échantillons est nécessaire. La phase gazeuse est extraite de l'échantillon d'eau par attaque acide. Le volume de l'échantillon est ajusté en fonction du titre alcalimétrique de l'eau analysée de telle sorte que celle-ci contienne 3 à 4 mg de carbone. La précision sur les mesures est de  $\pm 0,2$  ‰ vs V-PDB.

Au laboratoire du GEOTOP (Université du Québec à Montréal, Canada), la mesure est réalisée par spectroscopie de masse à l'aide d'un IRMS de marque Micromass, de type Isoprime en mode flux continu couplé à un système de préparation MicroGas. La précision sur les mesures est de  $\pm 0,1$  ‰ vs V-PDB.

### ***Activité carbone 14***

Les échantillons sont préparés au laboratoire IDES (Univ. Paris XI) puis analysés au laboratoire UMS LMC14 de Gif-sur-Yvette.

La préparation des échantillons pour les mesures des activités en  $^{14}\text{C}$  des eaux souterraines consiste en l'extraction du  $\text{CO}_2$  par attaque acide sur un échantillon d'eau. Le  $\text{CO}_2$  est ensuite réduit sous forme de graphite (Hut et al., 1986). L'activité du carbone 14 est ensuite mesurée sur l'accélérateur ARTEMIS (UMS LMC14 de Gif-sur-Yvette). L'erreur analytique est comprise entre 0.5 and 0.8 pmC selon l'échantillon.

### ***Tritium***

L'activité tritium des échantillons d'eau souterraine est mesurée au Laboratoire de Métrologie et de Surveillance de l'Environnement (LMSE) du CEA de Valduc. L'activité tritium est mesurée par comptage par scintillation liquide en utilisant un tricarbotrimètre PerkinElmer Tri-Carb 2910 TR. La précision sur les mesures varie selon l'activité de l'échantillon entre  $\pm 5$  et  $\pm 11$  %.

### ***Tritium/Hélium***

Les mesures en tritium/hélium ont été effectuées en collaboration avec le laboratoire LSCE (UMR 8212 CEA-CNRS-UVSQ, Saclay).

Lors des prélèvements, deux échantillons d'eau sont prélevés. Le premier est collecté dans un flacon en verre préalablement étuvé et rempli d'argon, cet échantillon est destiné à la mesure de la teneur en  $^3\text{H}$ . Le second échantillon, destiné à la mesure des gaz rares ( $^3\text{He}$ ,  $^4\text{He}$  and  $^{20}\text{Ne}$ ), est prélevé dans des tubes en cuivre dont la surface interne est parfaitement polie (qualité « frigorifique ») et fermés par écrasement dans des mâchoires métalliques assurant l'étanchéité.

Le tritium est mesuré par recroissance de  $^3\text{He}$ , produit de la décroissance radioactive du tritium (Clarke et al., 1976). Dans un premier temps, l'échantillon est conditionné dans un ballon en verre spécialement sélectionné pour son faible taux de diffusion de l'He puis dégazé par pompage et agitation par ultrasons afin d'éliminer l'hélium présent dans l'eau. Les échantillons sont ensuite scellés et stockés au congélateur. La congélation diminue la diffusion des gaz. Durant la période de stockage, le tritium présent dans l'échantillon décroît par radioactivité et produit de l'hélium ( $^3\text{He}$ ). Après stockage, la mesure de la concentration en  $^3\text{He}$  par spectrométrie de masse permet de recalculer la concentration en  $^3\text{H}$  de l'échantillon prélevé.

Les teneurs en  $^3\text{He}$ ,  $^4\text{He}$  and  $^{20}\text{Ne}$  sont mesurées à l'aide d'un spectromètre de masse dédié (MAP-215-50). Au préalable, l'hélium et le néon dissous dans l'échantillon sont extraits sous vide dans des tubes en verre scellés. Les mesures sont calibrées par rapport à un standard air.

Pour les mesures réalisées dans cette étude, les précisions sont : pour  $^4\text{He}$  et  $^{20}\text{Ne}$  de l'ordre de 1,2 % à  $1\sigma$ , pour  $^3\text{He}$  de 1,5-1.6 % à  $1\sigma$ , pour le  $^3\text{H}$  entre 0,5 et 1,5 %, à  $1\sigma$ .

### ***CFC-SF<sub>6</sub>***

Les eaux prélevées pour les analyses en CFC-SF<sub>6</sub> sont stockées dans des bouteilles en acier inoxydable de 0,5 L.

Les concentrations en SF<sub>6</sub> et CFC-12 ont été mesurées par analyse en chromatographie gazeuse avec un détecteur ECD (Electron Capture Detection). Cette mesure basée sur la méthode de [Bullister & Weiss \(1988\)](#) a été réalisée à l'université de Brême (Bremen, Allemagne) et se compose de différentes étapes : le dégazage de l'échantillon d'eau par flux d'azote, le piégeage et la séparation des gaz par adsorption et désorption thermiques suivi de l'injection et la détection des gaz sur un détecteur ECD. La méthode a été calibrée, en utilisant un standard gaz de composition connue en CFC-12 et SF<sub>6</sub>. Les valeurs en CFC-12 et SF<sub>6</sub> sont basées sur l'échelle de calibration SIO98. La précision globale, incluant celle de la calibration est estimée à environ 3% pour les deux composés.

### ***Kr-Ar***

Les mesures des activités en <sup>85</sup>Kr et <sup>39</sup>Ar ont été effectuées en collaboration avec le laboratoire Climate and Environmental Physics à l'Université de Berne (Suisse). Les mesures des teneurs en <sup>85</sup>Kr et <sup>39</sup>Ar nécessitent sur le terrain le dégazage de grands volumes d'eau (environ 300 L pour des mesures <sup>85</sup>Kr et jusqu'à 5000 L pour les mesures d'<sup>39</sup>Ar dans le cas d'eau très ancienne). Deux méthodes de dégazage de l'eau ont été utilisées, soit par pulvérisation de l'eau, soit en utilisant des contracteurs à membranes. Ensuite, au laboratoire, à partir du gaz échantillonné sur le terrain, le <sup>85</sup>Kr et <sup>39</sup>Ar sont séparés et purifiés par des chaînes de purification complexes composées de pièges thermiques et de chromatographie en phase gazeuse. Enfin, le comptage radioactif est effectué dans le laboratoire souterrain de bas niveau de l'Université de Berne ([Loosli, 1983](#)).

### ***Radon***

La mesure du radon dans les eaux souterraines se fait par dégazage de l'eau dans une fiole scintillante dite de Lucas. La fiole dite de Lucas ([1957](#)) est calibrée pour radon-222, elle est basée sur la détection des particules alpha du radon (radon-222 et descendants : <sup>218</sup>Po et <sup>214</sup>Po) par l'émission de photons de longueur d'onde égale à 450 nm, émis lors de l'interaction entre les particules alpha et la couche de sulfure de zinc activée à l'argent (ZnS, Ag).

L'eau de prélèvement est dégazée lentement dans une fiole scintillante : au laboratoire, l'échantillon est transféré rapidement dans un flacon de rinçage (figure 2.6b). Lorsque ce dernier est fermé, il est relié à une fiole scintillante sous vide. Le gaz est ensuite transféré, par équilibrage des pressions, au travers d'une micro-vanne permettant de réguler le débit pour obtenir un dégazage de 30 min au travers d'un filtre MilliporeTM (0,25 µm) qui stoppe les descendants à vie courte du radon-222 ([Pradel & Billard, 1958](#); [Baubron & Sabroux, 1984](#); [Richon, 2011](#)).

Lorsque le dégazage est terminé et après un temps d'attente de 3 heures au minimum (mise à l'équilibre du radon-222 et de ses descendants à l'intérieur du ballon) le ballon scintillant est "compté" sur un photomultiplicateur MARGNAC<sup>TM</sup> (figure 2.6a). Au préalable, la très haute tension (THT) des photomultiplicateurs a été réglée pour une mesure optimale (figure 2.6c). Deux comptages successifs de trois minutes sont réalisés. L'activité radon-222 est déduite de ces comptages.

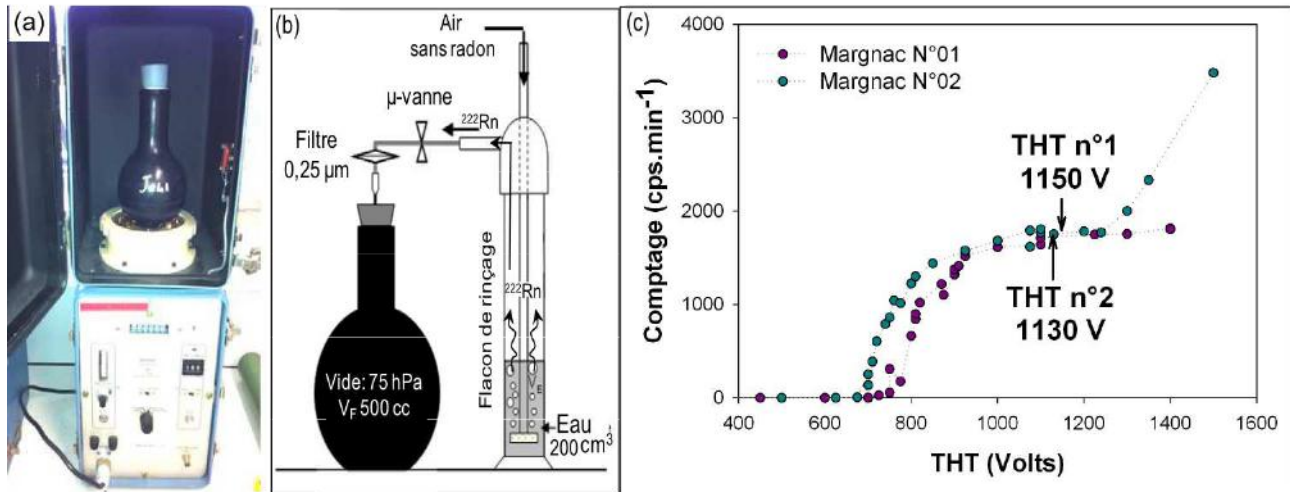


FIGURE 2.6: Mesure du Radon dans l'eau. (a) Compteur à photomultiplicateur Margnac. (b) Dégazage de l'échantillon d'eau dans une fiole scintillante (Richon, 2011). (c) Détermination du réglage optimal de la THT des photomultiplicateurs : le réglage optimal de la THT se situe au milieu du plateau de la courbe de l'évolution du comptage en fonction de la tension d'alimentation des photomultiplicateurs.

## 2.2 Récapitulatif des données disponibles

La localisation des forages et sources suivis à haute fréquence et échantillonnés est rappelée sur la figure 2.1. Les caractéristiques des sources et forages suivis et échantillonnés sont rappelés dans l'annexe 3. Les données acquises ont été résumées dans les tableaux 2.3 et 2.4.

TABLEAU 2.3: Récapitulatif des données acquises au niveau des forages de la nappe supérieure.

Forages	Paramètres suivis en continu (1h)	Mesures géochimies cartographie	Mesures géochimies pic de crue
S3, S5, A2	Niv, Temp, CE	Maj, IS, $^{13}\text{C}$ , Br,	
B4	Niv, Temp, CE	Maj, IS, $^{13}\text{C}$ , Br, $^3\text{H}/\text{He}$ , CFC, $\text{SF}_6$ , Kr, Ar	
A1, A3, C4	Niv, Temp, CE	Maj, IS, $^{13}\text{C}$	
B3*	Niv, Temp, CE	Maj, IS, $^{13}\text{C}$ , Br, $^3\text{H}/\text{He}$ , CFC, $\text{SF}_6$	
C1, D1, C3	Niv, Temp, CE		
D13, B1, D35	Niv, Temp		
F7	Niv, Temp, CE, pH		Maj, IS, tritium
C2	Niv, Temp, CE	Maj, IS, $^{13}\text{C}$ , $^3\text{H}/\text{He}$ , CFC, $\text{SF}_6$	Maj, IS, tritium
B5D	Niv, Temp	Maj, IS, $^{13}\text{C}$	
A4D	Niv, Temp, CE	Maj, IS, Br, $^3\text{H}/\text{He}$ , CFC, $\text{SF}_6$	
B2	Niv, Temp	Maj, IS, $^{13}\text{C}$ , Br,	

\*Forage surforé en décembre 2011

Niv : niveau piézométrique, Temp : température de l'eau, CE : conductivité électrique, Maj : anions et cations majeurs, IS : Isotopes stables de l'eau, Br : anion Br



TABLEAU 2.4: Récapitulatif des données acquises au niveau des sources de la nappe supérieure.

Sources	Paramètres suivis en continu (1h)	Mesures géochimies cartographie	Mesures géochimies mensuelles	Mesures géochimies pic de crue
R06	Temp, CE, pH	Maj, IS, $^{13}\text{C}$ , $^3\text{H}/\text{He}$ , CFC, $\text{SF}_6$ , Kr, Ar	Maj, IS, tritium, $^{13}\text{C}$ , $^{14}\text{C}$	Maj, IS, $^{13}\text{C}$ , tritium, Br, $^3\text{H}/\text{He}$ , CFC, $\text{SF}_6$
R24	Débit, Temp, CE, pH	Maj, IS, $^{13}\text{C}$ , $^3\text{H}/\text{He}$ , Br, CFC, $\text{SF}_6$ , Kr, Ar, Radon	Maj, IS, tritium,	Maj, IS, $^{13}\text{C}$ , tritium, $^3\text{H}/\text{He}$ , CFC, $\text{SF}_6$
R08	Débit, Temp, CE	Maj, IS, $^{13}\text{C}$ , $^3\text{H}/\text{He}$ , CFC, $\text{SF}_6$ , Radon	Maj, IS, tritium,	Maj, IS, $^{13}\text{C}$ , tritium, Br, $^3\text{H}/\text{He}$ , CFC, $\text{SF}_6$
R04	Temp, CE, pH	Maj, IS, $^{13}\text{C}$ , $^3\text{H}/\text{He}$ , Br, CFC, $\text{SF}_6$ , Radon	Maj, IS, tritium,	
R14**	Débit, Temp, CE, pH	Maj, IS, $^{13}\text{C}$ , $^3\text{H}/\text{He}$ , Radon		Maj, IS, tritium
R15**		Maj, IS, $^{13}\text{C}$ , $^3\text{H}/\text{He}$ , Radon		
RI*	Temp, CE, pH	Maj, IS, $^{13}\text{C}$ , $^3\text{H}/\text{He}$ , CFC, $\text{SF}_6$ , Kr, Ar, Radon, Br	Maj, IS, tritium,	Maj, IS, $^{13}\text{C}$ , CFC, $\text{SF}_6$
RIII*	Temp, CE	Maj, IS, $^{13}\text{C}$ , $^3\text{H}/\text{He}$ , CFC, $\text{SF}_6$ , Kr, Ar, Radon, Br	Maj, IS, tritium,	Maj, IS, $^{13}\text{C}$ , CFC, $\text{SF}_6$
R25	Débit, Temp, CE	Radon, $^3\text{H}/\text{He}$ , Br		Maj, IS
R13**,R03,R23, R56a,R29, R30		Maj, IS, $^{13}\text{C}$ , Radon, Br		
R09, R05, R21, R20, R19, R17, R16, R02, R01		Maj, IS		

\*Source de la nappe inférieure. \*\*Source située en aval de la station d'épuration

Niv : niveau piézométrique, Temp : température de l'eau, CE : conductivité électrique, Maj : anions et cations majeurs, IS : Isotopes stables de l'eau, Br : anion Br

## 2.3 Méthodes d'analyse des données acquises

### 2.3.1 Analyses corrélatrices et spectrales

L'objectif de l'analyse de séries temporelles est d'analyser un signal afin d'en tirer le maximum d'informations. Les analyses corrélatrices et spectrales sont largement décrites par (Box et al., 1994). Ces méthodes d'analyse de séries temporelles ont été utilisées par de nombreux auteurs afin d'améliorer la compréhension des systèmes karstiques (Mangin, 1975; Padilla & Pulido-Bosh, 1995; Larocque et al., 1998; Mathevet et al., 2004; Massei et al., 2006; Panagopoulos & Lambrakis, 2006). Ces auteurs ont utilisé ces méthodes sur des chroniques variées telles que le débit, le niveau piézométrique, la turbidité et la conductivité électrique.

L'adaptation des analyses corrélatrices et spectrales pour l'étude des systèmes karstiques repose sur l'hypothèse que l'aquifère karstique filtre un signal d'entrée (hyétogramme) et donne une réponse associée en sortie (hydrogramme). La comparaison des signaux d'entrée et de sortie fournit une information sur la fonction de transfert entre ces deux séries et donc sur les caractéristiques du système hydrologique. Les méthodes d'analyses de chroniques peuvent être divisées en deux grands types : les analyses dans le domaine temporel, autocorrélation et corrélation croisée et dans le domaine fréquentiel, spectre simple et croisé.

Dans cette partie, différentes méthodes d'analyses de chroniques seront présentées. Pour chacune, un exemple tiré de la littérature est décrit afin d'illustrer les résultats et leurs interprétations d'un point de vue hydrodynamique (*ils figurent en italique*). Ces exemples seront principalement tirés d'une publication de Panagopoulos & Lambrakis (2006) qui étudie deux aquifères karstiques situés en Grèce, Trifilia et Almyros, qui se différencient par leur degré de karstification, Almyros étant plus karstifié que Trifilia. Les chroniques du débit et du niveau piézométrique de ces deux aquifères sont présentés en figure 2.7.

#### 2.3.1.1 Pré-requis

La covariance,  $cov(X, Y)$ , permet de quantifier la liaison entre deux séries X et Y, de manière à mettre en évidence le sens de la liaison (corrélation ou anti-corrélation) et son intensité. Lorsque la covariance est élevée, les deux paramètres sont fortement liés.

Sur un échantillon de taille n, la covariance est définie par :

$$cov(X, Y) = \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y}) \quad (2.1)$$

La covariance ne permet pas de comparer des variables exprimées dans des unités différentes.

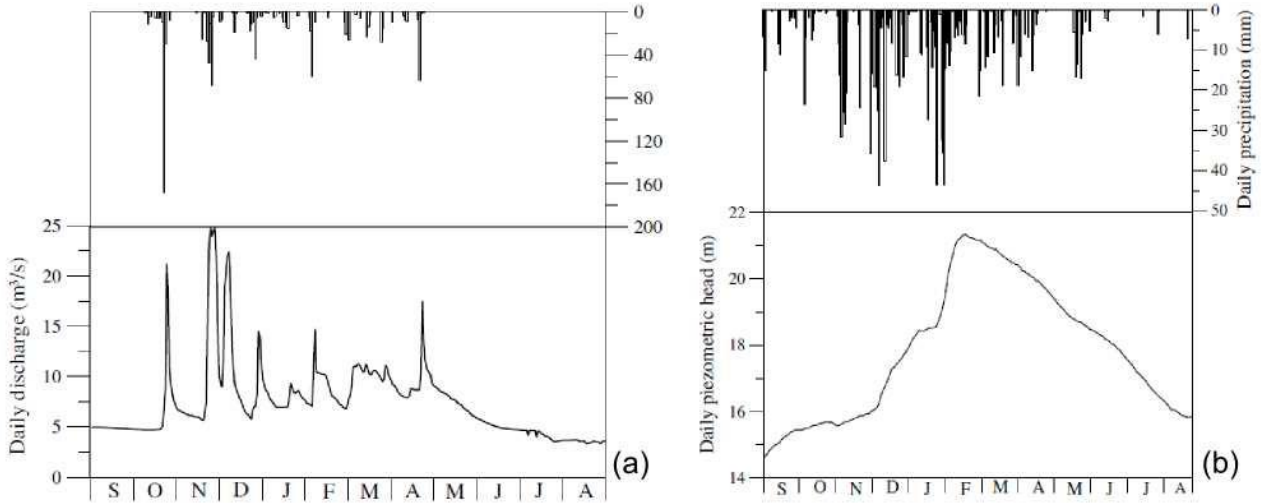


FIGURE 2.7: Chronique du débit d'une source de l'aquifère Almyros durant le cycle hydrologique (1996-1997) (a) et du niveau piézométrique de l'aquifère Trifilia (b) durant le cycle hydrologique (2001-2002) (Panagopoulos et al., 2006)

Le coefficient de corrélation est une normalisation de la covariance par le produit des écarts-types, il permet de supprimer l'unité et l'ordre de grandeur de X et Y et ainsi de comparer des variables d'ordre de grandeurs différentes. Il est défini par :

$$r_{X,Y} = \frac{\text{cov}(X,Y)}{\sigma_x \sigma_y} \quad (2.2)$$

où  $\text{cov}(X,Y)$  est la covariance entre les variables X et Y et  $\sigma_x$  et  $\sigma_y$  l'écart type de chaque série respectivement. Ainsi, le coefficient de corrélation est un nombre sans unité, compris entre -1 et +1 et il traduit la plus ou moins grande dépendance linéaire entre X et Y.

### 2.3.1.2 L'autocorrélation

#### . Définition

L'autocorrélation d'une série temporelle discrète est simplement la corrélation de la série avec elle-même décalée dans le temps (Box et al., 1994). Ainsi, elle permet de décrire le degré de dépendance linéaire des valeurs d'une série de données, pour des valeurs de plus en plus espacées.

La fonction d'autocorrélation est définie par :

$$r_{xx}(k) = \frac{C_{xx}(k)}{C_{xx}(0)} \quad (2.3)$$

$$C_{xx}(k) = \frac{1}{n} \sum_{t=1}^{n-k} (x_t - \bar{x})(x_{t+k} - \bar{x}) \quad (2.4)$$

où  $C(k)$  est l'auto-variance,  $r(k)$  le coefficient d'autocorrélation,  $k$  le décalage temporel,  $n$  la longueur de la chronique,  $x_t$  la valeur du paramètre étudié au temps  $t$ ,  $\bar{x}$  la valeur moyenne du paramètre étudié. On définit par ailleurs  $m$ , le point de troncature, ( $m=n/3$ ), qui correspond au nombre de valeurs au-delà duquel les interactions entre les données ne sont plus prises en compte.

L'autocorrélation permet de déterminer le degré de conservation de l'information dans une série temporelle, elle souligne l'inertie, la mémoire du système. Si un événement a une influence à long terme sur la chronique étudiée, alors la fonction d'autocorrélation,  $r(k)$ , diminue doucement (Larocque et al., 1998). A l'inverse, plus la pente est forte, moins le signal étudié est inertiel.

D'un point de vue hydrogéologique, la fonction d'autocorrélation peut être interprétée pour caractériser le système karstique. L'autocorrélation peut donner une information sur le taux de karstification et la capacité de rétention du ou des réservoirs du système karstique. Un système karstique peu développé avec un stockage important sera potentiellement caractérisé par un fort effet mémoire (Panagopoulos & Lambrakis, 2006). Néanmoins, un système karstique est un système complexe, ainsi une forte inertie du système n'est pas obligatoirement liée aux dimensions des réserves karstiques, mais peut être liée à la morphologie, la dimension et l'organisation des différentes zones de l'aquifère (Hanin, 2010).

#### . Quantification de l'inertie

L'autocorrélation, notamment des débits est une méthode classiquement utilisée pour l'étude de système karstique. Dans ce contexte, Mangin (1984) définit l'effet mémoire, comme le temps pour lequel la fonction d'autocorrélation atteint une valeur définie, habituellement 0,2. La détermination des effets mémoires permet de quantifier et de comparer l'inertie de différents systèmes.

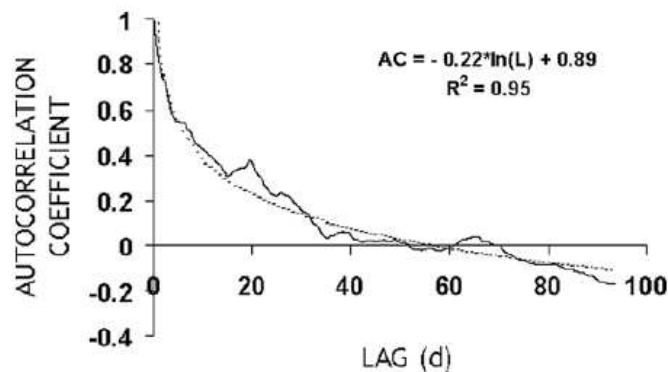


FIGURE 2.8: Exemple de calage d'une fonction logarithmique sur la fonction d'autocorrélation d'une chronique de conductivité électrique (Massei et al., 2006)

Néanmoins, les travaux de Grasso & Jeannin (1994) et Eisenlohr et al. (1997) ont montré grâce à des simulations numériques que la forme des fonctions d'autocorrélation est fortement

influencée par la fréquence des événements présents dans la série temporelle. Ainsi, la forme de l'autocorrélogramme ne dépend pas seulement du système karstique mais aussi de la fréquence et de la distribution des événements pluvieux [Fournier \(2006\)](#). En toute rigueur, la comparaison des autocorrélogrammes et des effets mémoires ne peut être réalisée que pour des systèmes soumis aux mêmes précipitations.

D'autres méthodes ont été développées afin de caractériser l'effet mémoire. Ainsi, selon [Massei et al. \(2006\)](#), l'effet mémoire correspond à la forme globale de la fonction d'autocorrélation. Il propose de quantifier le taux de décroissance de la fonction d'autocorrélation en calant une fonction analytique de la forme ;  $AC = a_0 + a_1 \ln(k)$  ; où AC est le coefficient d'autocorrélation, k le décalage temporel,  $a_0$  le coefficient de l'autocorrélation au décalage d'une unité de temps,  $a_1$  exprime la vitesse avec laquelle l'information est perdue (en "pas de temps"<sup>-1</sup>) (figure 2.8). La comparaison des valeurs de  $a_0$  et de  $a_1$  entre différents systèmes permet de hiérarchiser l'inertie des aquifères.

. *Exemple de fonction d'autocorrélation*

La fonction d'autocorrélation relative à l'aquifère Almyros (figure 2.9) montre une décroissance irrégulière, avec deux pentes, interprétée par [Panagopoulos & Lambrakis \(2006\)](#) comme l'image de la dualité de l'aquifère karstique avec des transferts rapides et des transferts plus lents. La fonction d'autocorrélation relative à l'aquifère Trifilia montre quant à elle une pente douce et un effet mémoire important qui peut être interprété comme le signe d'une inertie importante de système, caractérisant un aquifère peu karstifié et possédant un fort pouvoir de stockage (figure 2.9).

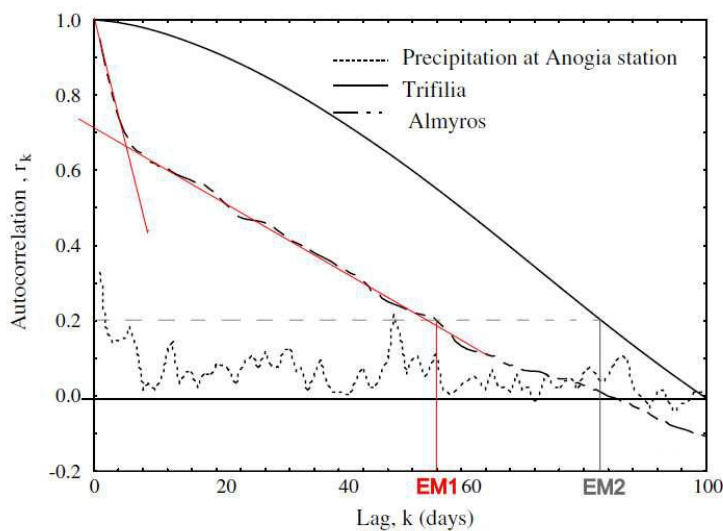


FIGURE 2.9: Exemples d'autocorrélogramme de la pluie et du débit de deux aquifères karstiques. EM1 et EM2 correspondent respectivement aux effets mémoires pour  $r(k)$  égale à 0.2 (selon Mangin(1984)) pour l'aquifère Almyros et l'aquifère Trifilia (modifié depuis Panagopoulos et al., 2006).

### 2.3.1.3 La fonction de densité spectrale

#### . Définition

La fonction de densité spectrale est une simple représentation de la fonction d'autocorrélation en mode fréquentiel grâce à une transformation de Fourier. La transformée de Fourier permet de mettre en évidence des fréquences présentes dans un signal difficilement lisible dans le mode temporel.

La fonction de densité spectrale est définie par :

$$s(f) = 2 \left[ 1 + 2 \sum_{k=1}^m D(k)r(k) \cos(2\pi f k) \right] \quad (2.5)$$

$$D(k) = \frac{1 + \cos \pi \frac{k}{m}}{2} \quad (2.6)$$

où  $f$  est la fréquence ( $f=j/2m$  avec  $j$  allant de 1 à  $m$ ) et  $D(k)$ , fonction de pondération s'assure que le  $S(f)$  n'est pas un biais (filtre de Tuckey).

La fonction de densité spectrale adaptée au milieu karstique a été développée par Mangin. Le choix du filtre de Tuckey est basé sur la nécessité :

- de filtrer le plus possible les valeurs correspondantes à des  $k$  grands afin d'obtenir un spectre le plus lisible possible
- d'obtenir un bon lissage du signal (suppression des oscillations parasites)
- d'avoir une bande passante suffisamment grande.

La fonction d'autocorrélation filtre le bruit non significatif d'une chronique tout en faisant ressortir les fréquences contenues dans le signal. La fonction de densité spectrale permet de détecter ces fréquences et leur amplitude associée. La fonction de densité spectrale,  $S(f)$ , permet de déterminer la fréquence de coupure. La fréquence de coupure,  $F_c$ , correspond à la fréquence au dessus de laquelle l'intensité des spectres est négligeable, indiquant une absence d'information utile. D'un point de vue hydrogéologique, plus la fréquence de coupure est faible, plus le système est inertiel et moins il est karstifié (Mangin, 1984).

#### . Exemples

Sur les deux fonctions de densité spectrale relatives aux deux aquifères, Trifilia et Almyros, figure 2.10, un pic important de fréquence 0,003 (période 333 jours) est visible. Il correspond à un cycle annuel lié à la recharge annuelle de l'aquifère (Panagopoulos & Lambrakis, 2006).

Les deux spectres se différencient par la taille de la bande spectrale (bande de fréquence où l'amplitude du spectre est différente de zéro). La bande spectrale est relativement grande pour l'aquifère Almyros, en effet, la fonction de densité spectrale est caractérisée par une amplitude non nulle jusqu'à la fréquence 0,02, soit 5 jours, ceci met en évidence l'importance de la part des transferts rapides. A l'inverse, pour l'aquifère Trifilia, le spectre d'amplitude décroît plus doucement pour les fréquences entre 0,01 et 0,04 que pour l'aquifère Almyros mais atteint zéro pour des fréquences plus élevées ce qui montre un fort effet de régulation, une forte inertie du système et très peu de transferts rapides (figure 2.10).

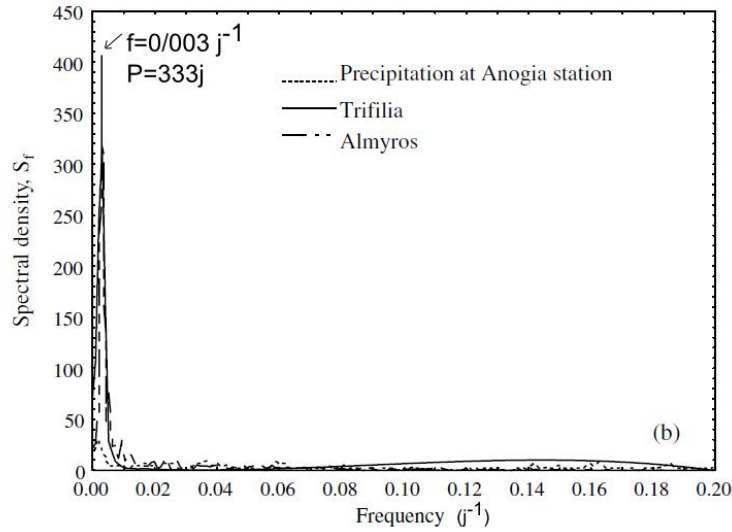


FIGURE 2.10: Exemples de fonctions de densité spectrale de la pluie et du débit de deux aquifères karstiques (Panagopoulos et al., 2006)

### 2.3.1.4 La corrélation croisée

#### . Définition

La fonction de corrélation croisée est un outil statistique pour examiner la relation entre deux séries  $(x_t)$  et  $(y_t)$  dans le domaine temporel. La fonction de corrélation croisée consiste à calculer le coefficient de corrélation entre deux séries décalées dans le temps. La corrélation croisée fournit deux types d'informations, l'intensité de la corrélation en fonction du décalage temporel et les relations de causalité entre les deux séries.

La fonction de corrélation croisée,  $r_{xy}(k)$  est définie par :

$$r_{xy}(k) = \frac{C_{xy}(k)}{\sigma_x \sigma_y} \quad (2.7)$$

$$C_{xy}(k) = \frac{1}{n} \sum_{t=1}^{n-k} (x_t - \bar{x})(y_{t+k} - \bar{y}) \quad (2.8)$$

où  $k$  est le décalage temporel,  $x_t$  la valeur de la série  $x$  au temps  $t$ ,  $y_t$  la valeur de la série  $y$  au temps  $t$ ,  $\bar{x}$  et  $\bar{y}$  les moyennes des deux chroniques,  $\sigma_x$  et  $\sigma_y$  les écart-types des deux chroniques.

La forme de la fonction de corrélation croisée donne une information sur les relations qui existent entre les deux chroniques. Si la fonction de corrélation croisée :

- est symétrique et centrée en zéro alors les deux signaux (entrée et sortie) réagissent en même temps à un troisième signal indépendant
- si  $r_{xy}(k) > 0$  pour  $k > 0$  alors le signal d'entrée est précurseur par rapport au signal de sortie et les deux signaux sont corrélés
- si  $r_{xy}(k) < 0$  pour  $k > 0$  alors le signal d'entrée est précurseur par rapport au signal de sortie et les deux signaux sont anti-corrélés
- si  $r_{xy}(k) > 0$  pour  $k < 0$  alors le signal de sortie est précurseur par rapport au signal d'entrée et les deux signaux sont corrélés
- si  $r_{xy}(k) < 0$  pour  $k < 0$  alors le signal de sortie est précurseur par rapport au signal d'entrée et les deux signaux sont anti-corrélés.

Le temps de réponse est défini comme le décalage temporel  $k$  lorsque  $r(k) = \max[r_{xy}(k)]$  (figure 2.11). En hydrogéologie, plus le temps de réponse est court, plus le transfert est rapide.

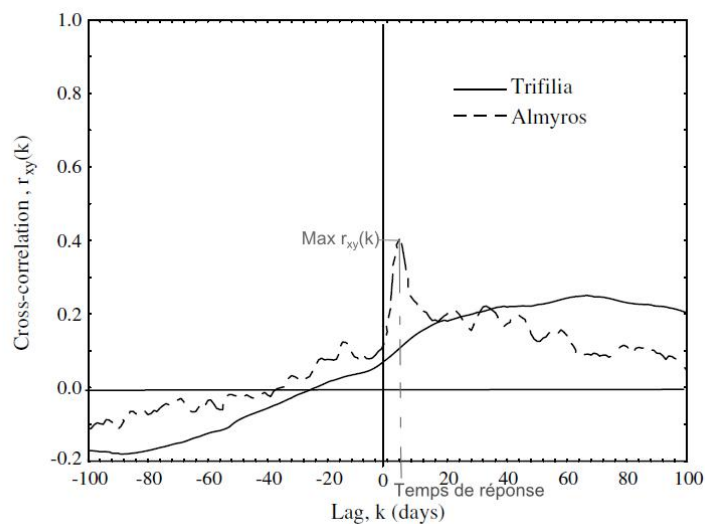


FIGURE 2.11: Exemples de fonctions de corrélation croisée pluie-débit de deux aquifères karstiques (Panagopoulos et al., 2006)

D'un point de vue hydrogéologique, si la chronique pluviométrique est aléatoire, c'est à dire que sa fonction d'autocorrélation est assimilable à une fonction dirac, alors la fonction de corrélation croisée pluie-débit est l'image de la réponse impulsionnelle de l'aquifère (Mangin, 1984). La réponse impulsionnelle correspond à la forme de la réponse du système pour une pluie unitaire.



Dans un milieu karstique, il n'est pas rare d'observer des pics successifs dans la fonction de corrélation croisée pluie-niveau piézométrique/débit. Ces pics peuvent être interprétés différemment selon le contexte. Si les chroniques étudiées sont courtes, des artéfacts de corrélation peuvent être présents. Dans le cas contraire et si le signal d'entrée est aléatoire, ces différents pics peuvent être interprétés comme une caractéristique hydrologique du système et correspondent à des réponses distinctes pouvant illustrer la distribution de porosités présentes dans ce type d'aquifère (Padilla & Pulido-Bosh, 1995; Lee et al., 2006).

. *Exemple de fonctions de corrélation croisée*

Dans l'article de Panagopoulos & Lambrakis (2006), la fonction de corrélogramme croisé pluie-débit d'Almyros (figure 2.11) démontre la bimodalité de l'hydrodynamique de l'aquifère : une réponse rapide soulignée par le pic abrupte et interprétée comme la réponse immédiate de l'aquifère à une pluie, suivie d'une décroissance moins abrupte et plus graduelle de la fonction de corrélation croisée illustrant la composante de base de l'aquifère karstique. La fonction de corrélation croisée pluie-débit de Trifilia souligne que cet aquifère est moins karstifié et que la réponse aux événements pluvieux est plus lente et plus inertielle.

### 2.3.1.5 Le spectre croisé

Le spectre de densité croisé,  $S_{xy}(f)$ , correspond à la transformée de Fourier de la fonction de corrélation croisée. Elle permet d'obtenir dans le domaine fréquentiel une information sur la fonction de transfert entre chronique d'entrée et chronique de sortie.

$$S_{xy}(f) = h_{xy}(f) - i\lambda_{xy}(f) \quad (2.9)$$

où

$$h_{xy}(f) = 2 \left[ r_{xy}(0) + \sum_{t=1}^m (r_{xy}(k) + r_{yx}(k)) D(k) \cos(2\pi f k) \right] \quad (2.10)$$

$$\lambda_{xy}(f) = 2 \left[ r_{xy}(0) + \sum_{t=1}^m (r_{xy}(k) + r_{yx}(k)) D(k) \sin(2\pi f k) \right] \quad (2.11)$$

En coordonnées polaires, le spectre de densité de variance croisé s'écrit :

$$S_{xy}(f) = |S_{xy}(f)| \exp^{-i\theta_{xy}(f)} \quad (2.12)$$

La fonction d'amplitude,  $|S_{xy}(f)|$ , correspond au module du spectre croisé. Elle représente la manière dont la fonction d'entrée a été modifiée par le système et exprime la relation entrée-sortie, fréquence par fréquence. Ceci permet d'identifier les phénomènes fréquentiels de la fonction d'entrée qui se retrouvent dans la fonction de sortie [Box et al. \(1994\)](#).

La fonction de phase  $\theta_{xy}(f)$  indique le déphasage entre la sortie et l'entrée, fréquence par fréquence.

Le spectre croisé est difficile à interpréter. Ainsi habituellement 3 fonctions dérivant du spectre croisé sont décrites en fonction de la fréquence pour étudier la relation entre les deux séries dans le domaine fréquentiel : la cohérence, la phase et le gain.

### 2.3.1.6 La fonction de cohérence

. Définition

La fonction de cohérence est définie par :

$$CO_{xy}(f) = \frac{S_{xy}(f)}{\sqrt{S_x(f)S_y(f)}} \quad (2.13)$$

Où  $S_{xy}(f)$  est le spectre de densité croisée de  $x(t)$  et  $y(t)$ ,  $S_x(f)$  et  $S_y(f)$  sont les fonctions de densité spectrale respectivement des séries  $x(t)$  et  $y(t)$ .

Dans l'expression de la fonction de cohérence, on trouve une fonction caractérisant l'entrée  $S_x$ , la sortie  $S_y$  et la fonction de transfert  $S_{xy}$ . Ainsi, la fonction de cohérence caractérise le système dans sa totalité, elle exprime pour chaque fréquence, la quantité de relation linéaire entre l'entrée et la sortie, c'est-à-dire la part de  $S_y$  qui peut être liée à  $S_x$  par une relation linéaire. Un système est linéaire si une augmentation ou une diminution de la fonction de sortie est proportionnelle à la variation de l'entrée. Plus un système est linéaire, plus la fonction de cohérence est proche de 1. Si la fonction de cohérence est faible, celle-ci peut mettre en évidence la non-linéarité du système, la présence de bruit, de retard ou une résolution fréquentielle insuffisante.

D'un point de vue hydrogéologique, une forte linéarité entre entrée et sortie est caractéristique des systèmes simples et bien karstifiés ([Mangin, 1984](#)). De plus, si la fonction de cohérence conserve des valeurs assez fortes pour des fréquences inférieures à 0,25 (c'est-à-dire une période de 5 jours) alors ceci reflète l'existence d'une composante rapide au sein de l'aquifère, inférieure à 5 jours ([Padilla & Pulido-Bosh, 1995](#)).

. Exemple de fonctions de cohérence

Dans l'article de [Panagopoulos & Lambrakis \(2006\)](#), la fonction de cohérence de l'aquifère Almyros (figure 2.12) varie entre 0,7 et 1 pour des fréquences inférieures à 0,15, c'est-à-dire proche de la linéarité. A l'inverse pour l'aquifère Trifilia la moyenne de la fonction de cohérence est 0,55, c'est-à-dire beaucoup moins linéaire. La fonction de cohérence se lit également selon les fréquences. Pour l'aquifère Trifilia, les valeurs de cohérence sont beaucoup plus faibles même à basses fréquences ce qui montre un système peu linéaire.

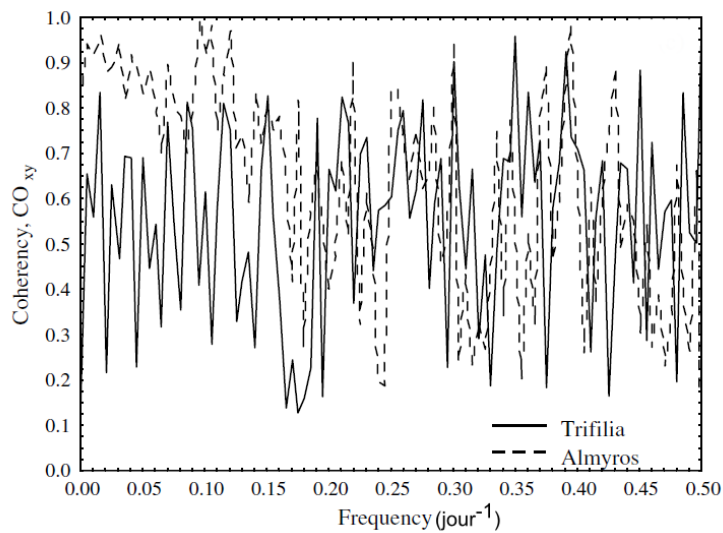


FIGURE 2.12: Exemples de fonctions de cohérence du débit de deux aquifères karstiques (Panagopoulos et al., 2006)

### 2.3.1.7 La fonction de gain

. Définition

La fonction de gain ou spectre de gain est définie par :

$$G_{xy}(f) = \frac{S_{xy}(f)}{S_x(f)} \quad (2.14)$$

Où  $S_{xy}(f)$  est le spectre de densité croisé de  $x(t)$  et  $y(t)$ ,  $S_x(f)$  est la fonction de densité spectrale de la série  $x(t)$ . Le spectre de gain exprime l'amplification ou l'atténuation de la donnée de sortie par rapport au signal d'entrée pour chaque fréquence.

D'un point de vue hydrogéologique, l'amplification ou l'atténuation permettent d'évaluer la dynamique des réserves. Si le signal de sortie est amplifié par rapport au signal d'entrée, alors l'écoulement au niveau des sources provient de la vidange d'eau stockée dans les réserves de l'aquifère ([Larocque et al., 1998](#)).

L'interprétation de la fonction de gain permet de définir la durée relative aux écoulements de base et aux écoulements rapides. Ainsi, Padilla & Pulido-Bosh (1995) ont étudié la forme de la fonction de gain à partir d'exemples théoriques simulés, plus ou moins karstiques. Ils déduisent que la période pour laquelle la fonction gain excède la valeur 0,4 correspond à la durée de la composante rapide de l'écoulement et la période correspondant à la valeur 1,0 correspond à la durée de la réponse impulsionnelle de la composante de l'écoulement lent.

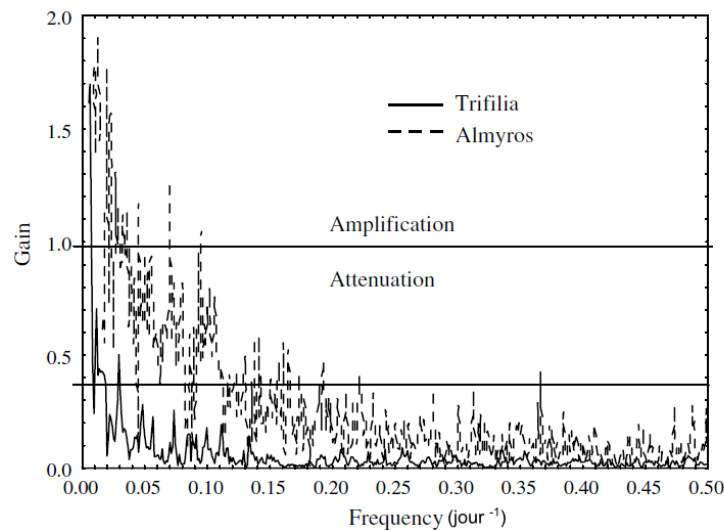


FIGURE 2.13: Exemples de fonction de gain du débit de deux aquifères karstiques (Panagopoulos et al., 2006)

#### . Exemple de fonctions de gain

Dans l'article de Panagopoulos & Lambrakis (2006), la fonction de gain de Trifilia (figure 2.13) devient inférieure à 1 pour une fréquence faible (0,007; soit 134 jours), le débit de base se caractérise par une durée importante. La fonction de gain de l'aquifère Almyros est inférieure à la valeur 0,4 pour la fréquence 0,22, soit 4,5 jours, soulignant la présence d'un transfert rapide.

#### 2.3.1.8 Corrélogramme croisé à fenêtre glissante

La méthode du corrélogramme croisé à fenêtre glissante a été développée durant cette thèse. Elle permet d'étudier l'évolution temporelle de la relation entre une variable d'entrée et une variable de sortie. La méthode consiste à découper une chronique d'entrée et de sortie en différentes fenêtres qui se superposent partiellement (figure 2.14). Pour chaque fenêtre, la fonction de corrélation croisée est calculée et le temps de réponse entre les deux paramètres sont déterminés. Ainsi, une chronique de temps de réponse est déduite.

La taille des fenêtres et le décalage entre celles-ci sont choisis de façon appropriée en fonction de l'étude et notamment de la fréquence des événements (nécessité d'avoir un nombre minimum

d'événements pour permettre une corrélation significative). Pour être acceptable, la fonction de corrélation croisée doit être caractérisée par une corrélation significative avec un intervalle de confiance de 95 %. Ainsi, le coefficient de corrélation doit être supérieur à l'erreur standard,  $\sim \frac{2}{N^{1/2}}$ , où N est le nombre de valeur de la chronique utilisée (Diggle, 1990; Lee et al., 2006).

Dans cette thèse, la méthode est essentiellement appliquée sur des chroniques pluviométriques en entrée et des chroniques piézométriques en sortie avec des fenêtres de 3 mois, décalées de 1 mois et demi. Ceci permet d'étudier l'évolution de la réponse impulsionnelle et du temps de réponse des piézomètres aux événements pluvieux en fonction des saisons.

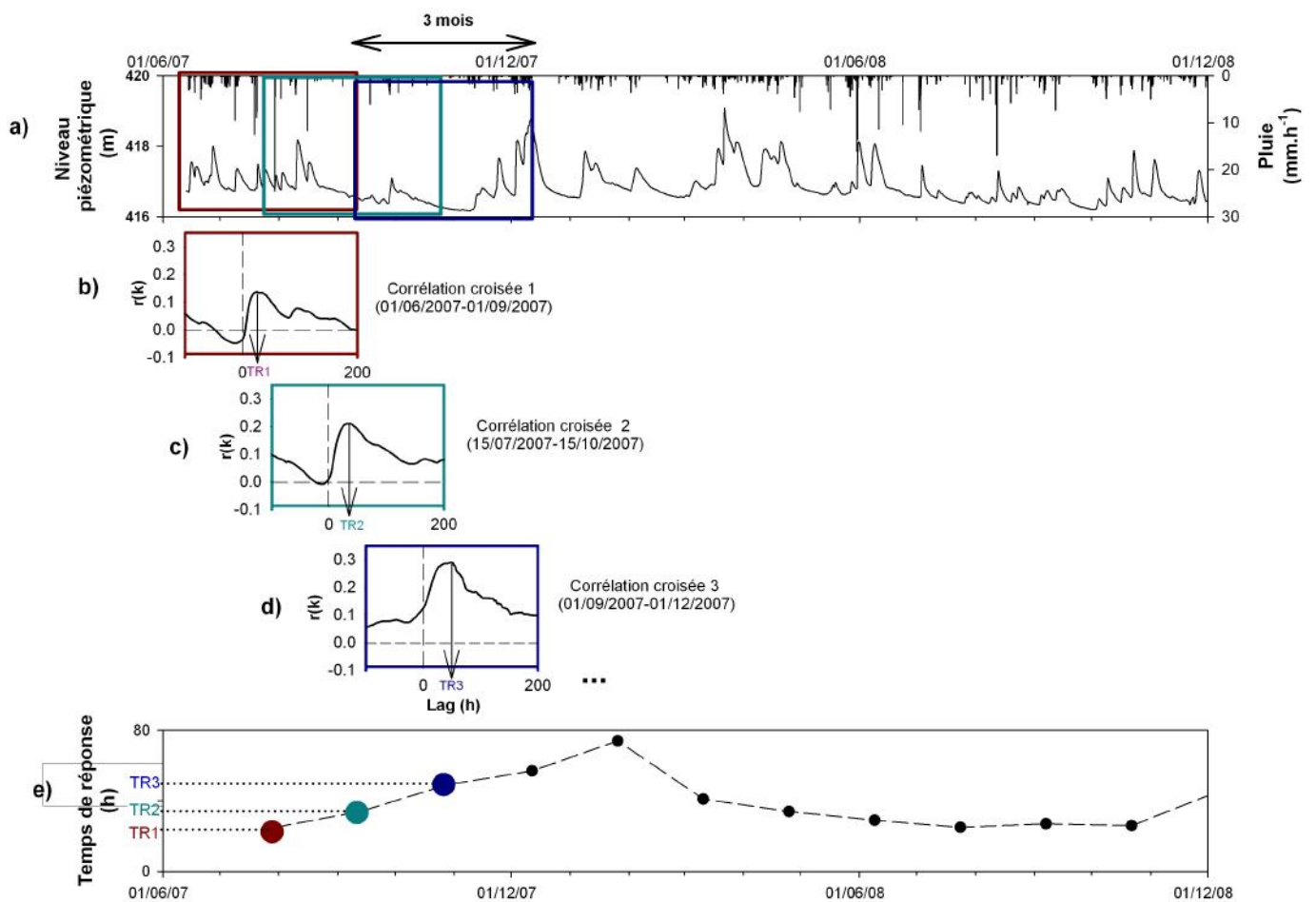


FIGURE 2.14: Principe du corrélogramme croisé coulissant. TR correspond au temps de réponse.

## 2.3.2 Traceurs environnementaux des eaux souterraines : principe et méthode d'interprétation

L'étude multi-traceurs mise en place a pour objectif de décomposer la signature géochimique et isotopique des eaux souterraines dans le but de décrire le fonctionnement hydrodynamique de l'aquifère karstique étudié. A la suite de campagnes de prélèvements, des nombreuses mesures géochimiques et isotopiques ont été réalisées sur des échantillons d'eau souterraine prélevés au niveau de forages et de sources.

Dans cette partie, les différents traceurs isotopiques et géochimiques utilisés dans cette étude seront présentés et les clefs pour leur interprétation en terme de processus hydrodynamiques, de vitesses d'écoulement et de temps de résidence seront données.

### 2.3.2.1 Paramètres physico-chimiques de l'eau : température (T), conductivité électrique (EC) et pH

Les paramètres physico-chimiques de l'eau (T, EC, pH) ont l'avantage de pouvoir être mesurés grâce à des sondes autonomes. Des chroniques longues à haute fréquence peuvent être obtenues. Ce type de chroniques est particulièrement intéressant pour l'étude des aquifères karstiques dont la composition géochimique des eaux peut varier très rapidement (Larocque, 1997; Birk et al., 2004; Massei et al., 2006; Valdes et al., 2006; Hanin, 2010; Bailly-Comte et al., 2011).

#### *La conductivité électrique*

La conductivité électrique correspond à la mesure de la capacité de l'eau à transmettre un courant électrique. C'est l'image de la quantité d'ions présents dans l'eau, quantité contrôlée principalement par l'équilibre calco-carbonique dans le cas des aquifères carbonatés karstiques.

Une variation de la conductivité électrique des eaux souterraines traduit une modification de la composition moyenne des eaux souterraines : une diminution de la conductivité électrique traduit un apport d'eau moins minéralisée, souvent associé à des eaux de recharge aux vitesses de transfert élevées ; une augmentation de la conductivité, quant à elle, est classiquement associée soit à une arrivée d'eau lente ou/et diffuse, soit à une remobilisation d'eau ancienne stockée, soit à l'arrivée d'eau à fort pouvoir de dissolution, soit à l'arrivée d'une eau contaminée en sel de route par exemple.

Les variations de la conductivité électrique peuvent être étudiées à l'aide d'outils statistiques tels que les analyses corrélatoires ou la distribution de fréquence de la conductivité électrique. Les analyses corrélatoires ont été développées dans la partie 2.3.1.

Bakalowicz (1979) propose à partir de la méthode de distribution de fréquence de la conductivité électrique une classification des systèmes carbonatés. Un aquifère carbonaté de type

poreux ou fissuré présente une distribution unimodale peu dispersée qui traduit un fonctionnement géochimique homogène. Un aquifère karstique présente une distribution plurimodale et étalée (figure 2.15). Bakalowicz (1979) suggère que les différentes modalités des distributions de fréquence de la conductivité électrique représentent différentes masses d'eau distinctes géochimiquement dont la conductivité électrique moyenne dépend de leurs origines et de leurs temps de résidence.

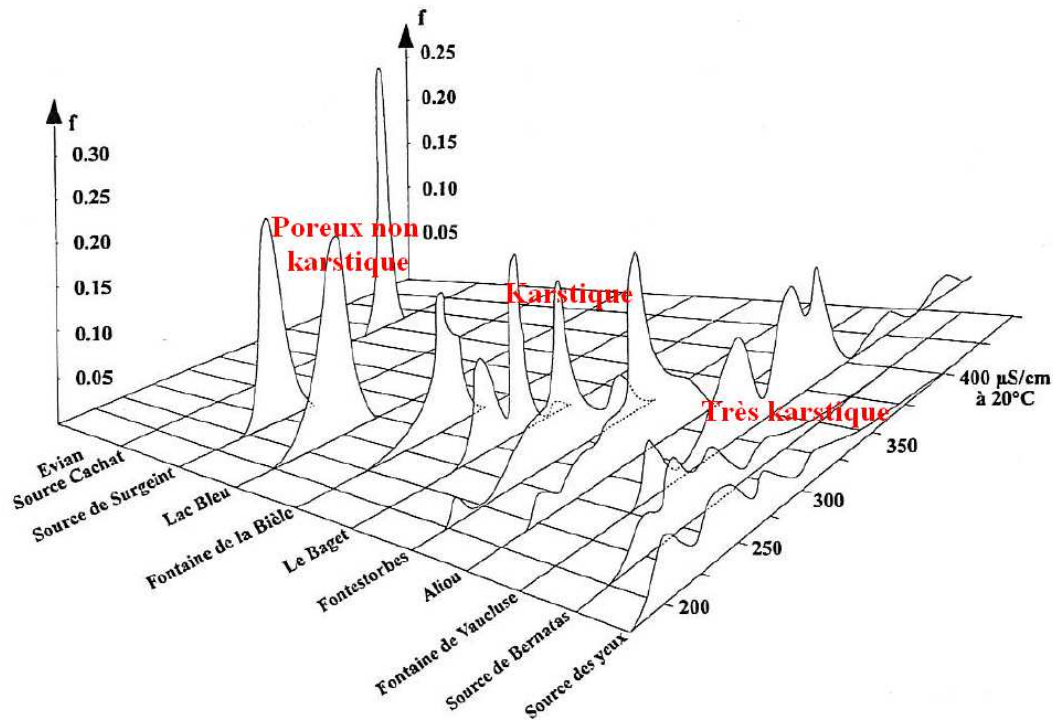


FIGURE 2.15: Distribution des fréquences de conductivité (Bakalowicz, 1979)

Massei et al. (2007) proposent de décomposer les distributions de fréquence en différentes lois de distribution normale, chacune des lois représentant une masse d'eau. Cette méthode permet d'obtenir le nombre de masses d'eau composant le signal, leur caractéristique et leur contribution.

### *La température de l'eau*

La température de l'eau est un traceur naturel complexe car le transfert de chaleur au sein d'un aquifère est soumis à deux grands processus :

- *la conduction ou diffusion* : il s'agit du transfert de chaleur au sein d'un milieu, sans déplacement de matière, sous l'influence d'une différence de température. La densité de flux est proportionnelle au gradient de température et à la conductivité thermique de la roche,
- *l'advection* : le flux de chaleur est transporté par un fluide (exemple : eau) en déplacement.

Selon Bundschuh (1993), lorsque la propagation de la vague de la température de l'air annuelle à travers le sol et l'aquifère a lieu par conduction, le signal d'entrée est transformé : l'amplitude est de plus en plus faible avec la profondeur jusqu'à être nulle. Bundschuh (1993) démontre que le signal n'est plus visible à des profondeurs supérieures à 20 m.

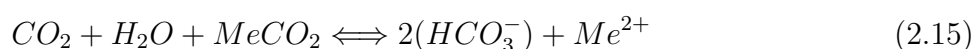
Selon Bundschuh (1993), l'advection correspond au mécanisme de transport de chaleur le plus important (90 %) au sein des aquifères. Une variation saisonnière de la température des eaux souterraines peut traduire un processus d'advection et une infiltration continue d'eau de surface dont la température est influencée par la température de l'air (Birk et al., 2004).

Des infiltrations d'eau de surface rapides et localisées peuvent induire par advection des variations haute fréquences de la température de l'eau souterraine. Ce type de variation est associé à des variations d'autres traceurs telles que la conductivité, la composition géochimique et apporte des arguments complémentaires pour caractériser les écoulements souterrains (Birk et al., 2004).

### 2.3.2.2 Traceurs du système calco-carbonique

#### *La mise en solution des carbonates*

La réaction de dissolution des carbonates, réaction triphasique (roche carbonatée, eau et  $\text{CO}_2$ ) est un ensemble d'équilibres réversibles, dont les étapes sont rappelées dans la figure 2.16, l'équation générale est la suivante :



où  $\text{Me}^{2+}$  représente un cation bivalent :  $\text{Ca}^{2+}$  ou  $\text{Mg}^{2+}$ .

La mise en solution du  $\text{CO}_2$  gaz et la dissolution des carbonates entraînent la formation d'espèces carbonatées dissoutes ( $\text{H}_2\text{CO}_3$ ,  $\text{HCO}_3^-$  et  $\text{CO}_3^{2-}$ ) dont la somme constitue le carbone inorganique total dissous (CITD).

#### *Cinétique des réactions du système calco-carbonique*

La dissolution du  $\text{CO}_2$  (ou conversion du  $\text{CO}_2$ ) se produit en quelques minutes. Dans le cas d'une eau à 25°C avec un pH compris entre 7 et 9, 99% de l'équilibre est atteint en 100 secondes (Dreybrodt, 1996). Le dégazage de la solution peut quant à lui prendre quelques heures selon Roques (1964). Dans la phase liquide, les réactions sont quasi-instantanées pour les valeurs de pH observées dans les eaux naturelles (Langmuir, 1997). La réaction la plus lente de l'équilibre est la dissolution des carbonates. La vitesse de réaction dépend du gradient de concentrations entre la phase liquide et la phase solide et du transit des espèces dissoutes par l'écoulement de l'eau. Les expériences de Roques & Ek (1973) réalisées sur différents calcaires placés dans de l'eau à 10°C avec une pression partielle de  $\text{CO}_2$  d'environ  $1,1 \cdot 10^{-2}$  atm montrent que 5 à 9 jours sont nécessaires pour atteindre 90 % de la réaction de dissolution.

Le système étudié est constitué principalement de carbonates. Ainsi, l'état d'équilibre de l'eau souterraine avec la roche encaissante permet d'estimer le temps de résidence de l'eau mais



Réactions d'équilibres	Equations thermodynamiques liées aux constantes de dissociation et/ou d'équilibres
<b>1) Entre phase liquide et phase gazeuse:</b> +Dissolution ou évaporation du CO <sub>2</sub> (1) (CO <sub>2</sub> ) <sub>g</sub> $\rightleftharpoons$ (CO <sub>2</sub> ) <sub>l</sub>	K <sub>0</sub> : constante de Henry pour le CO <sub>2</sub>  $K_0 = (\text{CO}_2)_l / p\text{CO}_2$
<b>2) Dans la phase liquide:</b> +Hydratation du CO <sub>2</sub> et ionisations (2) CO <sub>2</sub> + n H <sub>2</sub> O $\rightleftharpoons$ (CO <sub>2</sub> , n H <sub>2</sub> O) (2bis) (CO <sub>2</sub> , n H <sub>2</sub> O) + p H <sub>2</sub> O $\rightleftharpoons$ HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> + H <sub>3</sub> O <sup>+</sup> + (n+p-2) H <sub>2</sub> O (3) HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> + H <sub>2</sub> O $\rightleftharpoons$ CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup> + H <sub>3</sub> O <sup>+</sup> +Formation des paires d'ions (4) HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> + Me <sup>2+</sup> $\rightleftharpoons$ MeHCO <sub>3</sub> <sup>+</sup> (5) CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup> + Me <sup>2+</sup> $\rightleftharpoons$ MeCO <sub>3</sub> <sup>0</sup> +Dissociation de l'eau (6) 2H <sub>2</sub> O $\rightleftharpoons$ H <sub>3</sub> O <sup>+</sup> + OH <sup>-</sup> +Formation de paire d'ion avec SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (7) Me <sup>2+</sup> + SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> $\rightleftharpoons$ MeSO <sub>4</sub> <sup>0</sup>	$K_1 = (\text{HCO}_3^-)(\text{H}_3\text{O}^+) / (\text{CO}_2)$ $K_2 = (\text{CO}_3^{2-})(\text{H}_3\text{O}^+) / (\text{HCO}_3^-)$  $K_3 = (\text{MeHCO}_3^+) / (\text{HCO}_3^-)(\text{Me}^{2+})$ $K_4 = (\text{MeCO}_3^0) / (\text{CO}_3^{2-})(\text{Me}^{2+})$  $K_e = (\text{H}_3\text{O}^+)(\text{OH}^-) = 10^{-14}$  $K_5 = (\text{MeSO}_4^0) / (\text{Me}^{2+})(\text{SO}_4^{2-})$
<b>3) Entre phase liquide et phase solide:</b> +Dissociation ou précipitation du carbonate (8) MeCO <sub>3</sub> $\rightleftharpoons$ CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup> + Me <sup>2+</sup>	$K_s = (\text{Me}^{2+})(\text{CO}_3^{2-}) / (\text{MeCO}_3)$
<b>4) Electroneutralité de la solution:</b> (9) 2 mCO <sub>3</sub> <sup>2-</sup> + mHCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> + 2 mSO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> = 2 mCa <sup>2+</sup> + mH <sub>3</sub> O <sup>+</sup> + mMeHCO <sub>3</sub> <sup>+</sup> avec mMe <sub>tot</sub> = mMe <sup>2+</sup> + mMeHCO <sub>3</sub> <sup>+</sup> + mMeCO <sub>3</sub> <sup>0</sup> + mMeSO <sub>4</sub> <sup>0</sup> mHCO <sub>3</sub> <sub>tot</sub> = mHCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> + mMeHCO <sub>3</sub> <sup>+</sup> mCO <sub>3</sub> <sub>tot</sub> = mCO <sub>3</sub> <sup>2-</sup> + mMeCO <sub>3</sub> <sup>0</sup> mSO <sub>4</sub> <sub>tot</sub> = mSO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> + mMeSO <sub>4</sub> <sup>0</sup> Les concentrations totales (m <sub>tot</sub> ) sont données par l'analyse Me représente tous les cations divalents associés aux carbonates : Ca, Mg, Sr	

FIGURE 2.16: Relations et constantes d'équilibre du système calco-carbonique (Bakalowicz, 1992). (X) est l'activité de l'espèce X et m dans mX est la molalité de X.

également le potentiel de karstification de l'eau souterraine. Deux paramètres sont couramment utilisés pour connaître l'état d'équilibre de l'eau par rapport aux carbonates : l'indice de saturation vis-à-vis de la calcite (IS<sub>c</sub>) et la pression partielle de CO<sub>2</sub> (pCO<sub>2</sub>).

### Indice de saturation

L'indice de saturation vis-à-vis de la calcite (IS<sub>c</sub>) permet de mesurer le degré de déséquilibre du système.

L'indice de saturation par rapport à la calcite (IS<sub>c</sub>) est défini par :

$$IS_c = \log \left( \frac{A_{Ca^{2+}} A_{CO_3^{2-}}}{K_s(T)} \right) \quad (2.16)$$

où  $A_{Ca^{2+}}$  et  $A_{CO_3^{2-}}$  les activités des ions Ca<sup>2+</sup> et CO<sub>3</sub><sup>2-</sup> respectivement, K<sub>s</sub>(T) la constante d'équilibre de la calcite à la température de l'échantillon.

Si l'indice de saturation de l'échantillon d'eau est

- égale à zéro ( $\pm 0,05$ ), le système est à l'équilibre avec la calcite,
- supérieur à 0, alors la solution est sur-saturée, il y a précipitation de carbonates,
- inférieur à 0, alors la solution est sous-saturée, il y a dissolution de carbonates.

### ***La pression partielle en $CO_2$***

La  $pCO_2$  correspond à la pression partielle en  $CO_2$  d'une phase gazeuse fictive associée à la solution, pour laquelle on suppose tous les équilibres atteints aux valeurs de pH et de  $HCO_3^-$  mesurées dans l'échantillon. La  $pCO_2$  contrôle l'état de la solution (pH,  $Ca^{2+}$ ,  $HCO_3^-$ ) car elle détermine la solubilisation des carbonates.

La  $pCO_2$  est définie par :

$$p_{CO_2} = \frac{A_{HCO_3^-} A_{H^+}}{K_1(T) K_{CO_2}(T)} \quad (2.17)$$

où  $A_{HCO_3^-}$  et  $A_{H^+}$  sont les activités des ions  $HCO_3^-$  et  $H^+$  respectivement,  $K_1(T)$  la constante d'équilibre de l'équation d'ionisation du  $CO_2$  à la température T,  $K_{CO_2}(T)$  la constante de Henry à la température T.

La  $pCO_2$  est un traceur de deux processus en compétition au sein de la zone non saturée :

- le transfert diffusif vers l'atmosphère,
- la production de  $CO_2$  par les plantes.

### ***Les anions et cations du système calco-carbonique***

#### *Les ions $Ca^{2+}$ et $HCO_3^-$*

Les ions  $Ca^{2+}$  et  $HCO_3^-$  ont une origine interne au système. Ils proviennent essentiellement de la dissolution des carbonates. Leur abondance relative dépend de l'état d'équilibre du système calco-carbonique présenté précédemment.

Les facteurs qui contrôlent la teneur en  $Ca^{2+}$  et en  $HCO_3^-$  sont :

- la pression partielle en  $CO_2$  et le pH qui décrit l'agressivité de l'eau,
- l'état du système calco-carbonique par rapport à l'équilibre de la réaction de dissolution qui est traduit par l'indice de saturation par rapport à la calcite,
- le temps de résidence de l'eau dans l'aquifère.

L'évolution au cours du temps des concentrations en  $Ca^{2+}$  et  $HCO_3^-$  donne des informations sur les processus hydrologiques qui ont lieu au sein de l'aquifère. Ainsi, une chute brutale en période de crue peut traduire un effet de dilution lié à une arrivée d'eau d'infiltration rapide. Un pic de minéralisation peut être la conséquence de la remobilisation d'une eau au temps de séjour long.

### *L'ion $Mg^{2+}$*

Les apports atmosphériques en  $Mg^{2+}$  sont négligeables. Le magnésium a une origine interne au système. La présence d'ion  $Mg^{2+}$  peut être la conséquence de la dissolution de dolomies, de calcaires magnésiens ou éventuellement de marnes dolomitiques.

Sur 33 échantillons de roches prélevées sur le site d'étude (forages), des analyses par diffraction des rayons X ont été réalisées. Sur ces 33 prélèvements, 12 montrent la présence de dolomite ou d'ankérites, minéraux dont le magnésium est un constituant. Ainsi, le magnésium peut provenir de la dissolution de dolomite. Dans certains systèmes, le magnésium peut venir de dépôts tertiaires, par exemple d'évaporites ou de smectites (Laignel, 1997).

Lorsque le  $Mg^{2+}$  est d'origine interne au système, le rapport Ca/Mg est un indicateur du temps de résidence des eaux dans l'aquifère. La dissolution de la dolomite a une cinétique plus lente que celle de la calcite (Bakalowicz, 1979). Ainsi, un rapport Ca/Mg faible correspond à des temps de séjour prolongés dans l'aquifère. Attention, bien que ce ne soit pas le cas dans cette étude, le  $Mg^{2+}$  peut être aussi associé aux évaporites fournissant des ions  $Cl^-$  et  $SO_4^{2-}$  dans ce cas, la cinétique est plus rapide.

### **2.3.2.3 Les anions et cations majeurs indépendants de l'équilibre calco-carbonique**

#### *L'ion $Cl^-$*

L'ion  $Cl^-$  est d'origine purement allochtone. Les analyses de roche n'ont pas démontré la présence de minéraux composés de chlorures. Néanmoins, en raison de l'origine marine des roches sédimentaires, cet ion peut être présent au sein de la matrice carbonatée sous forme d'inclusions fluides (Edmunds, 1996).

Différentes origines sont possibles pour les apports externes en  $Cl^-$  :

- *une origine météorique* à partir d'apports d'aérosols marins et d'émissions atmosphériques industrielles. Les concentrations du  $Cl^-$  dans les pluies sur le site sont de l'ordre de 0,10 à 1,81 mg/L,
- *une origine anthropique* par le salage des routes, les eaux usées, l'épandage, les fertilisants...,
- *une intrusion d'eau de mer*,
- *la dissolution d'évaporite*.

L'ion chlorure est une espèce conservative et constitue un bon marqueur des horizons de surface. En effet, cet ion est concentré sur les premiers centimètres du sol par l'évapotranspiration notamment en été.

### Origine des chlorures : utilisation du rapport $Br/Cl$

Les concentrations en  $Br^-$  et plus exactement le rapport  $Br/Cl$  peuvent permettre d'identifier l'origine des chlorures. Le rapport  $Br/Cl$  est conservatif et n'est pas affecté par les interactions eau-roche. Le rapport  $Br/Cl$  est connu dans l'eau de mer, environ  $3,5 \cdot 10^{-3}$  (Copin-Montegut, 1997) et pour la halite, entre  $10^{-4}$  et  $10^{-5}$  (Cartwright et al., 2004). La dissolution de halite peut engendrer une diminution rapide du rapport  $Br/Cl$  avec une augmentation de la concentration en  $Cl^-$ . L'évapotranspiration ne change pas le rapport  $Br/Cl$  jusqu'à ce que la saturation de la halite soit atteinte, dans ce cas, le résidu saumâtre devient relativement enrichi en  $Br^-$  par rapport au  $Cl^-$ . Certaines interactions entre l'eau et des contaminants peuvent modifier les rapports  $Br/Cl$  : une diminution du ratio peut être liée à un contact avec des solvants chlorés, certains fertilisants ou du sel de déneigement ; une augmentation du ratio aux contacts de pesticides (ex : ethyl dibromide ou methyl bromide) (Davis et al., 1998).

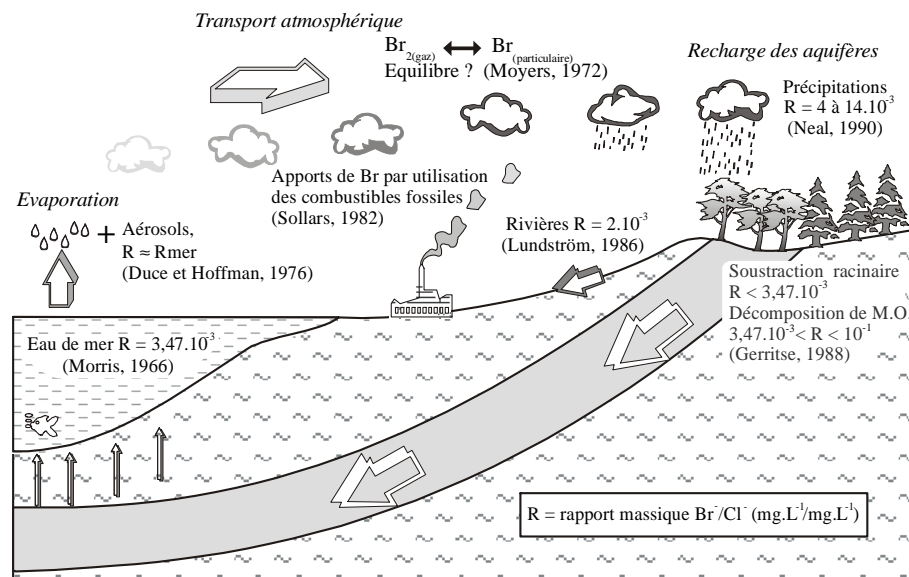


FIGURE 2.17: Le cycle de l'eau et évolution du rapport  $Br/Cl$  (Barbecot, 1999)

L'estimation du rapport  $Br/Cl$  au cours du cycle de l'eau est présentée en figure 2.17. La détermination des processus à l'origine des modifications du rapport  $Br/Cl$  passe par l'utilisation de diagrammes  $Cl/Br$  versus  $Cl^-$ .

### L'ion $Na^+$

Comme pour les chlorures, l'origine du sodium est principalement allochtone par apports atmosphériques. Comme le  $Cl^-$ , il peut provenir d'inclusions marines liées au processus de formation

de carbonates. A la différence des ions chlorures,  $\text{Na}^+$  n'est pas conservatif. Il est comme le Cl un bon marqueur de la surface du sol.

Les ions  $\text{Na}^+$  peuvent provenir, soit de l'altération de minéraux silicatés présents dans l'aquifère, soit d'échanges de cations avec les minéraux argileux (Kloppmann et al., 2001). Des analyses par fluorescence réalisées sur les roches prélevées sur le site d'étude ont montré que l'oxyde de sodium ( $\text{Na}_2\text{O}$ ) est le troisième élément le plus abondant après l'oxyde de calcium et le carbonate de calcium pour la majorité des échantillons. Les quantités sont néanmoins faibles (environ 1 à 2 %). La présence d'ions  $\text{Na}^+$  dans la roche peut s'expliquer par la présence de feldspath potassique et de minéraux argileux.

*Les ions  $\text{K}^+$ ,  $\text{NO}_3^-$  et  $\text{SO}_4^{2-}$*

L'ion  $\text{K}^+$  a une origine principale externe au système. Il peut comme le  $\text{Na}^+$  être impacté par des échanges cationiques. L'ion  $\text{NO}_3^-$  a principalement une origine allochtone, son apport atmosphérique est faible, il provient souvent de pollutions agricoles et de rejets d'effluents domestiques. L'origine des ions  $\text{SO}_4^{2-}$  est diverse : elle peut être externe soit par l'apport des pluies soit par les émissions industrielles et les apports agricoles ou interne au système par oxydation de minéraux sulfurés présents dans les calcaires (pyrite) ou par dissolution de gypse ou d'anhydrite ou encore par dégradation de la matière organique du sol.

#### 2.3.2.4 Les isotopes stables

*Les isotopes stables de l'eau*

La molécule d'eau  $\text{H}_2\text{O}$  peut inclure tous les isotopes de l'hydrogène et de l'oxygène. Les isotopes stables,  $^{18}\text{O}$  et  $^2\text{H}$ , naturellement présents et en quantité non négligeable sont des traceurs privilégiés des circulations d'eau (Etcheverry, 2002). Le suivi des rapports isotopiques,  $\delta^{18}\text{O}$  et  $\delta^2\text{H}$ , a donc de nombreuses applications dans les études hydrogéologiques.

Les isotopes stables de l'eau peuvent donner une information sur l'origine des eaux souterraines et notamment sur la localisation des aires de recharge. Cette méthode se base sur la variabilité spatiale de la signature isotopique des eaux souterraines (gradient altitudinal, effet de continentalité, effet de température).

Dans les régions tempérées, la composition isotopique des précipitations varie saisonnièrement. Dans le cas d'eau souterraine "jeune", de karsts, cette variabilité saisonnière peut être également retrouvée dans les eaux souterraines, atténuée et/ou déphasée. La comparaison des deux signaux (pluie-eau souterraine) fournit des informations sur les temps de résidence des eaux souterraines (Bakalowicz et al., 1974).

A échelle temporelle courte et notamment lors de pics de crue, la mesure de la composition isotopique des eaux souterraines peut permettre de mettre en évidence les différentes composantes de ces eaux (eau souterraine, eau de recharge récente, eau stockée dans l'épikarst). En connaissant ou en estimant les signatures isotopiques des différents pôles, des calculs de mélange peuvent être réalisés afin de déterminer les proportions de mélange et leur variation au cours du temps (Perrin et al., 2003; Cras et al., 2007).

### Le $\delta^{13}\text{C}_{\text{CITD}}$

Le  $^{13}\text{C}^1$  est utilisé en hydrogéologie pour caractériser les écoulements dans la zone non saturée (Emblanch et al., 1998).

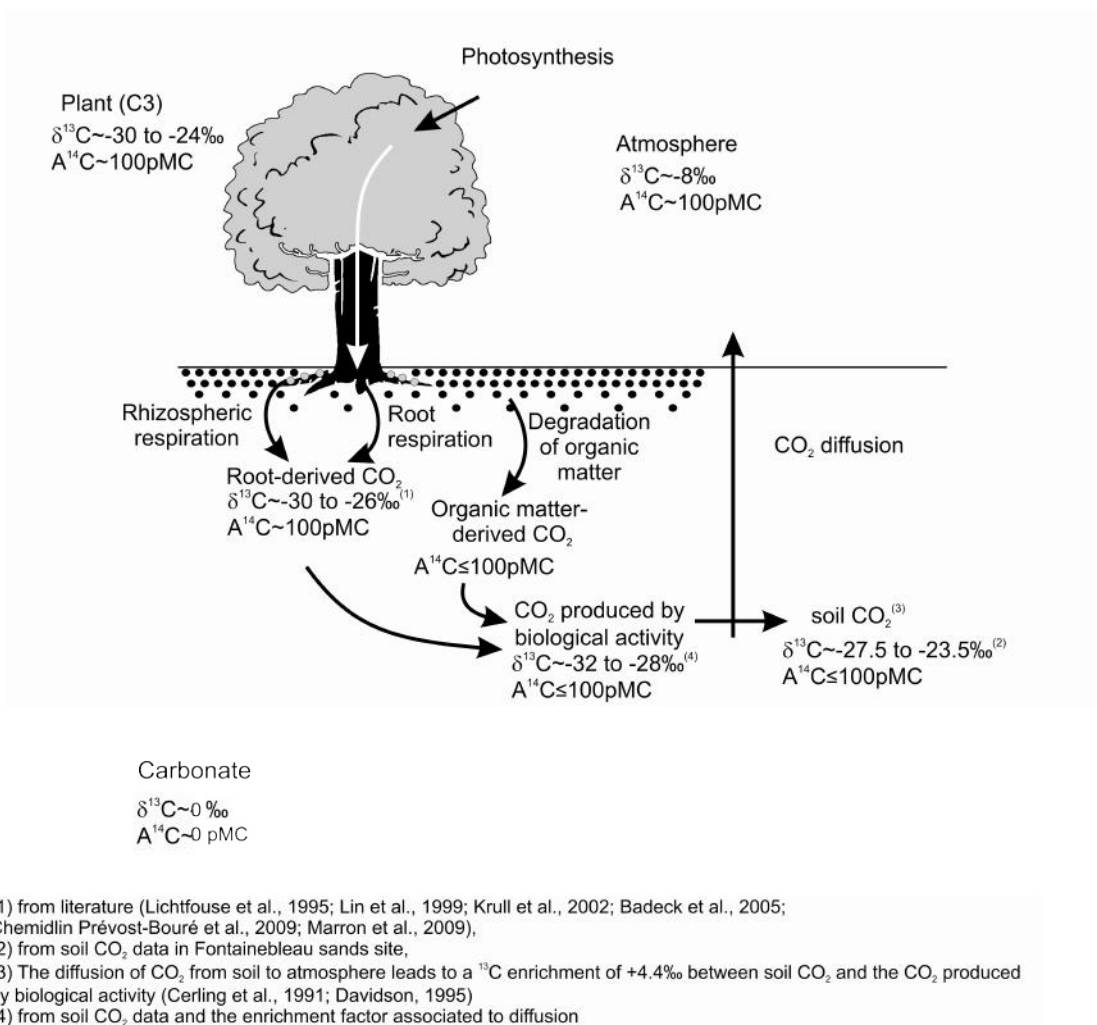


FIGURE 2.18: Schéma des sources de carbone et leur signature isotopique  $\delta^{13}\text{C}$  et  $A^{14}\text{C}$  (modifié depuis Gillon et al., 2012).

Le carbone inorganique total dissous (CITD) est acquis durant l'infiltration de l'eau et résulte de la dissolution du  $\text{CO}_2$  gazeux produit dans les sols par l'activité biologique, et de la dissolution des carbonates ( $\text{CaCO}_3$ ) (Emblanch et al., 1998; Gillon et al., 2009). Chaque source de carbone possède une signature isotopique en  $\delta^{13}\text{C}_{\text{CITD}}$  spécifique (figure 2.18).

1. Le  $\delta^{13}\text{C}$  est exprimé par rapport au standard international VPDB.

Le site d'étude est couvert de végétation de type C3. Ce type de végétation produit un  $\delta^{13}\text{C}$  compris entre  $-27,5$  et  $-23,5\text{‰}$  (Gillon et al., 2012). Des mesures du  $\text{CO}_2_{\text{gaz}}$  du sol ont été réalisées sur le site d'étude au niveau de deux zones, l'une forestière et l'autre, une plaine herbeuse, à différentes profondeurs. Au niveau de la plaine herbeuse, le  $\delta^{13}\text{C}$  du  $\text{CO}_2_{\text{gaz}}$  du sol varie peu selon la profondeur. La moyenne des mesures est de  $-24,6\text{‰}$  (5 échantillons), valeur cohérente avec les valeurs de production des plantes de type C3. Au niveau de la zone forestière, le  $\delta^{13}\text{C}$  du  $\text{CO}_2_{\text{gaz}}$  du sol varie en fonction de la profondeur avec des valeurs plus enrichies en surface (figure 2.19) allant de  $-17,7$  à  $-23,2\text{‰}$ . Cette évolution et la valeur moyenne légèrement enrichie par rapport aux valeurs de production des plantes en C3 illustrent la diffusion du  $\text{CO}_2_{\text{gaz}}$  du sol vers l'atmosphère (Gillon et al., 2009).

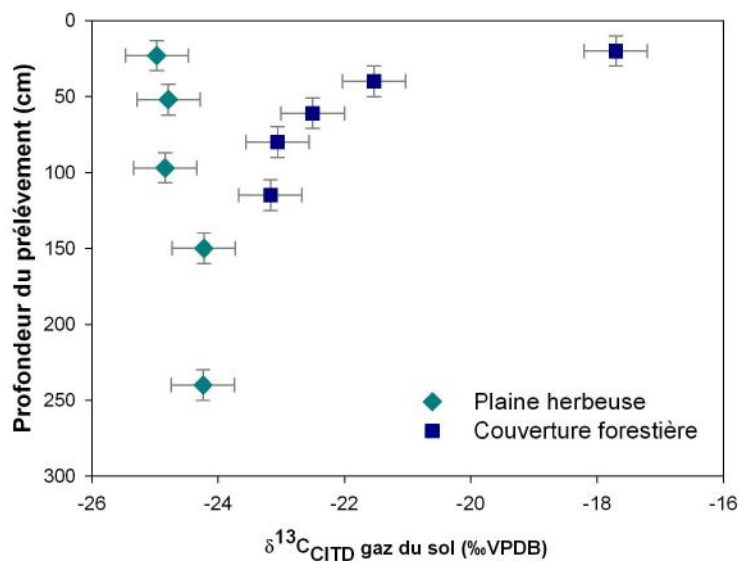


FIGURE 2.19: Signature  $\delta^{13}\text{C}$  du  $\text{CO}_2$  du sol mesurée sur le site d'étude en fonction de la profondeur du prélèvement.

La composition isotopique des carbonates qui forment l'aquifère varie entre  $1,3$  et  $2,2\text{‰}$  avec une moyenne de  $1,7\text{‰}$  (17 mesures). Ces valeurs sont en adéquation avec les valeurs de la littérature dans ce type de milieu classiquement comprises en  $-2,0$  et  $+2,0\text{‰}$  (Emblanch, 1997).

La signature  $\delta^{13}\text{C}_{\text{CITD}}$  des eaux de recharge rend compte du poids respectif des échanges gazeux avec le gaz du sol de la zone non saturée et de la dissolution de la matrice carbonatée. L'impact relatif entre le  $\text{CO}_2$  biogénique et le  $\text{CO}_2$  carbonaté dépend du degré d'ouverture du système (Gillon et al., 2009). En système ouvert, l'eau est en contact avec un réservoir  $\text{CO}_2$  gazeux infini. La pression partielle de  $\text{CO}_2$  dans la zone non saturée contrôle la dissolution des carbonates. Dans un système ouvert, les phénomènes d'équilibration entre la phase liquide et la phase gazeuse sont rapides par rapport aux processus de mise en solution de la matrice carbonatée. La solution reflétera la signature isotopique de la phase gazeuse, affectée du coefficient de fractionnement existant entre les deux phases considérées (Emblanch et al., 1998). En système fermé, la signature  $\delta^{13}\text{C}_{\text{CITD}}$  représente un mélange entre la signature isotopique initiale du

CO<sub>2</sub> et de la calcite.

L'évolution de la composition en <sup>13</sup>C<sub>CITD</sub> varie donc selon le type de système : système ouvert et système fermé. La signature isotopique  $\delta^{13}\text{C}_{\text{CITD}}$  dépend des vitesses de transit de l'eau dans la zone non saturée et de l'importance relative de la phase gazeuse. Un système naturel est plus exactement partiellement ouvert ou partiellement fermé (Gillon et al., 2009). Emblanch et al. (2003) considèrent la zone non saturée comme un système ouvert sur le CO<sub>2</sub> et la zone saturée comme un système fermé. L'eau de chaque zone possède donc une composition isotopique  $\delta^{13}\text{C}_{\text{CITD}}$  caractéristique. Ceci permet de définir les parts de mélange entre zone saturée et zone non saturée à partir des calculs de mélange. Ainsi, Emblanch et al. (1998) démontrent que l'écoulement en période d'étiage n'est pas seulement composé d'eau provenant de la zone saturée mais également de la zone non saturée, mettant ainsi en évidence l'effet réservoir de la zone non saturée ou de l'épikarst.

### 2.3.2.5 Les traceurs de datation

L' "âge" de l'eau souterraine correspond au temps écoulé entre l'entrée de l'eau dans la zone saturée et son échantillonnage. Cet âge ne comprend généralement pas le parcours de l'eau au sein de la zone non saturée qui est négligé dans la plupart des études. Plus exactement, les eaux souterraines sont un mélange de masses d'eau de temps de résidence et d'âges différents lié à l'existence d'une recharge spatialisée, de diffusion et de dispersion hydrodynamique au sein de l'aquifère. L' "âge", déterminé à l'aide des traceurs, est donc un âge apparent, il correspond à la distribution de fréquence d'âge ou au temps de résidence moyen Clark & Fritz (1997). Un âge apparent ne peut pas être dissocié du ou des éléments qui ont permis sa détermination et du modèle conceptuel sur lequel il repose.

La datation des eaux repose sur deux approches. La première se base sur le fait que le taux de décroissance ou de croissance du traceur est connu, la mesure de la concentration de celui-ci fournit une information sur le temps de résidence de l'eau souterraine (traceur radioactif : <sup>3</sup>H/<sup>3</sup>He, <sup>222</sup>Rn, <sup>37</sup>Ar, <sup>85</sup>Kr). La seconde repose sur la connaissance de la variation de la concentration d'un élément atmosphérique (CFCs, SF<sub>6</sub>) et de la comparaison des valeurs mesurées dans l'eau souterraine avec la chronique atmosphérique.

La gamme des temps de résidence reconnus pour des eaux souterraines est très large. Elle s'étend de quelques heures à plusieurs milliards d'années (Holland et al., 2013). Il est nécessaire d'utiliser des traceurs adaptés au temps de résidence supposé des eaux souterraines (figure 2.20). Dans cette étude, les traceurs de datation adaptés aux circulations rapides ont été utilisés : <sup>3</sup>H/<sup>3</sup>He, CFCs et SF<sub>6</sub>, <sup>85</sup>Kr et <sup>39</sup>Ar.

Comme cela a été précédemment précisé, l'eau échantillonnée est la plupart du temps composée de masses d'eau d'âges et d'origines différents. Afin de connaître la répartition des âges, l'étude



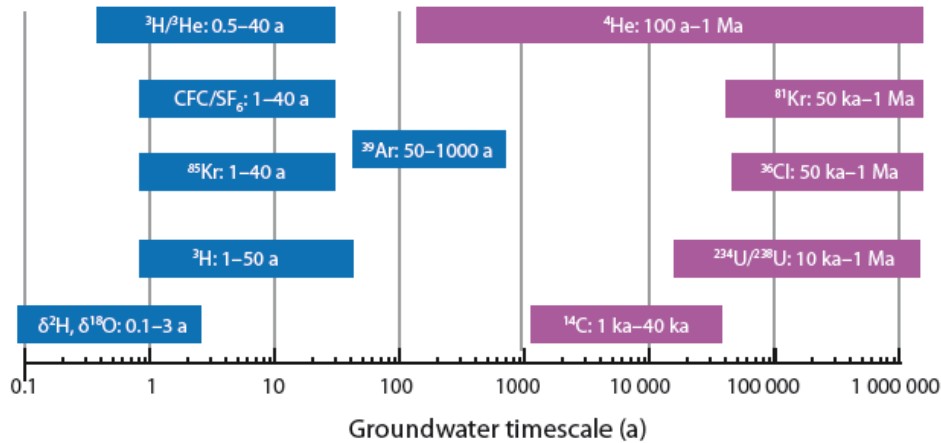


FIGURE 2.20: Traceurs isotopiques et chimiques utilisés pour l'estimation de l'âge des eaux souterraines (IAEA, 2013).

de différents traceurs est couplée à l'utilisation de différents modèles de mélanges. Les quatre modèles les plus couramment utilisés sont les modèles “piston-flow”, “exponential piston-flow”, “exponential mixing” et “binary mixing” (figure 2.21). Le modèle “piston-flow” correspond à de l'eau transférée depuis le point de recharge jusqu'au point de prélèvement sans mélange, sans dispersion et sans diffusion. Le modèle “exponential mixing” peut être utilisé pour décrire l'écoulement d'une nappe libre recevant une recharge uniforme. Le modèle “exponential piston-flow” correspond à la situation où l'aquifère reçoit une recharge distribuée au niveau d'une nappe libre et continue qui est transférée ensuite dans une nappe captive. Le modèle “binary mixing” correspond à un mélange entre deux masses d'eau d'âges différents. Dans cette étude, les modèles et le logiciel proposés par l'USGS (Jurgens et al., 2012) sont utilisés.

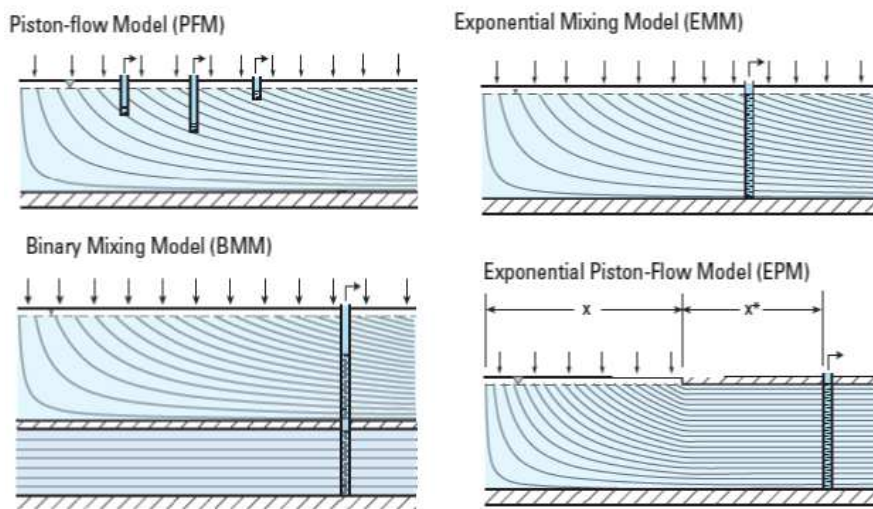


FIGURE 2.21: Exemples de modèles de mélange utilisés pour la datation des eaux souterraines (Jurgens et al. 2012).

### **CFC, SF<sub>6</sub>**

Les CFCs (Chlorofluorocarbones) et le SF<sub>6</sub> (Hexafluorure de soufre) sont utilisés pour estimer l'âge apparent des eaux souterraines jeunes (moins de 50 ans). Trois types de CFCs sont utilisés dans le cadre des datations : CFC-11 (CFCl<sub>3</sub>), CFC-12 (CF<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>) et CFC-113 (C<sub>2</sub>F<sub>3</sub>Cl<sub>3</sub>). Dans cette étude, seules les concentrations en CFC-12 sont mesurées.

Les CFCs et le SF<sub>6</sub> sont des gaz d'origine anthropique présents dans l'atmosphère depuis une cinquantaine d'années. Les CFCs sont des composants volatiles synthétiques qui étaient principalement utilisés comme réfrigérant ou gaz propulseur. Le SF<sub>6</sub> est intensivement utilisé dans l'industrie électronique comme isolant électrique dans les commutateurs et les transformateurs à haute tension (Maiss & Brenninkmeijer, 1998; Busenberg & Plummer, 2000). Les CFCs et le SF<sub>6</sub> sont présents dans l'atmosphère depuis les années 1950 et sont connus pour leurs effets négatifs sur la couche d'ozone (Molina & Rowland, 1974) et sur le réchauffement climatique. Depuis les années 1990, les concentrations en CFCs dans l'atmosphère diminuent en raison des restrictions sur leur utilisation conformément au protocole de Montréal (1987) (figure 2.22). Les rapports de mélange en SF<sub>6</sub> atmosphérique augmentent de 0,6 pptv depuis le milieu du 20<sup>e</sup> siècle à plus de 7 pptv en 2013, et vont continuer à augmenter au cours du 21<sup>e</sup> siècle (figure 2.22). Les concentrations atmosphériques sont mesurées par un réseau géré par Climate Monitoring and Diagnostics Laboratory du National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA) (IAEA, 2006). Avant 1976, les concentrations en CFCs ont été reconstituées à partir de données de production et de valeurs fournies par le NOAA (IAEA, 2006).

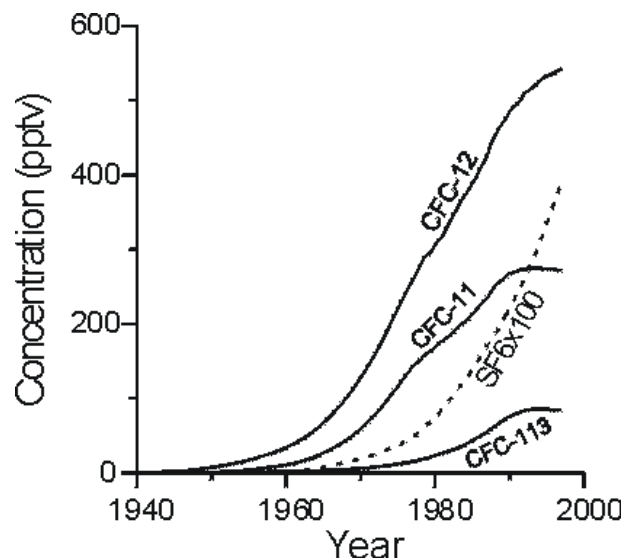


FIGURE 2.22: Concentrations atmosphériques en CFCs et SF<sub>6</sub> en Amérique du Nord (Cook and Herczeg, 1999).

La datation des eaux souterraines à partir des mesures CFCs et SF<sub>6</sub> dans les eaux souterraines se base sur l'approche suivante : les eaux d'infiltration transitent dans la zone non saturée, elles s'équilibrent avec l'atmosphère située dans la zone non saturée. Lors du passage des eaux d'infiltration dans la zone saturée, celles-ci sont isolées de l'atmosphère et de l'air contenu

dans la zone non saturée. Les concentrations en CFCs et SF<sub>6</sub> de l'atmosphère varient au cours du temps, ainsi la comparaison des concentrations des eaux souterraines et des chroniques atmosphériques permet de définir l'âge apparent des eaux souterraines. Ainsi, les concentrations de gaz dissous dans l'eau dépendent de la concentration dans l'air de la zone non saturée, lors de leur infiltration, qui est supposée égale à celle de l'atmosphère si l'épaisseur de zone non saturée n'est pas trop importante, de la température de l'eau, de la salinité et de l'altitude. La solubilité des CFCs et SF<sub>6</sub> en fonction de la température, de la pression et de la salinité est bien connue (Warner & Weiss, 1985; Bu & Warner, 1995). La concentration du gaz dans l'eau est ainsi convertie en une concentration dans l'atmosphère et comparée ensuite aux chroniques atmosphériques pour déterminer le temps de séjour de l'eau.

Certains processus peuvent rendre inexacts les âges calculés. Les principaux processus sont la contamination, l'excès d'air et l'impact de la zone non saturée. Des contaminations des eaux souterraines en CFCs et SF<sub>6</sub> peuvent avoir lieu dans certaines zones industrielles et résidentielles (Busenberg & Plummer, 2000). L'excès d'air correspond à la part de gaz dissous supplémentaire par rapport à l'équilibration entre les pluies et l'atmosphère liée aux bulles d'air piégées dans le sol ou la roche lors de l'infiltration d'eau. Ces bulles de gaz sont entraînées par l'eau puis se dissolvent sous l'effet de la pression entraînant une augmentation de la concentration en CFCs et SF<sub>6</sub> dissous (Gooddy et al., 2006). Ce phénomène peut être accentué par une recharge rapide accompagnée d'une remontée rapide du toit de la nappe (Plummer et al., 2001), phénomène particulièrement présent en milieu karstique. La zone non saturée peut induire un décalage temporel lié au temps de diffusion des CFCs et SF<sub>6</sub> sous forme gazeuse à travers la zone non saturée. Ce décalage dépend du coefficient de diffusion, de la solubilité du traceur dans l'eau et du contenu en eau de la zone non saturée (Cook & Solomon, 1997).

### *Tritium/Hélium*

La méthode de datation tritium/hélium repose sur la décroissance radioactive du tritium en hélium triogénique par la réaction suivante :



Dans la zone non saturée, l'<sup>3</sup>He triogénique (généralisé par la décroissance du <sup>3</sup>H) peut être transféré vers l'atmosphère. Lorsque l'eau souterraine atteint la zone saturée, l'hélium produit ne peut plus être évacué. La concentration en hélium triogénique augmente avec le temps de résidence de l'eau dans la zone saturée. Connaissant la concentration en <sup>3</sup>He triogénique et en <sup>3</sup>H de l'échantillon d'eau souterraine, le temps de résidence apparent de l'eau peut être calculé par la formule :

$$\tau = \lambda^{-1} \ln\left(1 + \frac{{}^3\text{He}_{\text{tri}}}{{}^3\text{H}}\right) \quad (2.19)$$

où  $\tau$  est le temps de résidence de l'eau dans la zone saturée,  $\lambda$  est la constante de décroissance du tritium,  ${}^3\text{H}$  est la concentration en tritium mesurée et  ${}^3\text{He}_{\text{tri}}$  la concentration en hélium triogénique.

D'autres sources d'hélium autre que la décroissance radioactive du  ${}^3\text{H}$  existent. Une partie de la concentration en hélium présent dans l'échantillon provient de l'équilibre de l'eau de pluie avec l'atmosphère, de la décroissance des séries de l'uranium ou du thorium (production radiogénique) et d'un possible excès d'air (Cook & Solomon, 1997). Ces différentes sources sont identifiées à partir de la mesure des concentrations en  ${}^4\text{He}$  et d'autres gaz rares (par exemple, le  ${}^{20}\text{Ne}$ ) et de la température de recharge. Leur somme est soustraite de l' ${}^3\text{He}$  mesuré dans l'échantillon afin d'obtenir les concentrations en  ${}^3\text{He}$  triogénique.

### ***${}^{85}\text{Kr}$ - ${}^{39}\text{Ar}$***

Les datations  ${}^{85}\text{Kr}$  et  ${}^{39}\text{Ar}$ , à la différence des autres traceurs, sont basées sur la mesure de ratios ( ${}^{85}\text{Kr}/\text{Kr}$ ,  ${}^{39}\text{Ar}/\text{Ar}$ ). L'intérêt principal de cette méthode est que les ratios sont insensibles aux processus de solubilisation de ces gaz lors de la recharge. Ainsi, ces deux méthodes de datation ne nécessitent pas de connaissances sur les températures de recharge et d'excès d'air (Althaus et al., 2009). De plus, il s'agit de gaz rares, qui sont chimiquement inertes et ne sont pas dégradés au cours de leurs transferts dans l'aquifère.

La demi-vie du  ${}^{85}\text{Kr}$  est de 10,76 ans. Le ratio  ${}^{85}\text{Kr}/\text{Kr}$  permet de dater des eaux ayant des temps de résidence compris entre 5 et 50 ans (Althaus et al., 2009). Le  ${}^{85}\text{Kr}$  est principalement émis par les usines de retraitement du combustible nucléaire. L'activité  ${}^{85}\text{Kr}$  de l'atmosphère augmente régulièrement depuis les 45 dernières années (Weiss et al., 1989).

La demi-vie de l' ${}^{39}\text{Ar}$  est de 269 ans et permet de dater des eaux d'âges comprises entre 50 et 1000 ans. L' ${}^{39}\text{Ar}$  est produit par l'interaction de raies cosmiques avec les nucléides du potassium et de l'argon dans l'atmosphère. L'activité du  ${}^{39}\text{Ar}$  dans l'atmosphère est constante et égale à  $1,67 \cdot 10^{-2} \text{ Bq/m}^3$  (Loosli, 1983). Le temps de résidence calculé par cette méthode pourrait être surestimé en raison de la production d' ${}^{39}\text{Ar}$  à la surface du sol par activation neutronique du potassium (Sultenfub et al., 2010).

### ***Le radon***

Le radon-222 est l'isotope du radon le plus abondant dans l'atmosphère, il est produit par désintégration radioactive du radium-226. Le radon est un traceur naturel particulièrement bien adapté à l'étude des aquifères karstiques car sa demi-vie (3,8 jours) correspond à l'ordre de grandeur des écoulements rapides (Batiot-Guilhe et al., 2007; Adinolfi et al., 2008; Savoy et al., 2011). Le radon est un gaz rare, il est inerte et soluble dans l'eau, ainsi son transport n'est pas influencé par l'environnement chimique.

La concentration du radon dans l'eau souterraine est contrôlée par :

- les caractéristiques lithologiques de la roche encaissante (concentration en uranium et en radium, porosité et densité),
- le temps de résidence de l'eau dans l'aquifère.

Le radon est un bon indicateur des phénomènes qui affectent l'eau dans un aquifère carbonaté. Par exemple, la différence importante de la concentration en radon entre les eaux de surface ou de pluie (très faible) et les eaux souterraines peut permettre de souligner des phénomènes de recharge rapide (Adinolfi et al., 2008). A contrario, une augmentation de la concentration en radon lors d'un pic de crue peut souligner la participation d'eau stockée dans le sol ou dans l'épikarst (Savoy et al., 2011).

Dans certains aquifères karstiques, des concentrations élevées en radon peuvent être mesurées. Elles sont associées à la présence de "terra rosa" qui est un type de paléosol. Il s'agit d'un résidu de la dissolution des carbonates qui peut être répandu dans les fissures et les cavités d'un aquifère karstique. La "terra rosa" contient une teneur élevée en argiles (80-95%) et son activité spécifique en  $^{226}\text{Ra}$  (70-147 Bq/kg) est considérablement supérieure à celle du calcaire (50 bq/kg) (Spizzico, 2005).

### 2.3.2.6 Méthodes de décomposition d'hydrogramme de crue

La décomposition d'hydrogramme de crue à partir de la géochimie de l'eau souterraine permet de déterminer la proportion des différentes masses d'eau composant un pic de crue. Cette approche repose sur deux lois de conservation de masse, le flux d'eau souterraine et la concentration d'un élément chimique conservatif tel que les isotopes stables de l'eau, le tritium ou le chlorure.

En supposant un modèle à deux composantes, A et B, de composition géochimique différente,  $C_A$  et  $C_B$ . Deux équations de conservation de masse peuvent être écrites :

$$Q_{source} = Q_A + Q_B \quad (2.20)$$

$$C_{Source}Q_{source} = C_AQ_A + C_BQ_B \quad (2.21)$$

où  $Q_{source}$  et  $C_{source}$  correspondent au débit et à la concentration de la source,  $Q_A$  et  $Q_B$  le débit de chaque masse d'eau considérée.

A partir des équations 2.20 et 2.21, les contributions relatives des masses d'eau A et B peuvent être déterminées à chaque pas de temps d'échantillonnage connaissant  $Q_{source}$ ,  $C_{source}$ ,  $C_A$  et  $C_B$  par l'équation suivante :

$$\frac{Q_B}{Q_{source}} = \frac{C_{source} - C_A}{C_B - C_A} \quad (2.22)$$



# 3

## **Etude de l'aquifère karstique par traitement du signal de données hydrodynamiques (pluie-débit-piézométrie)**



L'objectif de ce chapitre est de caractériser le fonctionnement de l'aquifère karstique par l'utilisation de méthodes de traitement du signal (analyses corrélatoires et spectrales) appliquées à des chroniques hydrodynamiques (pluie, débit, piézométrie). Cette approche est classiquement utilisée dans les systèmes karstiques et a été développée par [Mangin \(1975\)](#). Dans cette approche, le système karstique est considéré comme un filtre qui modifie un signal d'entrée en un signal de sortie. Les relations qui relient ces deux signaux sont caractéristiques du filtre ou du système karstique et fournissent des informations sur le fonctionnement et la structure de celui-ci. Les méthodes de traitement du signal sont principalement appliquées entre un signal d'entrée, la pluie et un signal de sortie, le débit. Cette approche fournit des informations sur l'aquifère karstique dans sa globalité. L'application de telles méthodes sur des chroniques piézométriques, chroniques intermédiaires, permet d'obtenir des informations sur le fonctionnement du système à différents endroits de l'aquifère. Cette approche est particulièrement adaptée dans notre cas d'étude, en raison de la forte densité de piézomètres sur le site d'étude et pourrait mettre en évidence la présence d'une organisation spatiale des écoulements au sein de l'aquifère.

Ce chapitre s'organise en 5 parties. La première partie consiste à analyser les précipitations qui correspondent au signal d'entrée des analyses corrélatoires et spectrales. La seconde partie présente les chroniques débitométriques et piézométriques et apporte un regard critique sur la qualité de celles-ci en vue d'être traitées par analyses corrélatoires et spectrales. Dans une troisième partie, diverses méthodes de traitement du signal sont appliquées sur des séries temporelles plus ou moins longues (pluri-annuelles, annuelles), afin d'en extraire un maximum d'informations sur le fonctionnement du système karstique (vitesses d'écoulement, stockage). Ensuite, les résultats obtenus sont resitués dans l'espace afin d'étudier l'organisation spatiale des écoulements. Dans un dernier temps, nous nous intéressons à la variabilité temporelle du fonctionnement de l'aquifère karstique et notamment à la forme de la réponse impulsionnelle grâce à l'utilisation du corrélogramme croisé coulissant.

### 3.1 Caractérisation du forçage d'entrée du système : la pluviométrie

Une connaissance approfondie de la chronique d'entrée est indispensable pour une bonne interprétation des résultats obtenus.

La chronique pluviométrique utilisée dans la suite de l'étude est fournie par MétéoFrance à la station de Saint Martin du Mont sur la période 2007-2012, soit 5 cycles hydrologiques (octobre-septembre), à pas de temps horaire (figure 3.1). Durant ces 5 cycles hydrologiques, les pluies cumulées varient peu avec une moyenne de 895 mm et un écart-type de 69 mm (figure 3.2). Le cycle hydrologique le moins pluvieux est celui d'octobre 2010 à octobre 2011, avec 796 mm, soit 15 % de moins que la moyenne annuelle calculée sur les 20 dernières années. Le cycle hydrologique le plus pluvieux est celui de 2011-2012 avec 964 mm. Cet excès s'explique par de très fortes précipitations pendant les mois de décembre, janvier et mai (figure 3.2).

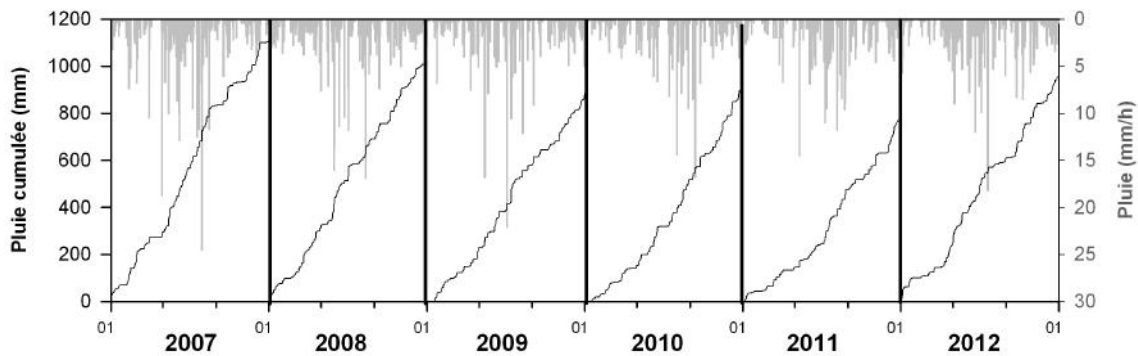


FIGURE 3.1: Pluie horaire (histogramme gris) et précipitations cumulées par année (courbe noire).

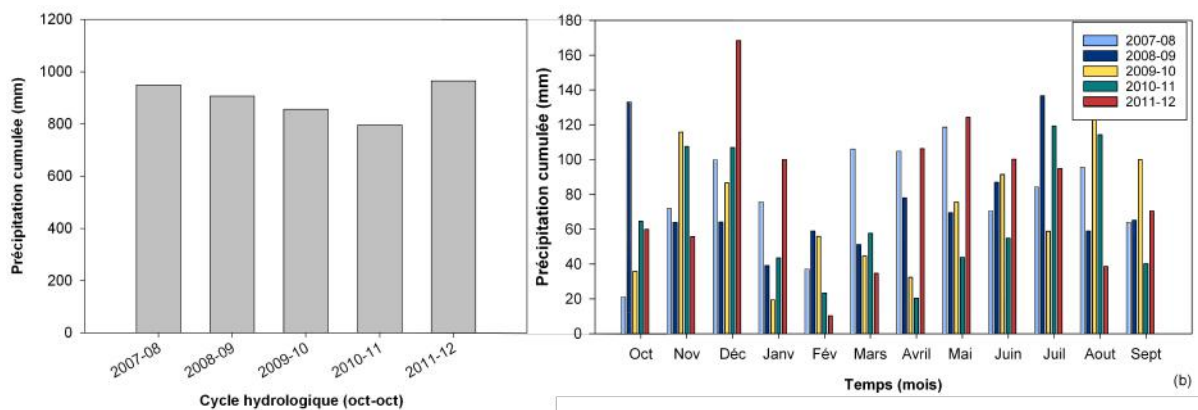


FIGURE 3.2: Précipitations annuelle par cycle hydrologique (a) et précipitations mensuelles par cycle hydrologique (b).

La moyenne mensuelle de l'intensité de la pluie, en mm/h, définie comme la moyenne de toutes les pluies horaires quand les précipitations sont non nulles, varie saisonnièrement (figure 3.3) avec des intensités moyennes plus fortes en été et un nombre d'heure de pluie effective (différent de zéro) plus faible.

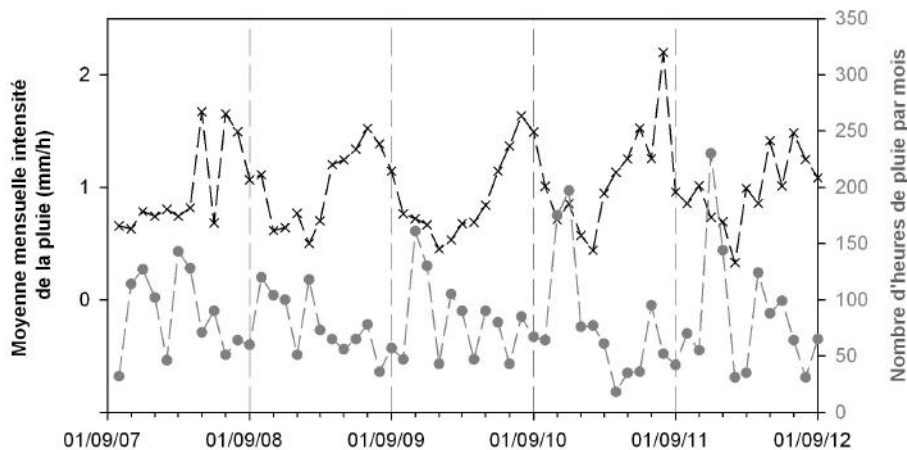


FIGURE 3.3: Moyenne mensuelle de l'intensité des précipitations (figuré croix) et nombre d'heures de pluie par mois (figuré point).

La fonction d'autocorrélation de la pluie a été étudiée à l'échelle pluri-annuelle et à l'échelle d'un cycle hydrologique (figure 3.4). Dans ces différents cas, la fonction d'autocorrélation est proche d'une fonction dirac avec un effet mémoire inférieur à 3 h (l'effet mémoire correspond au temps pour que l'autocorrélation  $r_{xx}(k)$  soit égale à 0,2). Le forçage d'entrée, la pluviométrie, peut être considéré comme aléatoire à ces échelles de temps. On peut noter qu'à l'échelle d'un cycle hydrologique, le signal de la fonction d'autocorrélation est moins bruité que sur 5 cycles, mais reste proche de zéro. La fonction de densité spectrale de la pluie ne révèle pas de composante cyclique (figure 3.5).

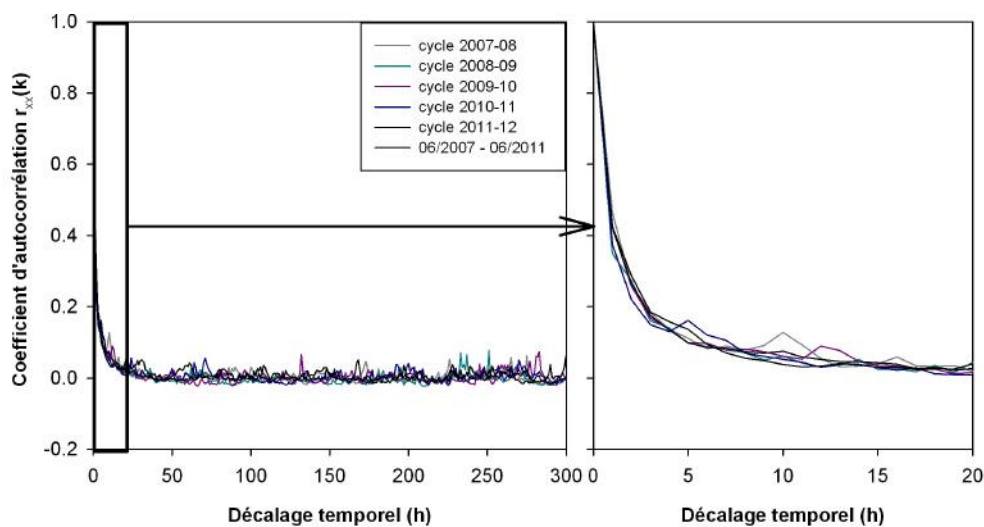


FIGURE 3.4: Fonctions d'autocorrélation de la pluie sur la période du 16/06/2007 au 15/06/2011 et sur cinq cycles hydrologiques compris entre oct 2007 et sept 2012.

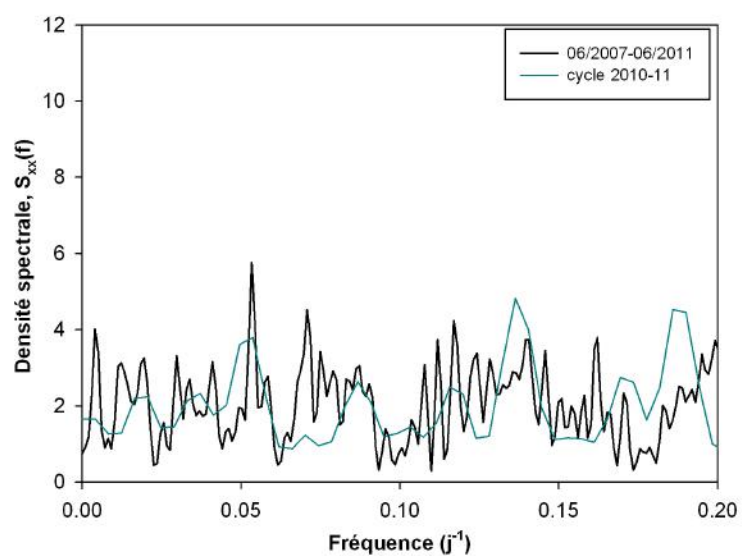


FIGURE 3.5: Fonctions de densité spectrale de la pluie à pas journalier sur la période du 16/06/2007 au 15/06/2011 et sur le cycle hydrologique 2010-2011.

## 3.2 Présentation des chroniques piézométriques et débitométriques - critique de la qualité des données

### 3.2.1 Présentation des chroniques piézométriques et débitométriques

#### 3.2.1.1 Les forages de la nappe supérieure

Les chroniques piézométriques des 18 forages de la nappe supérieure enregistrées à pas de temps horaire sont présentées sur la figure 3.6.

La majorité des piézomètres sont très réactifs avec des augmentations du niveau piézométrique après chaque séquence pluvieuse été comme hiver. L'amplitude des variations du niveau piézométrique en réponse aux événements pluvieux varie selon les forages. Par exemple, sur le cycle hydrologique 2010-2011, l'amplitude varie de 40 cm pour le forage C4 à 24 m pour le forage S3 avec une moyenne de 4,34 m et un écart-type de 5,8 m (tableau 3.1). Cette variabilité traduit l'hétérogénéité de la porosité et de la perméabilité du milieu.

TABLEAU 3.1: Amplitude des variations du niveau piézométrique pour les forages de la nappe supérieure, cycle 2010-2011.

Piézomètre	Amplitude de la variation du niveau piézométrique (m)
A1	2,5
B4	7,1
C1	2,9
C3	1,8
C2	2,9
C4	0,4
D1	2,3
D13	5,0
D35	4,0
F7	3,5
S3	24,1
S5	2,6
B5D	0,9
A4D	0,3
B1	4,8

Certains comportements plus spécifiques sont visibles sur les chroniques, ils illustrent le comportement karstique de l'aquifère étudié :

- le niveau piézométrique du forage D13 diminue fortement et lentement lors des périodes sèches, jusqu'à 1,40 m, pouvant traduire la vidange d'un réservoir karstique,

- le piézomètre S5 est très inertiel. Ce comportement pourrait illustrer le fait que ce forage ne recoupe pas de conduits karstiques connectés à la surface, il est alors essentiellement soumis aux transferts plus lents (fracture, matrice),

- le niveau piézométrique du forage C3 varie de façon anecdotique, environ 1 fois par an. Lors de ces pics de crue, la montée de crue et la récession sont extrêmement rapides. Ce phénomène peut traduire la mise en charge de nouveaux conduits karstiques à partir d'une certaine saturation ou un certain niveau piézométrique (effet de seuil) et illustrer le caractère non linéaire des systèmes karstiques.

Des changements de comportement sont visibles pour les piézomètres B3 et A3 (figure 3.6). Ces changements apparaissent, respectivement à la suite du sur-forage et du forage d'un nouveau piézomètre à proximité. Les diminutions brutales des niveaux piézométriques des forages F7, C2, S5, B4 sont liées aux pompages d'eau souterraine par les échantillonnages. Lors de l'utilisation de ces chroniques dans le cadre des analyses corrélatoires et spectrales, les diminutions du niveau piézométrique liées aux pompages ont été supprimées.

### 3.2.1.2 Les sources de la nappe supérieure

Trois sources pérennes, R08, R14 et R24 sont équipées de sondes de mesure en continu (figure 3.6). Ces sources sont réactives, avec des nombreux pics de crue au cours de l'année.

La source R14 est très réactive avec des variations de débit en réponse aux événements pluvieux tout au long de l'année, y compris en été, même lors d'événements pluvieux de faible intensité.

D'après la chronique de débits de la source R24, le débit augmente seulement lors des événements pluvieux importants. Le débit de cette source est mesuré à l'aide d'un déversoir triangulaire en contreplaqué enfoncé directement dans le lit de la rivière créée par la source. Les contacts entre la planche de contreplaqué et les flancs de la source ne sont pas totalement étanches (des fuites sont possibles sur les côtés, ainsi que dessous), expliquant le très faible débit mesuré lors de période d'étiage et l'absence de variation de celui-ci lors d'événements pluvieux de faible intensité.

### 3.2.1.3 La rivière, la Douix de Léry.

Le débit de la rivière Douix de Léry est mesuré à Frénois. La rivière est alimentée par les sources de la nappe supérieure et inférieure situées sur le bassin versant. Le débit de la rivière augmente de façon significative durant les périodes de pluies importantes, principalement entre novembre et février. Le débit passe de  $0,2 \text{ m}^3/\text{s}$  à des débits jusqu'à 45 fois plus grand ( $9 \text{ m}^3/\text{s}$ ) (période de mesures : 09/2010-03/2013).

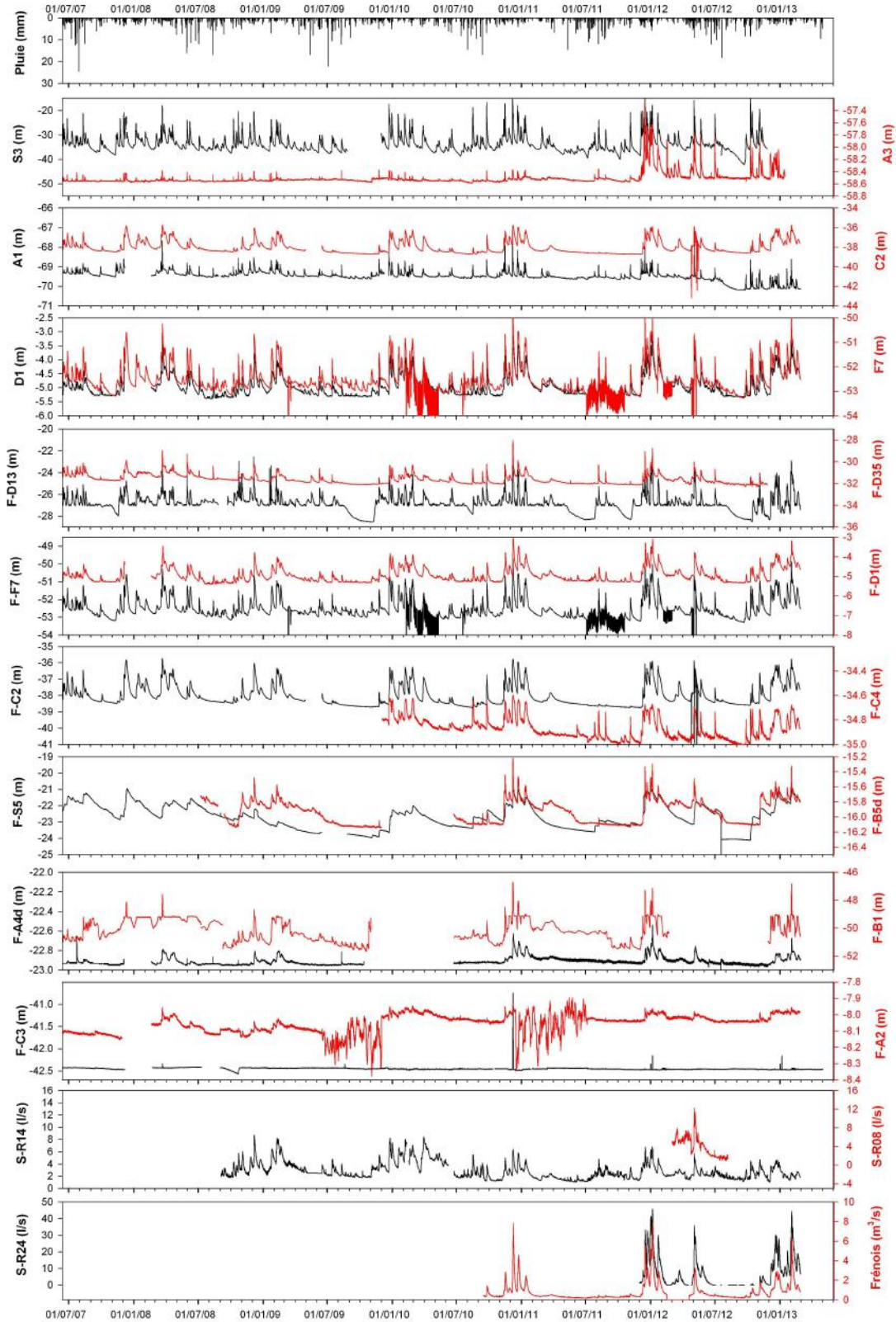


FIGURE 3.6: Chroniques pluviométriques, piézométriques et débitimétriques de la nappe supérieure. Les fortes diminutions du niveau piézométrique, au niveau des forages F7, C4, S5 et C2 sont liées à des pompages effectués ponctuellement (F- correspond au forage, S- correspond au source).

*Les chroniques piézométriques et débitométriques des sources de la nappe supérieure soulignent le caractère karstique du système. La forte réactivité aux événements pluvieux des niveaux piézométriques caractérisant la majorité des forages et sources tout au long de l'année met en évidence la présence de transferts rapides, peu impactés par l'évapotranspiration. L'hétérogénéité des réponses (variation de l'amplitude des pics de crue, variabilité de l'inertie) est l'image de l'hétérogénéité de la perméabilité et de la porosité au sein de l'aquifère avec des zones plus ou moins fracturées, soulignant le caractère karstique de cet aquifère. De plus, certains forages ont des comportements hydrogéologiques atypiques (piézomètre C3-D13) mettant en évidence la présence de réservoirs karstiques (piézomètre C3-D13).*

### 3.2.2 Qualité des chroniques : quel est l'impact des lacunes sur les fonctions d'autocorrélation et de corrélation croisée ?

Les chroniques piézométriques et débitométriques acquises sur le terrain sont pour la plupart discontinues (panne de matériel). La suite de l'étude des chroniques piézométriques et débitométriques repose sur l'analyse de celles-ci avec des méthodes de traitement du signal. Ces méthodes exigent des chroniques de bonne qualité, suffisamment longues pour être représentatives et sans lacune. Afin de pouvoir traiter ces chroniques, nous avons testé l'influence de lacunes (taille et position dans le cycle hydrologique) sur les résultats d'analyses corrélatoires (autocorrélation-corrélation croisée).

#### 3.2.2.1 Principe

L'approche consiste à introduire une lacune de taille variable, allant d'une journée (soit 0,07 % de la chronique) à 10 mois (soit 24 % de la chronique). La lacune introduite est comblée en reliant les deux parties de la chronique par une droite, méthode permettant de ne pas introduire de périodicité dans le signal. L'étude est réalisée sur la chronique la plus complète, celle du niveau piézométrique du forage D35 (période 06/2007-11/2010). Deux tests ont été réalisés, l'un où la lacune commence en mars 2009 et l'autre en décembre 2009. Ensuite, les corrélations simples de la piézométrie et les corrélations croisées entre pluie et piézométrie ont été calculées et comparées.

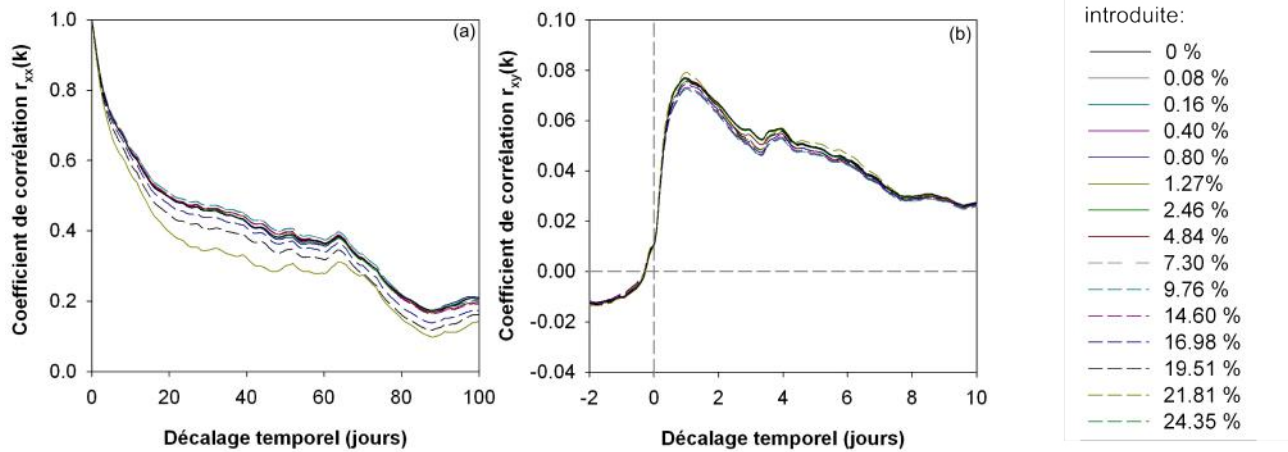
#### 3.2.2.2 Résultats

##### *L'autocorrélation*

L'impact des lacunes dans les chroniques sur les fonctions d'autocorrélation et notamment sur l'effet mémoire calculé par la méthode de [Mangin \(1984\)](#), est non négligeable.



Test 1 : Lacunes de tailles variables en mars



Test 2 : Lacunes de tailles variables en décembre

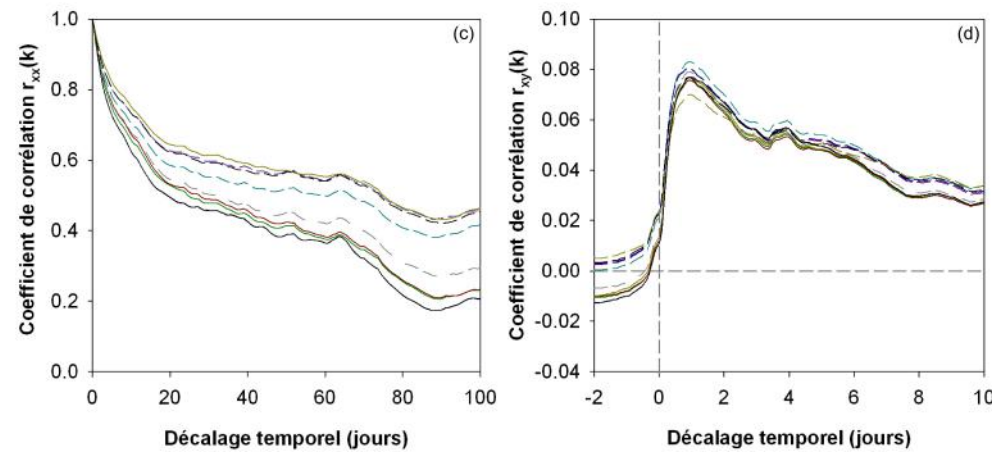


FIGURE 3.7: Fonctions d'autocorrélation du niveau piézométrique (a,c) et corrélation croisée pluie-niveau piézométrique (b,d) selon la taille des lacunes introduites.

Les résultats obtenus (figure 3.7 a et c) mettent en évidence qu'à partir d'une certaine taille de lacunes, les fonctions d'autocorrélation sont significativement différentes de la fonction d'autocorrélation témoin (aucune lacune). Ainsi, pour le premier test (lacune au mois de mars), les fonctions d'autocorrélation ne sont pas significativement différentes si les lacunes sont inférieures à 3 mois (soit environ 7 % de la chronique). Pour le second test, cette valeur est réduite à 1 mois soit 2,46 % de la chronique. L'effet mémoire est fortement impacté par la présence de lacunes. Dans le second test, l'effet mémoire calculé à partir de la chronique possédant une lacune de 3 mois est supérieur à celui de la chronique témoin, avec une différence de 13 heures. La présence d'une lacune au mois de décembre modifie de façon plus importante la fonction d'autocorrélation qu'une lacune introduite au mois de mars (figure 3.7 a et c). Ceci s'explique par la fréquence des événements piézométriques, plus importante en décembre (période de recharge).

**La corrélation croisée**

Pour les fonctions de corrélation croisée, l'impact des lacunes est plus faible (figure 3.7 b et d). La forme des fonctions de corrélation croisée varie peu et le temps de réponse est constant

pour des lacunes inférieures à 6 mois pour le test 1 et inférieures à 4 mois pour le test 2. Les coefficients de corrélation calculés pour chaque fonction de corrélation croisée varient peu pour des lacunes inférieures à 3 mois.

Les tests réalisés démontrent que la présence de lacunes dans les chroniques brutes a un impact plus important sur la forme des autocorrélogrammes que sur les corrélogrammes croisés. La localisation temporelle de la lacune a une importance. La présence de lacunes lors des périodes à forte densité de pics de crue induit une plus grande erreur, expliquée par une plus grande perte d'informations par rapport à la chronique témoin.

Les valeurs obtenues par cette étude ne peuvent être interpolées directement sur d'autres sites d'étude. En effet, nous avons montré que l'impact des lacunes varie significativement selon la fréquence des pics de crue dans les chroniques, très dépendante du site étudié.

*Des tests ont montré que des lacunes inférieures à 3 % de la chronique totale ne modifient pas significativement les fonctions d'autocorrélations et que des lacunes inférieures à 7 % de la chronique totale peuvent être négligées pour calculer les fonctions de corrélation croisée. Ainsi, dans la suite de l'étude, les lacunes non significatives seront remplacées par des droites pour ne pas apporter d'information supplémentaire dans le signal.*

### 3.3 Apports des méthodes de traitement du signal de chroniques hydrodynamiques

#### 3.3.1 Principe

Dans cette partie, on propose d'approcher les fonctions de transfert entre le signal de pluie et les signaux piézométriques par différentes méthodes de traitement du signal (figure 3.8).

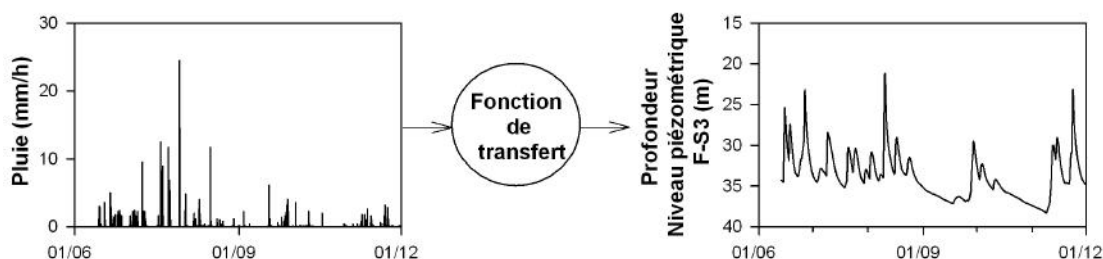


FIGURE 3.8: Schéma du principe des méthodes de traitement du signal appliquées à l'hydrodynamique : la chronique de pluie, est transformée en une chronique de piézométrique, par une fonction de transfert que les méthodes de traitement du signal essaye d'approcher. La fonction de transfert représente le système karstique.

Un niveau piézométrique n'est pas une chronique de sortie du système karstique comme le débit, mais un intermédiaire entre l'entrée et la sortie. L'étude des fonctions de transfert des différents piézomètres permet de comparer les réponses à un même forçage, qui par la suite pourra être remis dans un contexte spatial.

Une forte densité de piézomètres (16 piézomètres se répartissant sur une surface restreinte de 13 km<sup>2</sup>) permet une étude spatiale fine de la réponse impulsionnelle. Cette faible superficie permet de considérer le signal d'entrée (la pluviométrie) comme identique sur l'ensemble du site. Une variabilité de la fonction de transfert est dans ce cas l'image d'une variabilité des processus hydrogéologiques.

Il est nécessaire d'étudier un maximum de piézomètres sur une période commune suffisamment longue (au minimum 1 cycle hydrologique) pour obtenir une bonne estimation et représentativité des fonctions de transfert.

Au vu des chroniques piézométriques acquises sur le terrain (figure 3.6), de leurs longueurs, des lacunes (tableau 3.2), deux périodes ont été retenues :

- une période longue représentative du fonctionnement moyen du système : période A, 16/06/2007 au 15/06/2011, sur laquelle 9 chroniques piézométriques sont exploitables (A1, C2, D1, D13, D35, F7, S3, S5 et A3),

-une période courte (un cycle hydrologique) : période B, 10/2010-09/2011, sur laquelle 14 chroniques piézométriques (A1, C2, D1, D13, D35, F7, S3, S5, A3, A4D, B4, B5D, C1, C4) et une chronique débitmétrique sont exploitables afin d'étudier la fonction de transfert d'un plus grand nombre de sites.

TABLEAU 3.2: Qualité des chroniques : pourcentage de données manquantes sur les périodes A et B

Piézomètre	Période A	Période B
	Proportion de lacunes (%)	Proportion de lacunes (%)
A1	6,6	0,0
C2	3,9	0,4
D1	5,2	0,0
D13	1,9	0,0
D35	0,4	0,0
F7	2,4	0,1
S3	6,6	0,0
S5	4,9	0,0
A3	0,1	0,1
A4D	22,8	0,0
B4	55,1	0,1
B5D	42,0	0,4
C1	32,4	0
C4	61,9	0,6

### 3.3.2 Résultats

Dans cette partie, nous appliquons les différentes méthodes de traitement du signal présentées dans la partie “ matériel et méthodes ” telles que les fonctions d'autocorrélation, de densité spectrale, de corrélation croisée, de gain et de cohérence, sur les deux périodes présentées précédemment, période A (période longue) et période B (période courte), sur les chroniques pluviométries, piézométries et de débits mesurées à pas de temps horaire.

#### 3.3.2.1 Les fonctions d'autocorrélation

La fonction d'autocorrélation,  $C_{xx}(k)$ , permet de décrire le degré de dépendance dans le temps des valeurs d'une série de données, elle souligne la mémoire du système. Plus la fonction d'autocorrélation décroît lentement, plus le système est inertiel.

Les fonctions d'autocorrélation des niveaux piézométriques et des débits ont été calculées pour les périodes A et B, et sont présentées sur la figure 3.9.

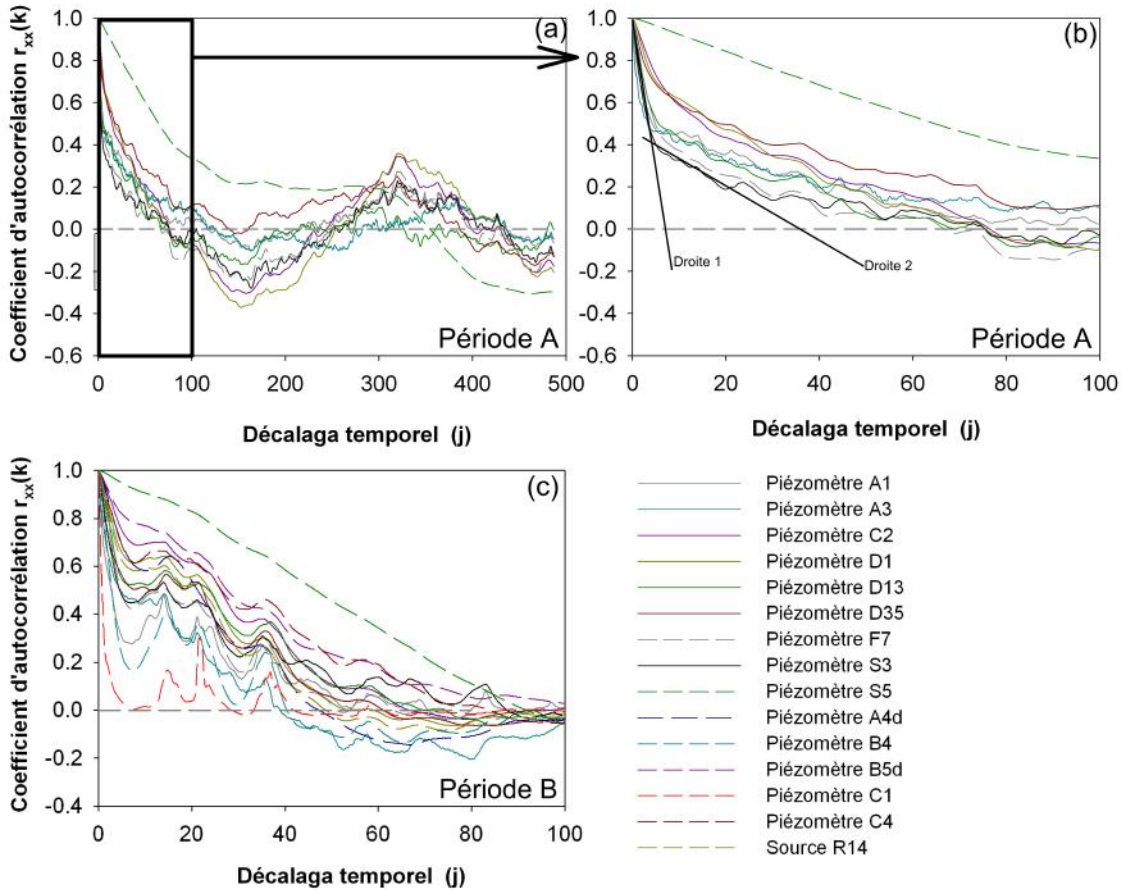


FIGURE 3.9: Fonctions d'autocorrélation des niveaux piézométriques et des débits sur les périodes A (a et b) et B (c). Les calculs sont effectués avec un décalage temporel d'une heure. Sur la figure b, les pentes interpolées sur la fonction d'autocorrélation du piézomètre S3 illustrent la méthode utilisée pour "quantifier" l'inertie des différents piézomètres. La droite 1 traduit l'inertie des écoulements rapides, la droite 2 l'inertie des écoulements plus lents ou de base.

Pour la période A, la forme des fonctions d'autocorrélation, dont le coefficient de corrélation reste significatif pour des décalages temporels importants met en évidence une dépendance des valeurs piézométriques entre elles. Ce phénomène n'est pas observé dans l'analyse des pluies (figure 3.4), elle est induite par l'aquifère. La forme des fonctions d'autocorrélation varie selon les sites étudiés, traduisant l'hétérogénéité du système karstique. On note que le piézomètre S5 est très inertiel.

Les 9 forages, étudiés sur la période A, peuvent être séparés en fonction de leur inertie en trois catégories :

- type "très inertiel" : piézomètre S5,
- type "inertie intermédiaire" : piézomètres C2-D35-D1,
- type "inertie faible" : piézomètres A1-D13-F7-S3.

Sur la période A, la fonction d'autocorrélation peut se décomposer en 2 droites pour les piézomètres "peu inertiels" et "intermédiaires" (figure 3.9). Ces deux droites soulignent la dualité du karst avec une part de transfert rapide, par les fractures et les conduits karstiques et une part de transfert plus lent, par les vides de plus petites tailles.

Pour la période B, les fonctions d'autocorrélation sont très altérées par un bruit de fond expliqué par la faible longueur des chroniques, qui induit une périodicité des évènements pluvieux, rendant difficile la comparaison des fonctions.

Classiquement en hydrologie karstique, l'inertie du système est quantifiée soit par l'effet mémoire défini par Mangin (1984) comme le décalage temporel pour que  $r_{xx}(k)$  soit égal à 0,2, soit par la méthode de calage d'une fonction logarithmique et la détermination d'un coefficient de décroissance proposée par Massei et al. (2006). En raison de la forme des fonctions d'autocorrélation (deux pentes distinctes), ces méthodes ne sont pas idéales. Pour quantifier l'inertie des transferts rapides et lents, nous proposons d'interpoler deux droites sur les fonctions d'autocorrélation (figure 3.9) et de déterminer la pente qui les caractérise pour chaque piézomètre (tableau 3.3). Ces pentes illustrent la vitesse avec laquelle la fonction d'autocorrélation décroît et peuvent être interprétées comme la vitesse à laquelle l'information est perdue. Les pentes ont été calculées pour la période A uniquement en raison du bruit de fond trop important sur la période B. La première droite correspond au transfert rapide, sa pente varie entre  $-2,22 \cdot 10^{-3} \text{ h}^{-1}$  pour le piézomètre C2 et  $-8,00 \cdot 10^{-3} \text{ h}^{-1}$  pour le piézomètre A3. La seconde droite correspond au transfert plus lent (écoulement de base). Les valeurs sont très proches pour l'ensemble des forages, comprises entre  $-3,20 \cdot 10^{-4} \text{ h}^{-1}$  pour le piézomètre A3 et  $-5,00 \cdot 10^{-4} \text{ h}^{-1}$  pour le piézomètre S3, soulignant une homogénéité des vitesses de l'écoulement du base.

TABLEAU 3.3: Quantification de l'inertie à partir des fonctions d'autocorrélation sur la période A. La première droite est relative aux écoulements rapides et la seconde aux écoulements plus lents.

Piézomètre	Pente de l'autocorrélation transfert rapide (1 <sup>ère</sup> droite) (h <sup>-1</sup> )	Pente de l'autocorrélation transfert "lent" (2 <sup>nde</sup> droite) (h <sup>-1</sup> )
A1	$-5,6 \cdot 10^{-3}$	$-3,3 \cdot 10^{-4}$
C2	$-2,2 \cdot 10^{-3}$	$-4,4 \cdot 10^{-4}$
D1	$-2,9 \cdot 10^{-3}$	$-4,6 \cdot 10^{-4}$
D13	$-4,4 \cdot 10^{-3}$	$-4,4 \cdot 10^{-4}$
D35	$-4,0 \cdot 10^{-3}$	$-4,0 \cdot 10^{-4}$
F7	$-5,4 \cdot 10^{-3}$	$-3,7 \cdot 10^{-4}$
S3	$-6,7 \cdot 10^{-3}$	$-5,0 \cdot 10^{-4}$
A3	$-8,0 \cdot 10^{-3}$	$-3,2 \cdot 10^{-4}$

*Les fonctions d'autocorrélation des chroniques piézométriques varient selon les piézomètres étudiés mettant en évidence une variabilité de l'inertie ce qui souligne l'hétérogénéité des processus de transfert et de stockage d'eau au sein de l'aquifère. Les fonctions d'autocorrélation se composent de 2 "droites" ce qui souligne la dualité du karst avec une part de transfert rapide, par les fractures et les karsts et une part de transfert plus lent, par les vides de plus petites tailles. La seconde pente de l'autocorrélation, peu variable selon les piézomètres, met en évidence une certaine homogénéité des écoulements lents au sein de l'aquifère.*

### 3.3.2.2 Les fonctions de densité spectrale

La fonction de densité spectrale,  $S_{xx}(f)$ , est la transformée de Fourier de la fonction d'autocorrélation. Elle permet de mettre en évidence la présence de composantes périodiques dans la chronique et de définir la fréquence de coupure. Cette dernière correspond à la fréquence au dessus de laquelle l'amplitude du spectre est nulle ou négligeable. La fréquence de coupure est déterminée graphiquement. Elle correspond à la fréquence au-delà de laquelle le signal ne contient plus d'information.

Les fonctions de densité spectrale des niveaux piézométriques et débimétriques ont été calculées pour les périodes A et B (figure 3.10).

Un pic correspondant à une période de 324 jours sur les fonctions de densité spectrale associées aux forages S3/F7/D13/C2/A3/A1 est identifiable (figure 3.10). Ce pic est associé en partie au cycle annuel de la recharge de l'aquifère.

D'autres pics sont identifiables sur les fonctions de densité spectrale de certains forages, mais sont plus difficilement interprétables en terme de fonctionnement hydrogéologique : un pic correspondant à une période de 12h et 24h pour les forages A3/D1/D35/F7/S5/A4D/B5D et un pic correspondant à une période de 12h42 pour le piézomètre D35. Ces pics font référence respectivement aux effets barométriques (variations journalières de la pression atmosphérique) et à l'effet de la marée terrestre. Les marées terrestres résultent d'une déformation visco-élastique du globe terrestre sous l'action des forces gravitationnelles du soleil et de la lune. Ces marées induisent une dilatation cubique responsable des variations du niveau dans les forages (Marsaud, 1996). Ces effets barométriques et les marées terrestres sont principalement visibles dans les nappes captives. Selon Larocque (1997), l'observation de ce comportement dans un nappe libre met en évidence la présence de conduits karstiques très perméables. L'identification des pics barométriques dans le spectre de densité spectrale du forage S5, caractérisé pour une forte inertie s'oppose à cette interprétation dans notre cas d'étude. A ce stade, l'interprétation en terme de processus hydrologique de la présence de pics barométriques est difficile.

Les fréquences de coupure des fonctions de densité spectrale sont déterminées graphiquement (tableau 3.4). L'interprétation graphique, forcément subjective induit un biais important, seules

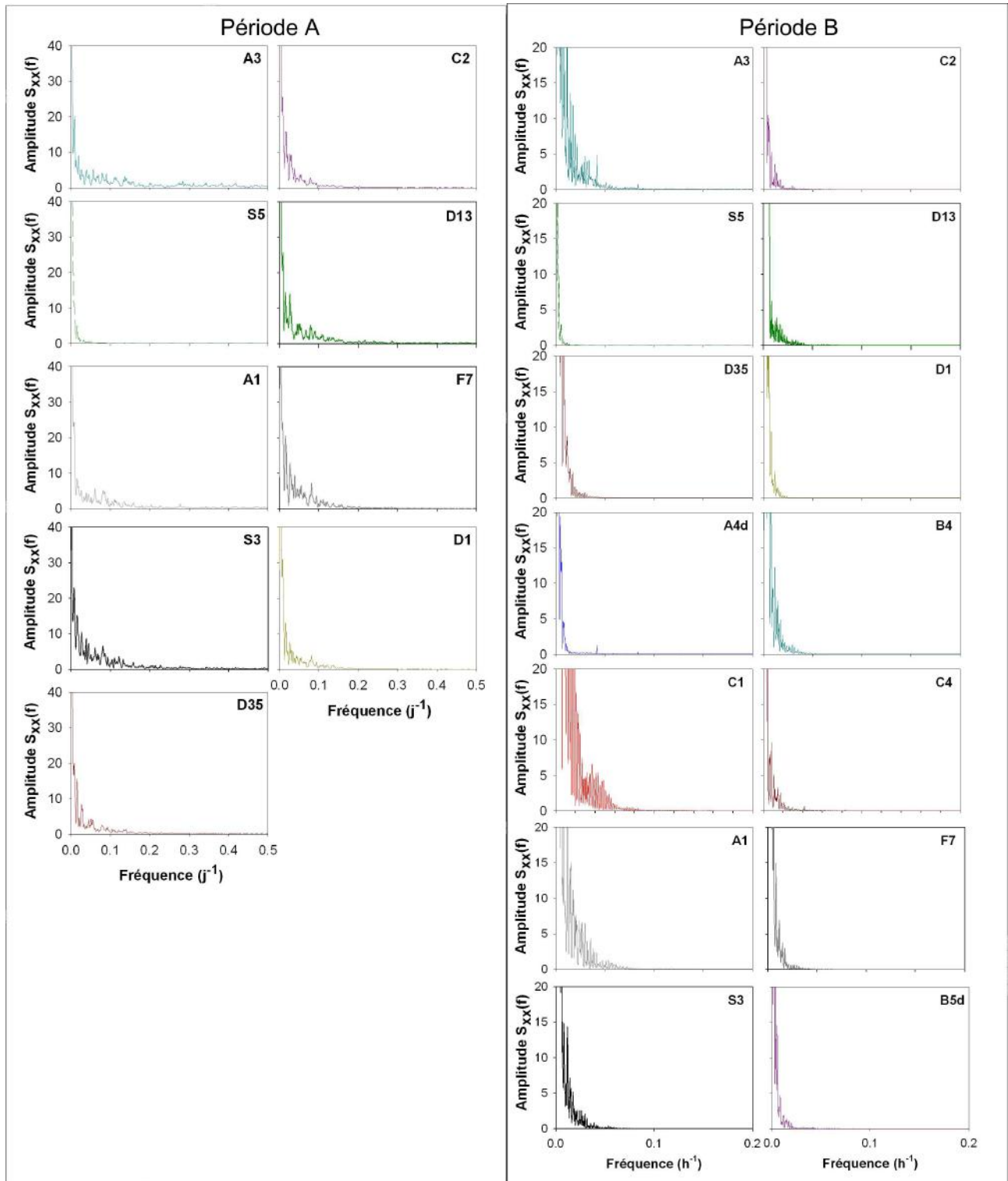


FIGURE 3.10: Fonctions de densité spectrale des niveaux piézométriques pour la période A et la période B.

les variations les plus fortes sont analysées. Les forages A1, A3 et S3 sont caractérisés par les fréquences de coupure très élevées, ceci souligne leur réactivité aux événements pluvieux même de faibles durées. La fréquence de coupure la plus faible est celle du forage S5. Au niveau de ce forage, le système filtre de façon importante le signal de pluie, seuls des événements pluvieux de longue durée et donc quantitativement important influent sur le niveau piézométrique, validant



l'hypothèse de forte inertie.

TABLEAU 3.4: Périodes correspondant aux fréquences de coupure déterminées graphiquement à partir des fonctions de densité spectrale des niveaux piézométriques et des débits.

Site	Période A	Période B
	Période correspondant à la fréquence de coupure (j)	Période correspondant à la fréquence de coupure (h)
A1	2,0	11,2
C2	5,0	15,6
D1	5,0	34,5
D13	3,3	13,2
D35	3,6	20,8
F7	3,6	20,8
S3	2,0	16,9
S5	20,0	76,9
A3	2,0	10,0
A4d		23,3
B4		12,0
B5d		14,9
C1		7,1
C4		16,4
R14		24,4

*Les fonctions de densité spectrale mettent en évidence la présence de composantes périodiques dans les chroniques piézométriques qui pour certaines sont difficiles à interpréter en terme de processus hydrologique. Pour la majorité des piézomètres, la présence d'une composante annuelle qui correspond au cycle annuel de la recharge de l'aquifère met en évidence le stockage et la vidange de réservoir au sein de l'aquifère karstique selon les saisons. Les faibles fréquences de coupure, pour les forages A1, A3 et S3 soulignent leur forte réactivité aux événements pluvieux.*

### 3.3.2.3 Les fonctions de corrélation croisée pluie-niveau piézométrique

L'analyse des fonctions de corrélation croisée,  $C_{xy}(k)$ , permet d'établir les liens entre un signal d'entrée et un signal de sortie. La fonction de corrélation croisée correspond à la fonction de transfert entre les deux signaux. Les fonctions d'autocorrélation des précipitations (figure 3.4) montrent que les précipitations sont aléatoires sur les deux périodes d'étude, donc la corrélation croisée pluie-niveau piézométrique ou débit peut être considérée comme l'image de la réponse impulsionnelle.

Les fonctions de corrélation croisée entre pluie et niveau piézométrique ou débit ont été calculées sur les périodes A et B (figure 3.11). Les fonctions de corrélations croisées sont semblables



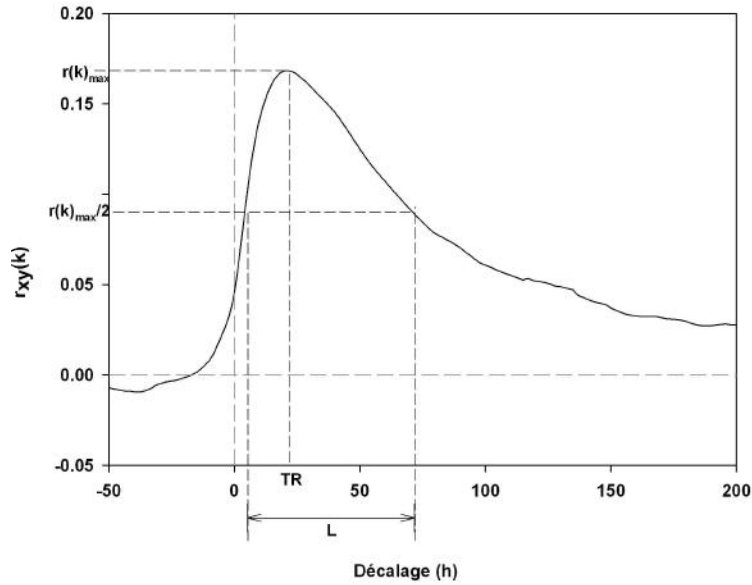


FIGURE 3.12: Paramètres déduits de la fonction de corrélation croisée. TR correspond au temps de réponse,  $r(k)_{max}$ , le coefficient de corrélation maximum et L, la largeur du pic.

pas de temps horaire explique ces faibles valeurs. Dans le cas d'utilisation de pas de temps plus large, les coefficients de corrélation seraient probablement plus élevés. La forme des fonctions de corrélations croisées, avec un pic bien défini souligne un filtrage plutôt réduit du signal d'entrée par le système. Les coefficients de corrélation mesurés pour les piézomètres A1, S3 et F7 sont les plus élevés mettant en évidence une filtration moins importante par l'aquifère et donc probablement un environnement plus fracturé et karstifié.

#### *Le temps de réponse*

Le temps de réponse donne le temps moyen entre les précipitations et les variations du niveau piézométrique dans les forages. Les temps de réponse sont compris entre un minimum de 11h pour A1 et un maximum de 49h pour D1. Ces temps de réponse faibles soulignent une réponse rapide de l'aquifère aux événements pluvieux.

#### *La largeur du pic*

La largeur du pic varie en fonction des piézomètres étudiés, avec un pic très étroit pour le piézomètre A1. Plus le pic est étroit, moins le signal est filtré, moins le système est inertiel. Ce paramètre sera étudié ensuite lors de l'étude spatiale.

*La forme des fonctions de corrélation croisée (pluie-niveau piézométrique) est similaire pour tous les forages excepté pour le forage S5, très inertiel : un pic (augmentation et diminution rapides du coefficient de corrélation) suivi d'une diminution lente de celui-ci. La dualité du fonctionnement de l'aquifère est ainsi mis en valeur avec une fonction transmissive décrite par le pic et une fonction capacitive soulignée par la décroissance lente de la fonction de corrélation*

TABLEAU 3.5: Temps de réponse, coefficient de corrélation maximum et largeur des fonctions de corrélation croisée pluie-niveau piézométrique ou débit.

Site	Période A			Période B		
	Temps de réponse (h)	Coefficient de corrélation maximum	Largeur du corrélogramme croisé lorsque $r(k) = \frac{r(k)_{max}}{2}$ (h)	Temps de réponse (h)	Coefficient de corrélation maximum	Largeur du corrélogramme croisé lorsque $r(k) = \frac{r(k)_{max}}{2}$ (h)
F_A1	11	0,16	50	9	0,21	42
F_C2	45	0,06	170	39	0,07	146
F_D1	49	0,09	93	49	0,10	102
F_D13	42	0,08	132	28	0,09	90
F_D35	31	0,09	146	39	0,11	67
F_F7	33	0,13	96	31	0,15	103
F_S3	21	0,17	70	18	0,17	79
F_S5	445	0,04		931	0,06	
F_A3	13	0,10	37	14	0,11	33
F_A4d				70	0,06	111
F_B4				28	0,15	78
F_B5d				30	0,05	54
F_C1				27	0,17	43
F_C4				36	0,10	160
S_R14				39	0,11	100

*croisée. Les temps de réponse aux événements pluvieux sont courts, compris entre 11h et 49h (excepté pour le piézomètre S5) mettant en évidence la présence de transferts rapides au sein de conduits ou de fractures lors d'événements pluvieux.*

### 3.3.2.4 Les fonctions de gain

La fonction de gain,  $G_{xy}(f)$ , indique si le signal d'entrée est amplifié ou atténué, fréquence par fréquence. Les fonctions de gain calculées sur les périodes A et B (figure 3.13) montrent que le système amortit le signal à très haute fréquence ( $G_{xy}(f)$  inférieur à 1) au profit des basses fréquences ( $G_{xy}(f)$  supérieur à 1). L'atténuation au niveau des hautes fréquences signifie que les événements de courte durée ne sont pas totalement restitués mais participent à la reconstruction des réserves. L'amplification à basses fréquences met en évidence la vidange de ces réserves. Ceci est cohérent avec l'interprétation qui a été réalisée à partir des fonctions de densité spectrale.

Par calcul numérique, Padilla & Pulido-Bosh (1995) mettent en évidence que la période à laquelle la fonction gain excède la valeur 0,4 correspond à la durée de l'écoulement rapide. La durée des écoulements rapides est illustrée par la période pour laquelle le gain atteint 0,4 (tableau 3.6). Les durées estimées pour les écoulements rapides sont cohérentes entre les périodes A et B, avec des durées d'écoulement inférieures à une dizaine de jours. Sauf pour le piézomètre

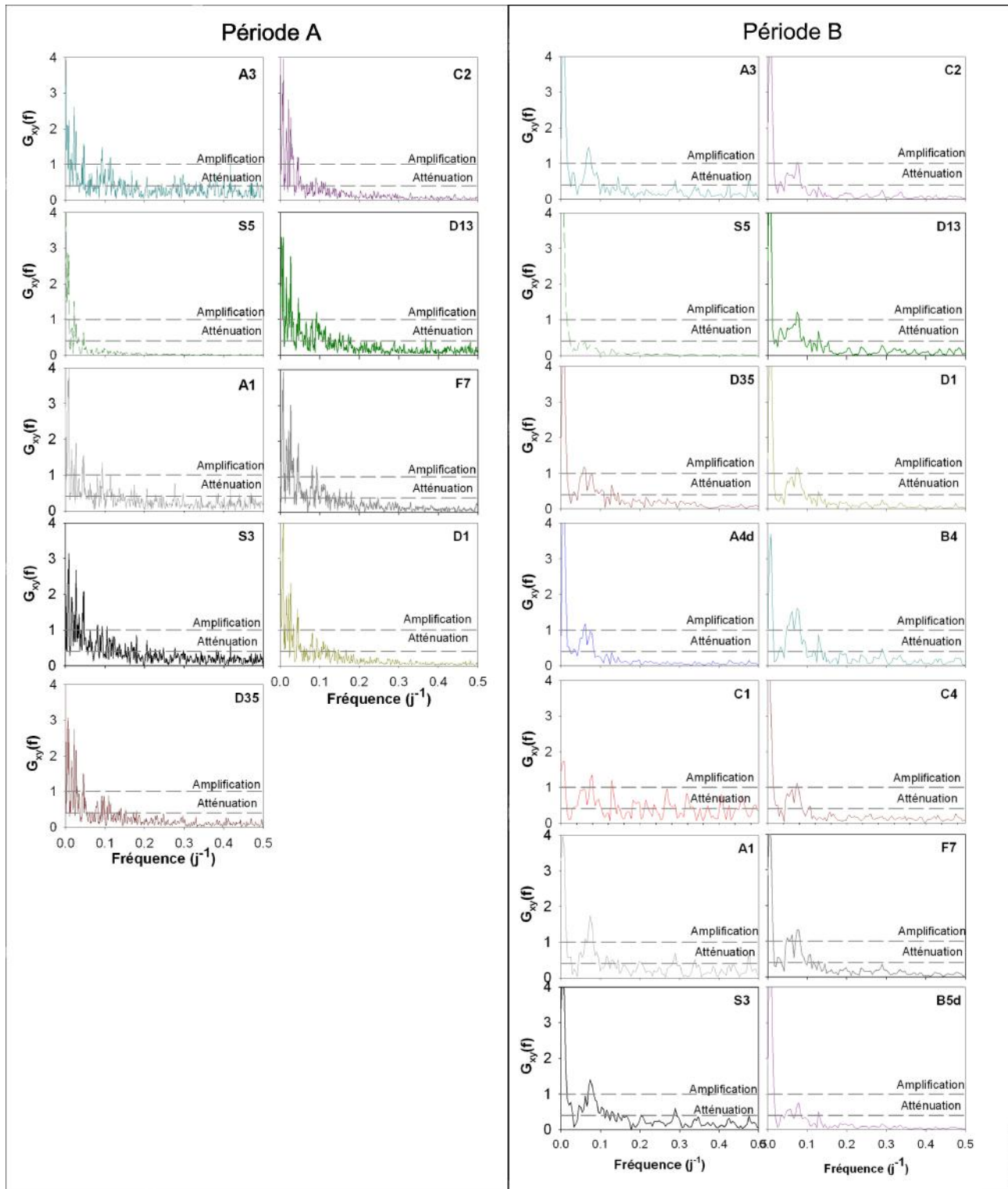


FIGURE 3.13: Fonctions de gain entre la pluie et le niveau piézométrique sur les périodes A et B.

S5 dont la durée de l'écoulement rapide est de l'ordre de 20 à 40 jours, valeur très élevée, ce qui souligne l'absence de transfert rapide au sein de ce forage, en adéquation avec la fréquence de coupure et le corrélogramme croisé.

TABLEAU 3.6: Périodes pour lesquelles la fonction gain vaut 0,4 (analyse croisée pluie-niveau piézométrique ou débit sur les périodes A et B)

Site	Période A	Période B
	Période à laquelle $g_{xy}(f)=0.4$ (j)	Période à laquelle $g_{xy}(f)=0.4$ (j)
F_A1	2,1	2,1
F_C2	8,6	11,6
F_D1	5,9	7,6
F_D13	2,7	7,5
F_D35	5,5	6,7
F_F7	4,0	7,6
F_S3	2,4	3,4
F_S5	20,8	40,3
F_A3	2,0	2,1
F_A4d		12,1
F_B4		3,4
F_B5d		7,6
F_C1		2,0
F_C4		9,0
S_R14		7,6

Les fonctions de gain montrent que le système amortit le signal à très haute fréquence au profit des basses fréquences soulignant la présence de réserve au sein du système. La durée des écoulements rapides, inférieure à une dizaine de jours pour la plupart des piézomètres, est cohérente avec les résultats obtenus à partir des fonctions de corrélation croisée et de densité spectrale.

### 3.3.2.5 Les fonctions de cohérence

La linéarité est caractéristique des aquifères fortement karstifiés. La fonction de cohérence,  $CO_{xy}(f)$ , permet de quantifier la linéarité du système. Un système est linéaire lorsqu'à de fortes pluies correspondent de fortes crues et qu'à de faibles pluies correspondent de faibles crues. Afin de comparer la linéarité des différents piézomètres, classiquement, la moyenne de la fonction de cohérence est calculée pour toutes les fréquences entre  $f=0$  et la fréquence de coupure (tableau 3.7). La moyenne de la cohérence, faible pour tous les piézomètres, comprise entre 0,59 et 0,43, souligne la faible linéarité du système, ceci peut s'expliquer par la reconstitution des réserves pendant certaines périodes de l'année.

TABLEAU 3.7: Moyenne de la cohérence calculée les périodes A et B

Site	Période A	Période B
	Moyenne de la cohérence jusqu'à la fréquence de coupure	Moyenne de la cohérence jusqu'à la fréquence de coupure
F_A1	0,46	0,48
F_C2	0,45	0,51
F_D1	0,46	0,61
F_D13	0,43	0,46
F_D35	0,44	0,54
F_F7	0,49	0,59
F_S3	0,59	0,56
F_S5	0,49	0,57
F_A3	0,47	0,49
F_A4d		0,48
F_B4		0,50
F_B5d		0,46
F_C1		0,38
F_C4		0,55
S_R14		0,61

*La faible moyenne de la cohérence pour tous les piézomètres souligne la faible linéarité du système mettant en évidence la présence de réserves au sein de l'aquifère, qui se remplissent ou se vidangent selon les périodes de l'année.*

### 3.3.2.6 Synthèse des résultats obtenus à partir des analyses corrélatoires et spectrales

L'application de différentes analyses corrélatoires et spectrales sur les données débitométriques et piézométriques montre clairement une dualité des écoulements au sein de l'aquifère avec la présence de transferts rapides probablement à travers les conduits ou fractures et la présence de transferts plus lents probablement à travers les vides de plus petites tailles (matrice, fracture fine).

A partir des fonctions de corrélations croisées et des fonctions de gain, les temps de réponse relatifs aux transferts rapides sont estimés à une dizaine d'heure. La fonction de cohérence montre que le système est peu linéaire soulignant la présence de phénomènes de stockage dans l'aquifère, les réserves se remplissent et se vidangent selon les périodes de l'année.

L'étude hydrodynamique met clairement en évidence que les eaux souterraines sont constituées de différentes masses d'eau dont les temps de résidence varient. Il est cependant impossible à

---

partir simplement des données hydrodynamiques de définir avec exactitude le temps de résidence de ces masses d'eau.

L'application de différentes méthodes de traitement du signal réalisées précédemment a mis en évidence une variation de la fonction de transfert selon les piézomètres étudiés. Pour tous les piézomètres et sources, les précipitations peuvent être considérées comme identique en raison de la faible superficie de la zone étudiée. Ainsi, la variabilité de la fonction de transfert est induite obligatoirement par une variabilité au sein de l'aquifère karstique (structuelle et/ou fonctionnelle). Dans la partie suivante, la variabilité de la fonction de transfert sera étudiée en fonction de la position des piézomètres sur le dôme, afin d'identifier si une logique spatiale peut être déterminée.



### 3.4 Etude spatiale de la fonction de transfert entre pluviométrie et niveau piézométrique

Le traitement du signal effectué précédemment a permis de déterminer des valeurs caractéristiques du système et de la fonction de transfert entre pluie et niveau piézométrique tels que l'effet mémoire, le temps de réponse, la durée des transferts rapides et la moyenne de la fonction de corrélation. Nous avons montré que ces valeurs caractéristiques varient en fonction des piézomètres étudiés, qui subissent pourtant un même forçage d'entrée. L'objectif de cette partie est d'étudier spatialement ces variations et de comprendre quelles sont leurs origines : variabilité du degré de karstification, des formations de surface, organisation spatiale des réponses (Valdes, 2005; Valdes et al., 2006) ?

#### 3.4.1 Variabilité spatiale du temps de réponse

Classiquement, le temps de réponse augmente lorsque l'épaisseur de la zone non saturée est plus importante (Larocque et al., 1998; Valdes, 2005; Lee et al., 2006). L'augmentation du temps de réponse est alors expliquée par l'augmentation de la distance à traverser pour que la recharge atteigne la zone saturée. Dans notre cas d'étude, la relation obtenue est inverse, le temps de réponse diminue avec l'augmentation de l'épaisseur de la zone non saturée (figure 3.14), ainsi ce n'est pas la diminution de l'épaisseur de la zone non saturée qui est à l'origine de la variabilité des temps de réponse au sein de l'aquifère.

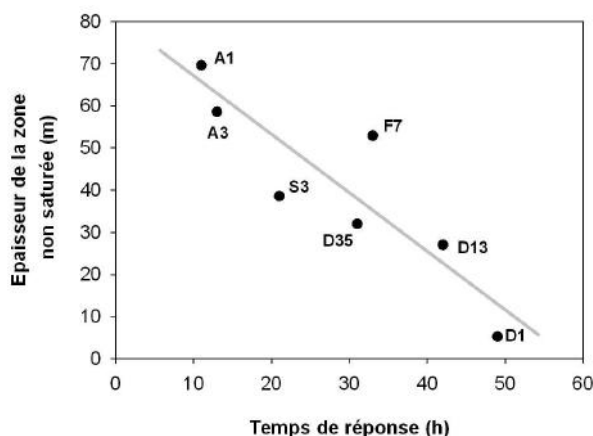


FIGURE 3.14: Temps de réponse (pluie-niveau piézométrique) des différents piézomètres (période A) en fonction de l'épaisseur de la zone non saturée

La morphologie du site d'étude en dôme et de la carte piézométrique incitent à comparer le temps de réponse d'un piézomètre à la pluie avec la distance qui sépare ce piézomètre du haut du dôme hydrogéologique (déterminée à partir de la carte piézométrique présentée dans la partie "contexte général"). Cette démarche révèle que plus le piézomètre se situe à l'aval du dôme

hydrologique, plus le temps de réponse augmente (figure 3.15). Cette relation met en évidence l'importance dans notre cas d'étude des transferts rapides au sein de la zone saturée.

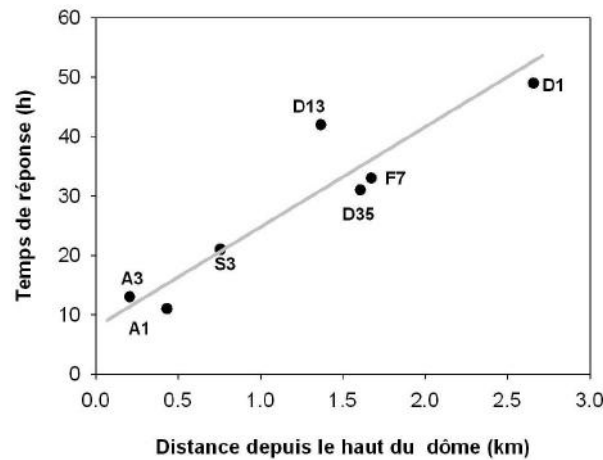


FIGURE 3.15: Temps de réponse (pluie-niveau piézométrique) des différents piézomètres (période A) en fonction de la distance au dôme. La distance au dôme est définie comme la distance entre le haut du dôme hydrologique et le forage.

Chaque piézomètre est l'image de ce qui se passe dans son bassin d'alimentation, plus le piézomètre est en aval du dôme topographique, plus son bassin d'alimentation est grand. Les temps de réponse observés sont extrêmement rapides, compris entre 12h et 46h. Ainsi, la relation entre le temps de réponse et la distance au dôme hydrologique permet de caractériser les transferts rapides qui ont lieu au niveau de chemins préférentiels (conduits, fractures ouvertes bien connectés).

Pour les transferts lents, la pente de la 2<sup>ème</sup> droite de l'autocorrélation ne varie pas de façon organisée par rapport à la distance au dôme. Les valeurs des pentes sont relativement homogènes pour tous les forages, compris entre  $-3,20 \cdot 10^{-4} \text{h}^{-1}$  et  $-5,00 \cdot 10^{-4} \text{h}^{-1}$ , soulignant le fait que la vitesse de l'écoulement de base est homogène au sein de l'aquifère.

### 3.4.2 Schéma conceptuel des écoulements rapides

Au vu de la superficie de la zone d'étude, on peut supposer le forçage d'entrée (les précipitations), identique en tout point du dôme. La variabilité de la forme de la réponse impulsionnelle et du temps de réponse est induite par l'aquifère. Les temps de réponse sont compris entre 10 h et 50h, on s'intéresse donc aux transferts rapides, ce type de transfert peut être supposé majoritairement vertical dans la zone non saturée et horizontal dans la zone saturée. L'évolution du temps de réponse avec la distance au dôme peut s'expliquer par le fait que chaque piézomètre est impacté par les transferts verticaux dans la zone non saturée à proximité et par les transferts horizontaux dans la zone saturée depuis l'amont. Plus le forage se situe en aval du dôme, plus les transferts latéraux seront importants et retardés (figure 3.16 a). Ce schéma rappelle les

modèles d'écoulement des eaux de ruissellement vers les rivières à l'échelle des bassins versants hydrologiques. L'analogie à ce type de modèle souligne la nature karstique des transferts par des chemins préférentiels (conduits, fractures).

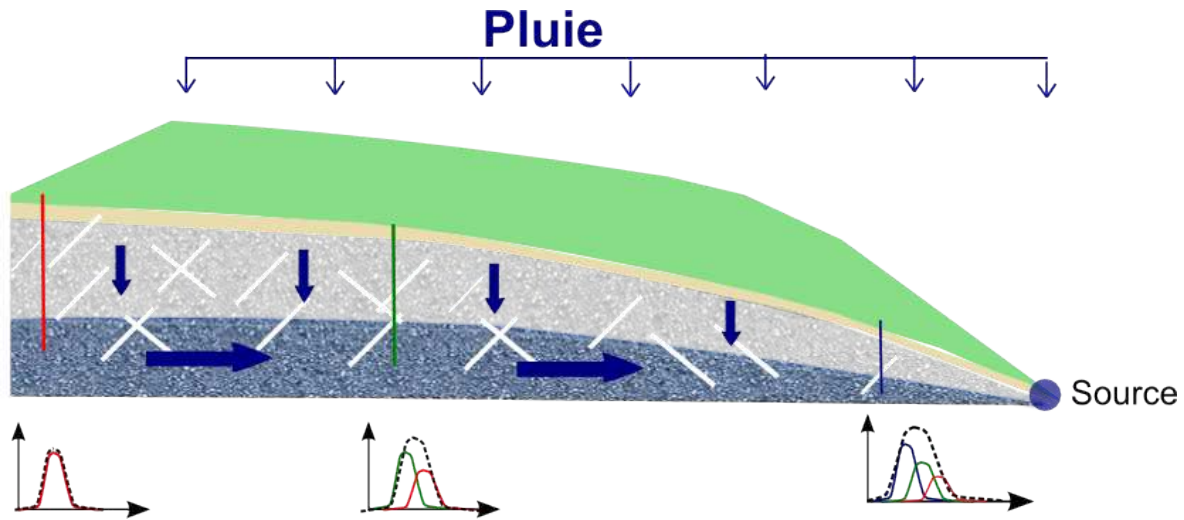


FIGURE 3.16: Schéma du modèle conceptuel expliquant l'augmentation du temps de réponse en fonction de la distance au dôme.

Pour valider ce schéma, la variabilité d'autres paramètres est étudiée en fonction de la distance au dôme (figure 3.17). Pour la période A, la première pente de l'autocorrélation, la largeur de la fonction de corrélation croisée, la fréquence de coupure et la durée des écoulements rapides (période pour laquelle le gain vaut 0,4) sont représentées en fonction de la distance du dôme (figure 3.17). Pour la période B, seuls le temps de réponse et le coefficient de corrélation sont représentés.

Sur la période A, tous les résultats semblent cohérents. La pente de l'autocorrélation correspondant aux transferts rapides diminue avec la distance au dôme, cela signifie que la mémoire du système augmente en aval du dôme (figure 3.17 a). Les piézomètres situés sur le haut du dôme topographique sont affectés par l'événement pluvieux moins longtemps que les piézomètres situés en aval. La largeur du pic de la corrélation croisée augmente (figure 3.17 b). En effet, plus les piézomètres se situent en aval du dôme, plus leur réponse impulsionnelle est large. La fréquence de coupure qui correspond à la fréquence en-dessous de laquelle il n'y a plus d'information diminue avec la distance au dôme (figure 3.17 c). La durée des transferts rapides augmente quant à elle (figure 3.17 d), soulignant une augmentation de la durée de l'impact d'un événement pluvieux au niveau des piézomètres situés à l'aval du dôme.

Sur la période B, un plus grand nombre de forages ont pu être comparés (figure 3.17 e et f). Les tendances observées sont similaires à celles obtenues sur la période A, mais la dispersion est plus importante notamment pour le coefficient de corrélation. Ceci s'explique par une augmentation du nombre de forages étudiés et donc une augmentation de la probabilité de considérer un forage aux caractères atypiques, image de l'hétérogénéité du système karstique.

Ainsi, l'évolution des paramètres calculés à partir des méthodes de traitement du signal par rapport à la position du piézomètre étudié sur le dôme met en évidence que plus un forage se situe en aval du dôme, plus son niveau piézométrique subira longtemps l'impact d'un événement pluvieux.

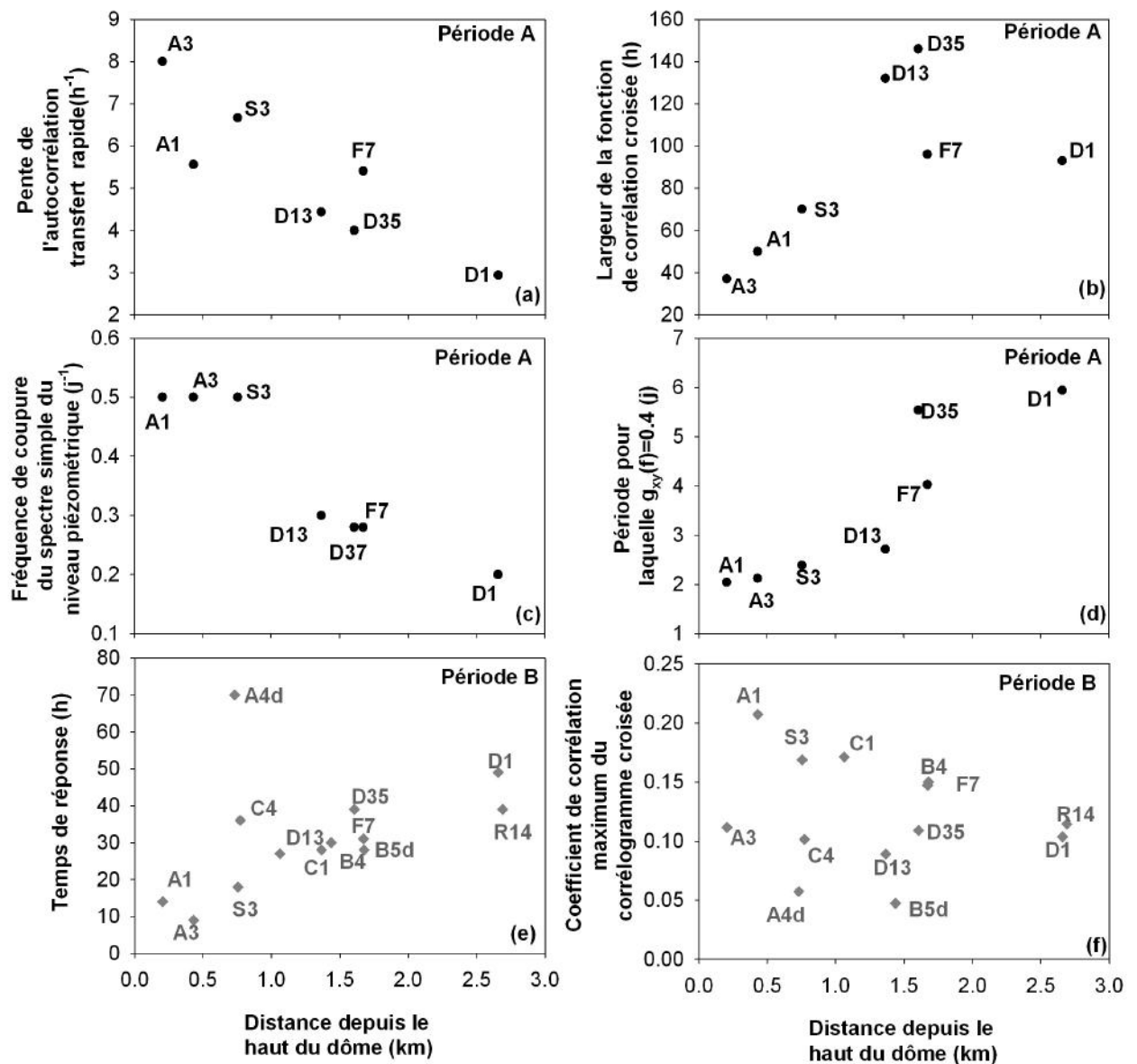


FIGURE 3.17: Variabilité de différents paramètres en fonction de la distance au dôme : (a) pente de l'autocorrélation (plus la pente est forte, moins le signal est inertiel), (b) largeur de la fonction de corrélation croisée, (c) fréquence de coupure, (d) période à laquelle le gain vaut 0,4, représentant la durée des transferts rapides, (e) temps de réponse sur la période B et coefficient de corrélation de la fonction de corrélation croisée, période B.

Ce modèle permet de calculer la vitesse de transfert vertical dans la zone non saturée en amont du dôme. En effet, le temps de réponse d'un piézomètre situé sur le point culminant du dôme correspond au temps de transfert à travers la zone non saturée, il n'y a pas d'apport latéraux dans la zone saturée. Le temps de réponse correspond à l'ordonnée à l'origine de la droite qui

relie le temps de réponse et la distance au dôme. Dans la partie amont du dôme, la vitesse de transfert verticale au sein de la zone non saturée est de 78 m en 5h environ, soit une vitesse de 360 m/j.

### 3.4.3 Mise en évidence d'un transfert de masse à partir de traçages artificiels

L'étude spatiale de la réponse impulsionnelle à partir de données hydrodynamiques a montré la présence d'un transfert de l'amont vers l'aval d'un signal. L'étude hydrodynamique ne permet pas de prouver qu'il s'agit d'un transfert de masse et non pas d'un transfert de pression.

Un traçage "artificiel" est induit régulièrement par la station d'épuration du site CEA. La station d'épuration rejette des bassins d'eau usées régulièrement, ces rejets induisent une variation de la conductivité électrique de l'eau souterraine au niveau de la source R14 qui se situe en aval (figure 3.18). Entre les deux signaux, le décalage temporel minimum est estimé à 24 h pour une distance parcourue d'environ 1600 m. Ce traçage met en évidence la présence de transfert d'eau souterraine de l'amont vers l'aval du dôme à des vitesses d'environ 1,6 km/j. Ces valeurs sont confirmées par des traçages artificiels effectués entre la station d'épuration et la source R14 à l'aide de fluoresceine, où les vitesses de transfert maximale sont estimées à 3,2 km/j. Ces traçages mettent en évidence la présence d'un transfert de masse de l'amont vers l'aval du dôme.

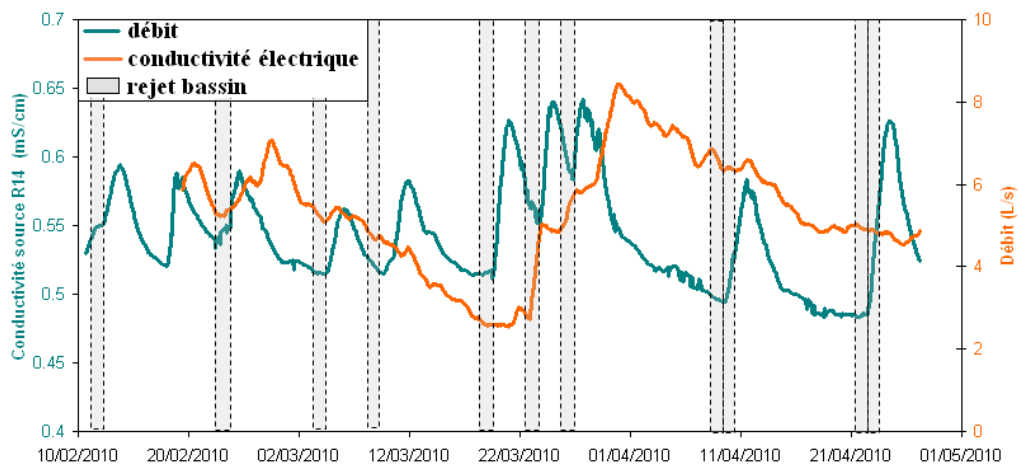


FIGURE 3.18: Conductivité et débit de la source R14. La source R14 se situe en aval des bassins de la station d'épuration. Les rejets d'eau usée induisent une variation de la conductivité électrique de la source R14. Entre les deux signaux, le décalage temporel est d'environ 24h pour une distance parcourue d'environ 1600 m.

*L'étude spatiale de la fonction de transfert entre la pluie et le niveau piézométrique permet d'établir un schéma conceptuel d'une partie des écoulements rapides qui ont lieu dans l'aquifère lors d'événements pluvieux. A l'image d'un bassin versant, au niveau de la zone saturée, la réponse impulsionnelle d'un piézomètre intègre les transferts horizontaux et verticaux qui ont lieu dans leur bassin d'alimentation. Les variations piézométriques correspondent à la somme des écoulements verticaux dans la zone non saturée à proximité et des écoulements horizontaux dans la zone saturée depuis le haut du dôme. Plus le forage se situe en aval du dôme, plus l'arrivée des transferts latéraux liés à un événement pluvieux seront étalés dans le temps. Ceci souligne une forte connection hydraulique de la zone saturée et une organisation importante des écoulements rapides.*

### 3.5 Variabilité temporelle de la réponse impulsionnelle

Certains auteurs (Larocque et al., 1998; Lee et al., 2006) ont montré une variabilité des réponses impulsionnelles en fonction des saisons et des régimes hydrologiques (hautes-eaux et basses eaux). La forte réactivité des piézomètres étudiés sur le site permet d'utiliser une méthodologie innovante pour suivre l'évolution du temps de réponse au cours de l'année : le corrélogramme croisé coulissant. Dans cette partie, nous présenterons cette méthode et l'appliquerons sur 6 piézomètres, afin d'étudier la variabilité temporelle du temps de réponse de l'aquifère aux événements pluvieux.

Cette partie est écrite sous forme d'un article actuellement soumis à *Journal of Hydrology*.

#### **Temporal variability of karst aquifer response time established by the sliding-windows cross-correlation method.**

Delbart, C.<sup>1,2</sup>, Valdés-Lao, D.<sup>3</sup>, Barbecot, F.<sup>4</sup>, Tognelli, A.<sup>1</sup>, Richon, P.<sup>1</sup>, Couchoux, L.<sup>5</sup>

Soumis, *Journal of Hydrology*.

<sup>1</sup> CEA, DAM, DIF, F-91297 ArpaJon, France.

<sup>2</sup> Univ. Paris Sud, Laboratoire IDES, UMR8148, Orsay, F-91405, France.

<sup>3</sup> UPMC Univ. Paris 06, UMR 7619 Sisyphe, Case 105, 4 place Jussieu, F-75005 Paris, France

<sup>4</sup> GEOTOP, Université du Québec à Montréal, Montréal, Québec H3C 3P8, Canada.

<sup>5</sup> CEA, DAM, Valduc, 21120 Is-sur-Tille, France.

#### 3.5.1 Résumé en français

Dans cet article, nous étudions la variabilité temporelle des écoulements à travers la zone d'infiltration d'un aquifère karstique en estimant la réponse impulsionnelle à l'aide de corrélations entre la pluie et le niveau piézométrique. Nous appliquons la méthode du corrélogramme croisé coulissant qui consiste à calculer la fonction de corrélation croisée sur des fenêtres courtes qui se superposent partiellement. Nous appliquons cette méthode à partir des données piézométriques de 6 forages. A partir des fonctions de corrélation croisée calculées pour chaque fenêtre, une chronique de temps de réponse est obtenue. Pour la plupart des forages, la forme des fonctions de corrélation est modifiée au cours du temps et le temps de réponse varie saisonnièrement, celui-ci est plus court durant la période estivale. Cette relation inhabituelle peut s'expliquer en partie par la variabilité saisonnière de l'intensité de la pluie, qui est plus forte durant les périodes estivales (de mai à septembre). Ceci induit une variation saisonnière du comportement de l'épikarst. Durant l'été, quand les pluies sont plus intenses, l'épikarst est plus facilement et rapidement saturé. Lorsque l'épikarst est saturée, des transferts latéraux ont lieu augmentant

ainsi les flux concentrés au niveau des porosités les plus ouvertes et connectées. Durant la période estivale, les temps de réponse sont plus courts et tendent vers une limite, qui est l'image de la saturation maximale de l'épikarst.

### 3.5.2 Résumé en anglais

We study the temporal variability of water transfer through the infiltration zone of a karst aquifer by estimating the impulse response of the system using cross-correlogram analyses between rainfall and piezometric level time series. We apply a sliding-window cross-correlation method, which calculates cross-correlograms on partially superposed short time series windows. We apply this method for rainfall and piezometric level time series at six boreholes in a fractured karstic aquifer located in Burgundy, France. Based on cross-correlogram functions, we obtain a time series of response time. At most of the boreholes, the cross-correlation functions change over time, and the response times vary seasonally, being shorter during the summer. This unusual structure can be partly explained by the seasonal variability in rainfall intensity, which is higher during the summer (May to September), inducing the seasonal behaviour of the epikarst. During the summer, when rainfall intensity is higher, the epikarst is more easily and quickly saturated. This induces an increase in lateral water transfer within the epikarst and an increase in concentrated fast flows. We also show that the response time seems to tend towards a limit which represents the maximum saturation of the epikarst.

### 3.5.3 Introduction

Karst aquifers are usually characterised by heterogeneous physical properties and multiple transfer velocities due to the presence of open conduits created by the dissolution of calcite (White, 2002; Aquilina et al., 2005). However, regardless of the degree of karstification and the extent of the conduit network, aquifers present a distribution of transfer velocity from low and diffuse flow to fast and conduit flow (White, 1969; Atkinson, 1977; Larocque, 1997; Larocque et al., 1998).

Numerous methods have been proposed to decipher and describe the functioning of karst aquifers. Classical techniques include geologic and geomorphologic observations, pumping tests (Thraillkill, 1988; McConnell, 1993), tracer tests (Smart, 1988; Käss, 1998; Kogovsek & Petric, 2003; Goldscheider et al., 2008), analysis of chemographs of major chemicals, stable isotopes and carbon-13 (Emblanch et al., 2003; Aquilina et al., 2005), analysis of recession curves (Atkinson, 1977; Milanovic, 1981; Mangin, 1984), spectral and correlation analysis, wavelet analysis (Mangin, 1975; Angelini, 1997; Larocque, 1997; Labat et al., 2000; Rahnemai et al., 2005; Panagopoulos & Lambrakis, 2006; Jukić & Denić-Jukić, 2011), geophysical investigation (Jacob et al., 2008), reservoir models (Fleury et al., 2007; Jukić & Denić-Jukić, 2009; Geyer et al.,



2008; Tritz et al., 2011), spring hydrograph models from spectral analysis (Jukić & Denić-Jukić, 2004) and numerical and physical models (Dreybrodt, 1996; Eisenlohr et al., 1997; Scanlon et al., 2003).

The karst investigations previously presented have defined a basic conceptual model of the karst system in two parts : the infiltration, or unsaturated, zone and the saturated, or phreatic, zone.

The infiltration zone consists of two parts : the epikarst and the transition zone. The epikarst is the uppermost zone of carbonate rocks that are particularly corroded or fractured, due to stress release, weathering and dissolution (Klimchouk, 2004). The contrast in permeability between the epikarst and the transition zone gives the epikarst the ability to regulate water infiltration and storage (Mangin, 1975; Aquilina et al., 2005; Perrin et al., 2003; Bakalowicz, 2010). The infiltration from the epikarst towards the transition zone is divided into two components : a slow seepage from the base of the epikarst and a concentrated flow through high conductivity conduits. The lateral component flow is significant in the epikarst, allowing the water to converge towards vertical fissures (Perrin et al., 2003). The transition zone is the zone between the epikarst and the saturated zone. The flow is essentially vertical. Two types of water flow coexist : slow flow in small fractures and quick flow in large conduits.

The saturated zone can be divided into two subparts : conduits that mostly drain water towards the karst spring and a low permeability volume where water is stored. The storage capacity of the saturated zone is still in question, and several models have been proposed : a model in which water is stored in matrices or fractures (Drogue, 1974; Mudry, 1990; Kiraly, 1998) and a model in which water is stored in karst voids (Mangin, 1975).

The goal of this project is to characterise the functioning of a karst aquifer located in Burgundy, France, to protect water resources from accidental pollution. In this paper, we analyse the seasonal variability of the impulse response of this aquifer. We determine the impulse response of the karst aquifer from cross-correlation analyses between rainfall and piezometric levels and adapt this method to study the variability of the impulse response over time with the application of cross-correlation analyses over three-month periods by sliding windows.

Correlation and spectral analyses are methods based on statistical tools developed principally by Jenkins & Watts (1968) and Box et al. (1994) and adapted to karst systems by Mangin (1975). A karst aquifer can be viewed as a filter transforming an input signal into an output signal by a transfer function (Walliser, 1977; Mangin, 1984; Mathevet et al., 2004). Once defined, this function can be interpreted to define the functioning, organisation and structure of karst aquifers.

Two types of correlation analyses are typically used : auto-correlation and cross-correlation. The first analysis characterises the individual structure of the time-series and its linear dependency

over a period of time. The second analysis characterises the link between the input and output signals and usually considers rainfall as an input signal and discharge at a spring as an output signal (Mangin, 1975). This cross-correlation is the picture of the impulse response of a karst system, if the rainfall can be considered random. From this analysis, the average response time of the aquifer to a rainfall event can be computed.

Historically, in karst aquifers, spectral and correlative analyses are conducted between precipitation and spring discharge, giving information on the entire system. Some authors use these methods for other types of time series. From piezometric levels, they obtain information at several locations of the aquifer to evaluate the impact of unsaturated or epikarstic zones. Some authors propose to adapt this method to study the mass transfer in aquifers using conductivity (Larocque et al., 1998; Baily-Comte et al., 2011), turbidity (Bouchaou et al., 2002; Amraoui et al., 2003; Massei et al., 2006; Baily-Comte et al., 2011) and temperature (Baily-Comte et al., 2011) time series. Some hydrogeologic processes are underlined by a temporal lag between piezometric and geochemical variation, such as surface water arrival (Hanin, 2010).

The size of time series can vary depending on the goal of the study. Previous studies on long periods have given global information on the system. The studies from several years give global information on the period (Padilla & Pulido-Bosh, 1995; Larocque et al., 1998; Rahnemaie et al., 2005; Andreo et al., 2006). Some authors compared several hydrological cycles and analysed the variability of the impulse response depending on the cumulative precipitation (Larocque et al., 1998; Hanin, 2010). Lee et al. (2006) chose three-month periods, and Larocque et al. (1998) divided the hydrological year along the low and high water table periods. Both authors established that the seasonal variability of the impulse response provides a picture of the seasonal variations of the water table (variability of unsaturated zone thickness, variability of network saturation). A method to study the temporal variation of properties within the aquifer was proposed by Baily-Comte et al. (2011). They used a sliding cross-correlogram method between temperature and specific conductivity time series and established that residence time variations are connected with flow (high and low flow).

In this paper, we analyse the temporal variability of the impulse response using the sliding cross-correlogram method between rainfall and piezometric level time series to interpret temporal variability in seasonal hydrological processes.

First, we discuss the study area, data acquisition and the sliding cross-correlation method. We then apply this method to study the temporal variation of the response time and discuss the implications for understanding the physical mechanisms involved in this karst aquifer.

### 3.5.4 Study area

The study area is located in Burgundy, 30 km to the northwest of Dijon in eastern France (figure 3.19). The study zone is on the catchment of the Douix de Léry River (figure 3.19). This area is approximately 40 km<sup>2</sup>, with a maximum altitude of 501 m NGF and a minimum altitude of 336 m NGF. The land in this catchment is composed of forest (82.5% of total surface), agricultural land (13% of total surface) and urban area (4.5% of total surface). The urban area, located on the north of the study site (figure 3.19), is principally composed of parking lots, roads and buildings, which cause runoff and some preferential zones of infiltration downstream of the urban area.

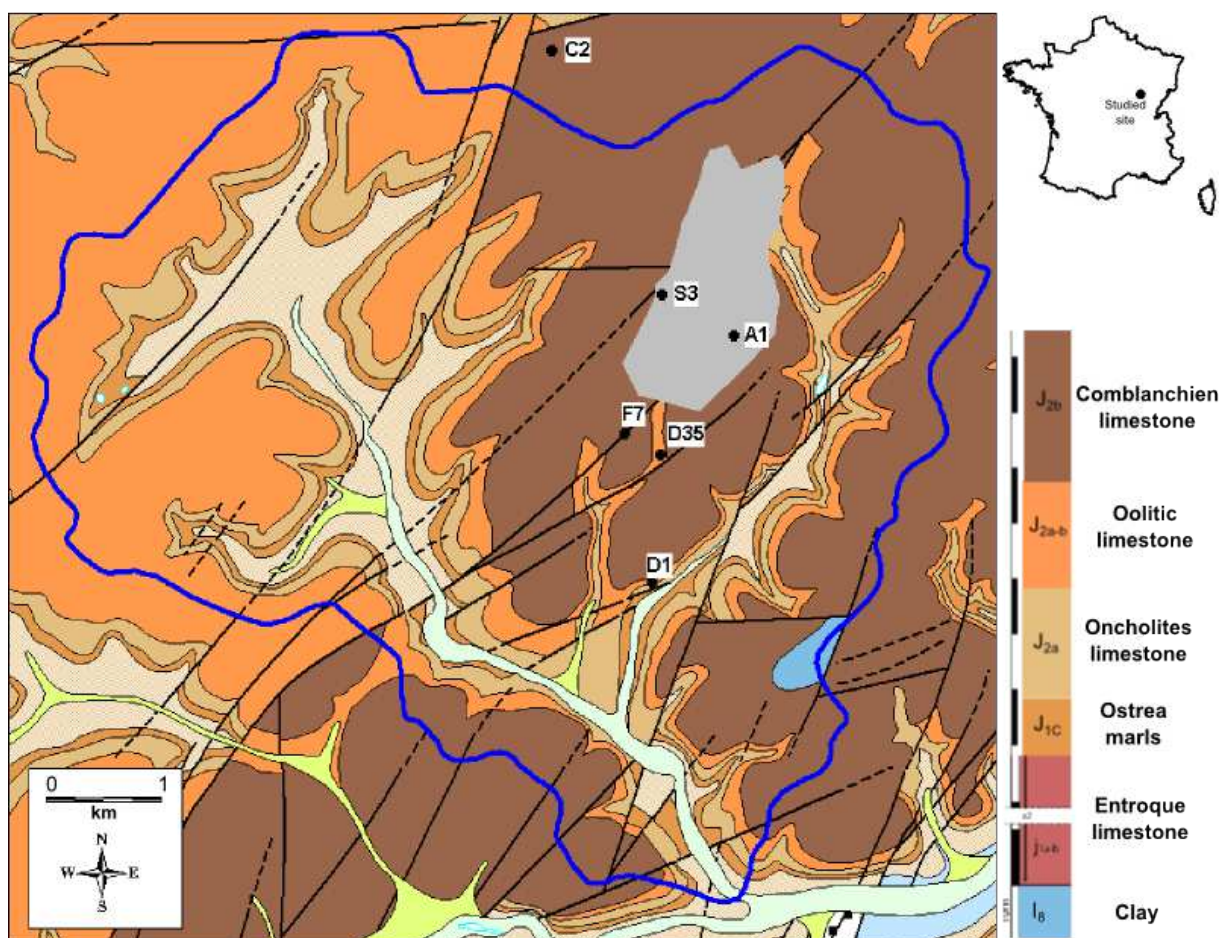


FIGURE 3.19: Description of the study area. The blue line represents the catchment limit, the grey area represents the urban area, the black line represents the faults and the black points represent the locations of the monitored boreholes.

The climate is continental. The average atmospheric temperature is approximately 9.7°C, with a maximum temperature in June, July and August, and the cumulative rainfall by hydrological cycle ranges between 689 mm and 1214 mm, with an average of 955 mm (1992-2012, Météo-France data at Saint Martin du Mont station, located 18 km south-southwest of the study site centre).

From June 2007 to October 2012 (the period of study), the cumulative rainfall does not present significant inter-annual changes. The average cumulative rainfall in a hydrological cycle is 916 mm, with a standard deviation of 55 mm. The rainiest hydrological cycle is October 2011-October 2012, with a cumulative rainfall of 978 mm, close to the average over the 1992-2012 period. The least rainy hydrological cycle is October 2010-October 2011, with 832 mm of cumulative rainfall, 13% less than the average values of the last twenty years. The monthly cumulative rainfall is not seasonally distributed. The average intensity of rainfall, in mm/h, which is defined as the average intensity of rainfall in mm/h without taking into account the intensities equal to zero, varies seasonally. The intensity of rainfall is highest in July and August and lowest in January and February (figure 3.20).

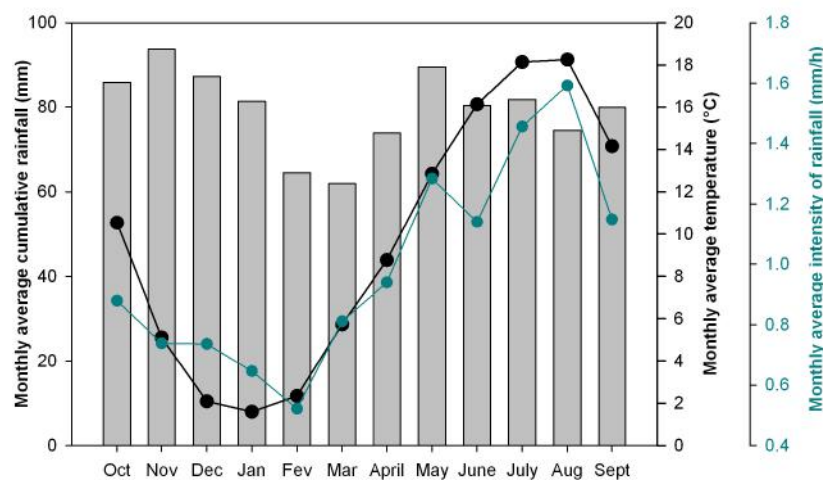


FIGURE 3.20: Monthly averaged rainfall (histogram), monthly average air temperature (black dots) and monthly average rainfall intensity (black dots), which is the average of rainfall intensity in mm/h without taking into account the intensities equal to zero, from meteorological data at Saint Martin du Mont (data Météo France) during the period 1992-2012.

The geologic section is composed of tabular Jurassic limestones interspersed by marls, allowing the development of two superposed aquifers. In this publication, only the upper one will be monitored and studied. The subsurface is composed of several layers of limestone : Comblanchien, oolitic and oncholite limestones underlain by marls of the Upper Bajocian formation. The thickness of the limestone layer varies from 0 m (spring location) to 70 m, depending on the location. The studied aquifer is located in the oncholite limestone layer.

The limestones are characterised by three types of porosity. Matrix porosity is related to the internal structure of the limestone, fracture porosity reflects the tectonic history of the region, and the conduit porosity is due to the dissolution of the calcite. Primary porosity has been studied in the laboratory. Permeability and porosity measurements were measured using a non-steady-state air permeameter and the mercury intrusion method, respectively, in several limestones. Primary porosity is low, with a maximum of 16% in the oolitic limestone. From the

marls to the top of oolitic limestone, the porosity, the permeability and the pore size increase. The total porosity varies from 4 to 16%, the effective porosity from 2 to 7% and the average hydraulic conductivity of limestone is  $4.10^{-8}$  m.s<sup>-1</sup>. A higher density of stylolites is noticed in the oncolites limestone layer, increasing the permeability of the limestone. In the Comblanchien limestone, the total porosity is approximately 5%, but the effective porosity and permeability approach zero.

The fracture porosity is apparent in the field or in rock cores. This porosity is characterised by high heterogeneity, in either size or density. The fracture openings vary from millimetre-scale up to 20 cm, with an average of 3 cm for 654 measured fractures. The average distance between two fractures is approximately 2 m.

The conduit porosity is linked to the dissolution of carbonate rock. In the field, several karst conduits have been observed ; their size can be as large as a few metres (5 m). No underground cavities are known. Some artificial flow tracings have been done on the site, giving a modal velocity which varies from  $2.10^{-4}$  to  $6.10^{-3}$  m.s<sup>-1</sup>.

The thickness of the soil is low and varies between 0.20 to 1.60 m. The soil surface characteristics were investigated in situ. We measured the hydraulic conductivity at saturation using a double-ring infiltrometer to be between  $8.10^{-5}$  and  $1.10^{-3}$  m.s<sup>-1</sup>. We determined the hydraulic conductivity of near-saturated soils using tension disc infiltrometers and found that it varies between  $4.10^{-5}$  and  $1.4.10^{-4}$  m.s<sup>-1</sup>. The high values of hydraulic conductivity induce a low runoff effect and a high ratio of vertical transport. The epikarst is located under the soil and is characterised by a high density of fractures compared with the carbonate located below. Its thickness varies from 5 to 10 m, depending on the location .

### 3.5.5 Data acquisition

We monitored the piezometric levels at six boreholes from June 2007 to September 2012, with an acquisition time interval of 1 h. The locations of the measurement stations are shown in figure 3.19, and key characteristics of each site are presented in Table 3.8 (altitude, dominant land use, unsaturated zone thickness). Piezometric levels are measured with Mini-Diver<sup>TM</sup> probes compensated for atmospheric pressure using a barodiver (Schlumberger Water Service). The accuracy of the measurements are  $\pm 1$  cm H<sub>2</sub>O (borehole A1, C2, D1, D35, S3) and  $\pm 3$  cm H<sub>2</sub>O (borehole S3), depending on the amplitude of piezometric level variation. Due to minor technical problems, some of the time series of piezometric levels include data gaps (a maximum of 5% of the complete time series).

The rainfall time series was supplied by Météo-France at Saint Martin du Mont station, located 17.6 km from the S3 borehole. Precipitation was recorded hourly.

TABLEAU 3.8: Key characteristics of monitored boreholes. The unsaturated zone was measured at the same date for each borehole during a low water level (July 2010).

Borehole	Dominant land use	Wellhead altitude (m NGF)	Unsaturated zone thickness (m)
A1	Industrial land use	496.9	69.4
C2	Forest	472.0	38.1
D1	Forest	367.6	5.0
D35	Forest	429.5	31.6
F7	Industrial land use	469.4	52.5
S3	Industrial land use	500.4	33.7

### 3.5.6 Auto-correlation, cross-correlation and sliding-window cross-correlation methods

#### 3.5.6.1 Auto-correlations and cross-correlations

A short explanation of these statistical methods is presented below. Further demonstrations and theoretical analyses have been established by [Jenkins & Watts \(1968\)](#), [Box et al. \(1994\)](#) and [Mangin \(1984\)](#). The auto-correlation function of a time series quantifies the linear dependency of successive values over a time period and can be written as :

For  $k > 0$ ,

$$C_{xx}(k) = \frac{1}{n} \sum_{t=1}^{n-k} (x_t - \bar{x})(x_{t+k} - \bar{x}) \quad (3.1)$$

$$r_{xx}(k) = \frac{C_{xx}(k)}{C_{xx}(0)} \quad (3.2)$$

where  $r(k)$  is the auto-correlation function,  $C(k)$  is the correlogram,  $k$  is the time lag ( $k=0$  to  $m$ ),  $n$  is the length of the time series,  $x_t$  is the value of the studied variable at time  $t$ , and  $m$  is the cutting point ([Box et al., 1994](#)). The cutting point determines the interval in which the analysis is conducted. It is necessary that  $m \leq n/3$  to define  $C(k)$  for each  $k$  with the same number of data.

For a random variable, this function,  $r(k)$ , decreases very quickly and reaches zero for short time lags. To compare the inertia of signal, [Mangin \(1984\)](#) defines the memory effect as the time lag required for the auto-correlation function to reach a predefined value, which is usually 0.2.

The cross-correlation function is used to establish relationships between the input and output time series and can be written as :

For  $k > 0$  :

$$C_{xy}(k) = \frac{1}{n} \sum_{t=1}^{n-k} (x_t - \bar{x})(y_{t+k} - \bar{y}) \quad (3.3)$$

$$r_{xy}(k) = \frac{C_{xy}(k)}{\sigma_x \sigma_y} \quad (3.4)$$

where  $k$  is the time lag,  $n$  is the length of the time series,  $x_t$  and  $y_t$  are input and output time series, respectively,  $r_{xy}(k)$  is the cross-correlation function,  $\sigma_x$  and  $\sigma_y$  are the standard deviations of the time series, and  $C_{xy}(k)$  is the cross-correlogram (Box et al., 1994). If the cross-correlogram function is not symmetrical and if  $r_{xy}(k)$  shows maximum or minimum for a positive lag, the input signal influences the output signal. If the input time series is random, the cross-correlation function corresponds to the impulse response Box et al. (1994).

The response time is the lag time that corresponds to the maximum of the cross-correlation function. The response time related to the cross-correlation between rainfall and discharge or piezometric level corresponds to the mean response time of the karst aquifer to a rainfall event (Mangin, 1984)

### 3.5.6.2 Sliding window cross-correlation method

To highlight the seasonal variability of the impulse response, we propose to adapt cross-correlation method. Using the sliding window cross-correlation method between rainfall and piezometric level allows us to study the temporal evolution of the relationship between the input and output time series.

The sliding-window cross-correlation method consists of slicing the input (precipitation) and the output (piezometric level) time series with partially superposed windows. For each window, the cross-correlogram function between rainfall and piezometric level is calculated, and the response time (delay) is determined (figure 3.21). We then obtain a time series of response time.

The length and lag of windows have to be chosen appropriately depending on the study (goal of study and frequency of events). Here, we slice the time series into “three-month periods” lagged by one-and-a-half months to show the presence of seasonal variability.

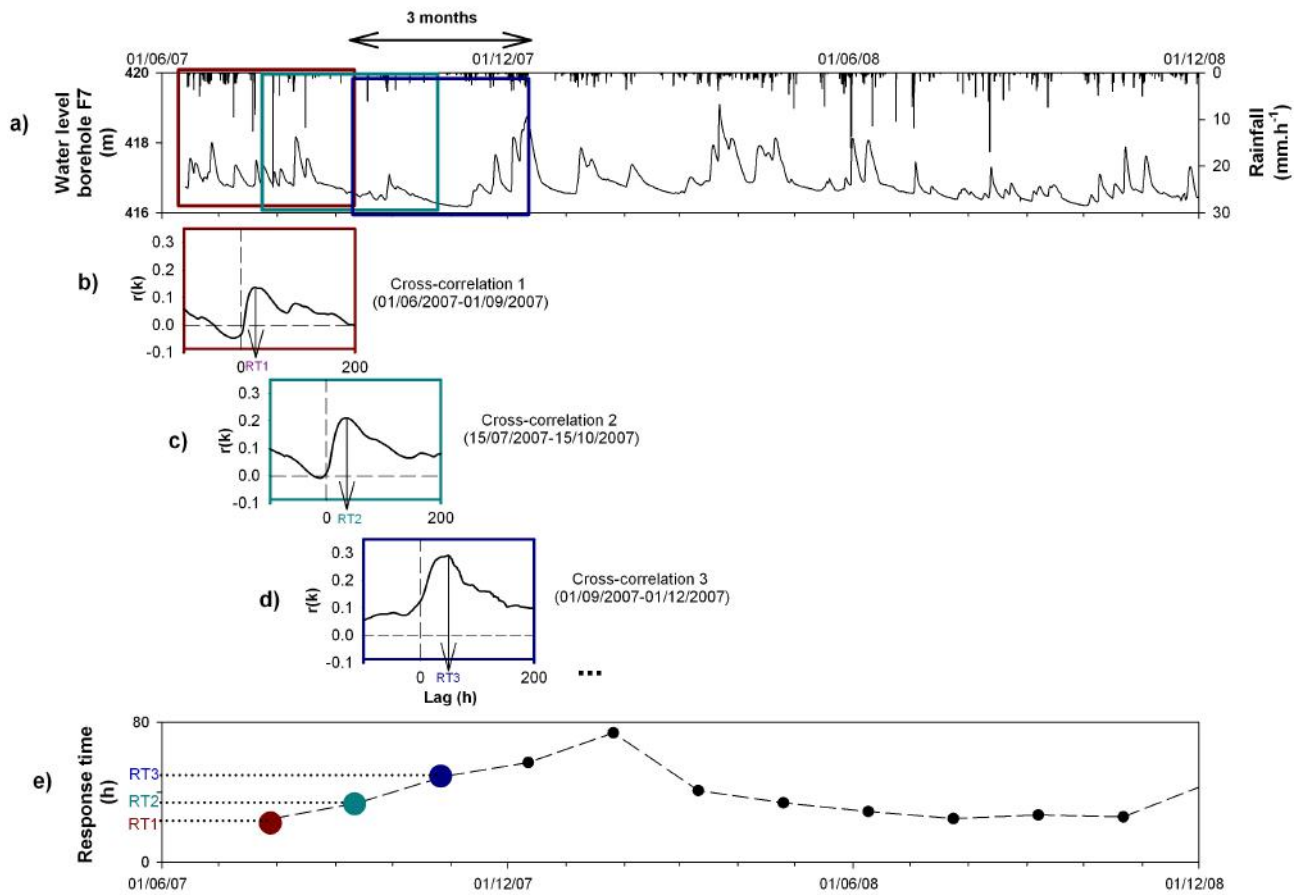


FIGURE 3.21: (a) is the time series of rainfall and the piezometric level. Both time series are sliced with superposed windows. (b) is the cross-correlation function between rainfall and piezometric level on the first window. (c) and (d) are the cross-correlation functions for two following windows. For each cross-correlation function, the response time (RT) is determined. The time series of the response time is defined as (e).

To be acceptable, a cross-correlation function has to be characterised by a significant correlation at the 95% confidence level, which means a correlation coefficient,  $r(k)$ , superior to the standard error  $\sim \frac{2}{N^{1/2}}$ , where  $N$  is the number of values in the data set (Diggle, 1990; Lee et al., 2006).

The sliding window cross-correlation method requires a high frequency of rainfall events and reactive piezometric time series throughout the year.

### 3.5.7 Results

First, we present and analyse the time series of rainfall and piezometric level as a whole (2007-2012). Second, we apply the sliding window cross-correlogram method to study the temporal variability of the relationship between rainfall and water level.



### 3.5.7.1 Rainfall and piezometric level time series description

The monitoring in the field gives the piezometric level every hour at six boreholes for nearly six years (figure 3.22). The high-frequency variations in the piezometric level indicate that these six boreholes are reactive, meaning the piezometric level varies after a rainfall event throughout the year. The fast response time is probably due to the runoff and preferential zone of infiltration linked to the urban area. Nevertheless, some boreholes located in forest areas are also characterised by short response times. A very fast transfer velocity in karst conduits with a low dependence on evapotranspiration could explain the short time response events throughout the year. The high frequency of recharge events allows us to apply the sliding window cross-correlogram method.

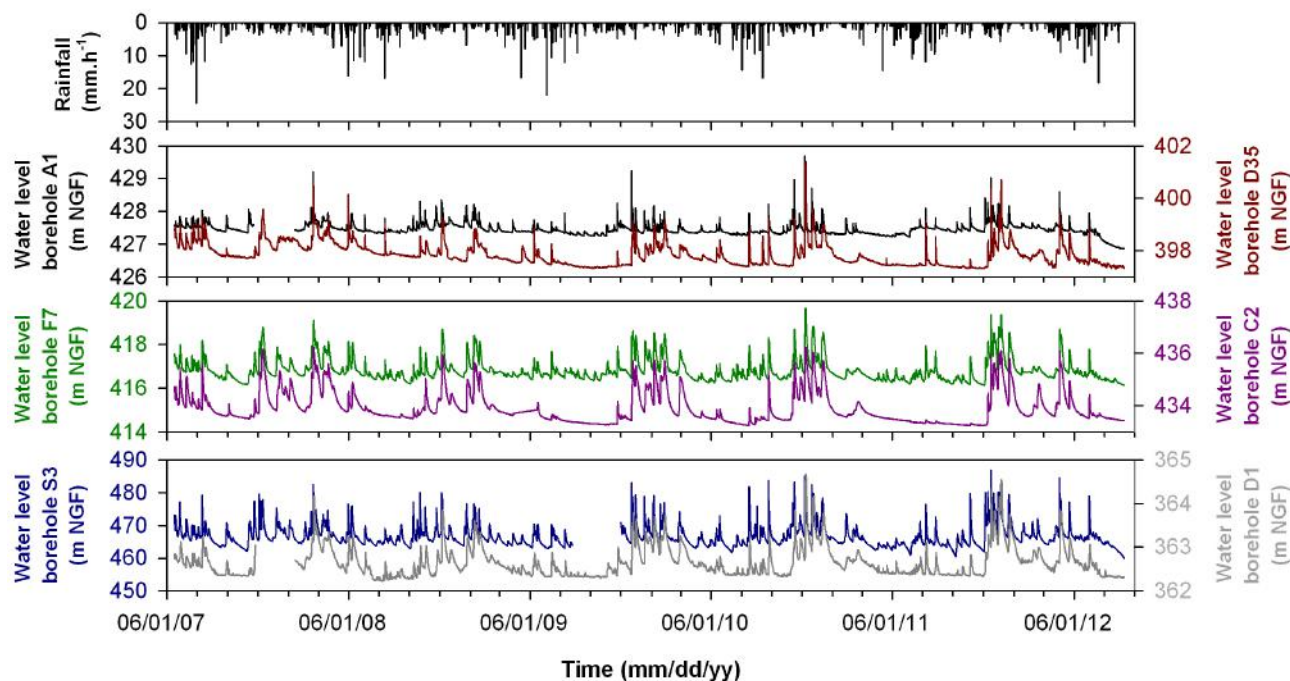


FIGURE 3.22: Rainfall and piezometric level time series for each borehole.

### 3.5.7.2 Application of the sliding-window cross-correlation method

The sliding-window cross-correlation method was performed between the rainfall and the piezometric level at six boreholes during the period of June 2007-September 2012 with three-month period windows and a lag of 1.5 months. We obtained 42 cross-correlogram functions.

The frequency of recharge events has to be enough for a three-month period because it influences estimates of cross-correlation functions between rainfall and spring discharge (Eisenlohr et al., 1997). At this site, there is an average of 17 rainfall events (rough count) over a three-month period, with a minimum of 11 and a maximum of 26. Furthermore, the input time series is

supposed to be random to interpret the cross-correlation as the impulse response of the system. The rainfall auto-correlation is calculated for each three-month window. Most of the time, the rainfall auto-correlation functions decrease sharply for lag values close to zero. The maximum memory effect for an  $r(k)$  of 0.2 is 13 h, and the average memory effect is 4 h. Therefore, we consider rainfall to be approximately random for each window.

The application of the sliding cross-correlation on the studied period gives a maximum of 41 windows for each borehole. Due to the data gap in the time series, we obtain 39 to 41 cross-correlograms, depending on the borehole. Furthermore, we do not take into account windows when the correlation coefficient is not significant (less than 0.043; significant correlation at the 95% confidence level). We note that some cross-correlation functions present several peaks, which could highlight the existence of multiple flows within the aquifer (Massei et al., 2006). However, the characterisation of multiple flows is beyond the scope of this study. Therefore, we focus on the fast transfer in the karst aquifer using only the first correlation peak.

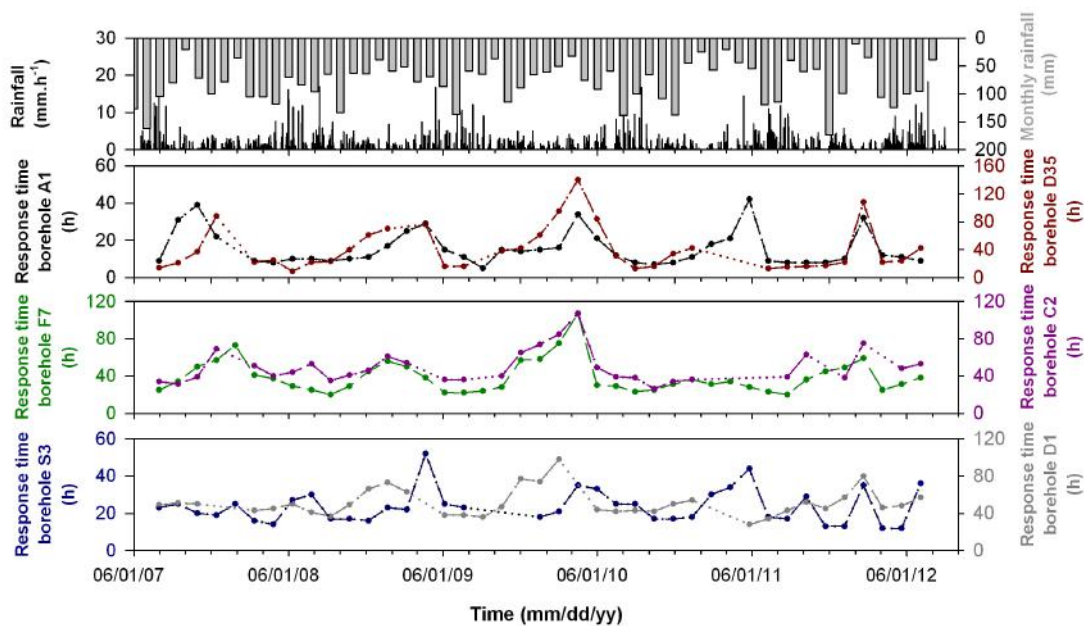


FIGURE 3.23: Time series of rainfall and response time for each borehole. The response time varies through the year. The dotted line (...) represents the absence of calculated response time due to a gap in the piezometric level data or a non-significant ( $<0.043$ ) correlation coefficient of the cross-correlation function.

At the end of this pre-treatment, the time series of the response time is composed of 32 to 41 values. The response time is not constant during the year (figure 3.23) but remains short, between 5 to 140 h (figure 3.23), but it remains short, between 5 to 140 hours (Table 3.9). For each borehole, we observe a high variability in response time. For example, the response times of the A1 borehole vary between 5 and 42 h, and those of the F7 borehole vary between 20 and 107 h. For the D1, D35, F7 and C2 boreholes, the response time varies seasonally, with lower values during the summer (figure 3.24). The response time is less organised for the A1 and S3

boreholes (figure 3.23). This relationship is unusual and differs from the literature. Usually, the response time is shorter during the high water period (Larocque et al., 1998; Lee et al., 2006).

TABLEAU 3.9: Results of the application of the sliding cross-correlogram between rainfall and the piezometric level : characteristics of response times and coefficient correlations of the time series.

Borehole	Maximum response time (h)	Minimum response time (h)	Mean response time (h)	Maximum coefficient correlation	Minimum coefficient correlation
A1	42	5	15.48	0.513	0.071
C2	107	26	49.34	0.331	0.061
D1	118	28	52.38	0.403	0.046
D35	140	9	40.43	0.463	0.066
F7	107	20	38.90	0.398	0.055
S3	52	12	23.58	0.449	0.068

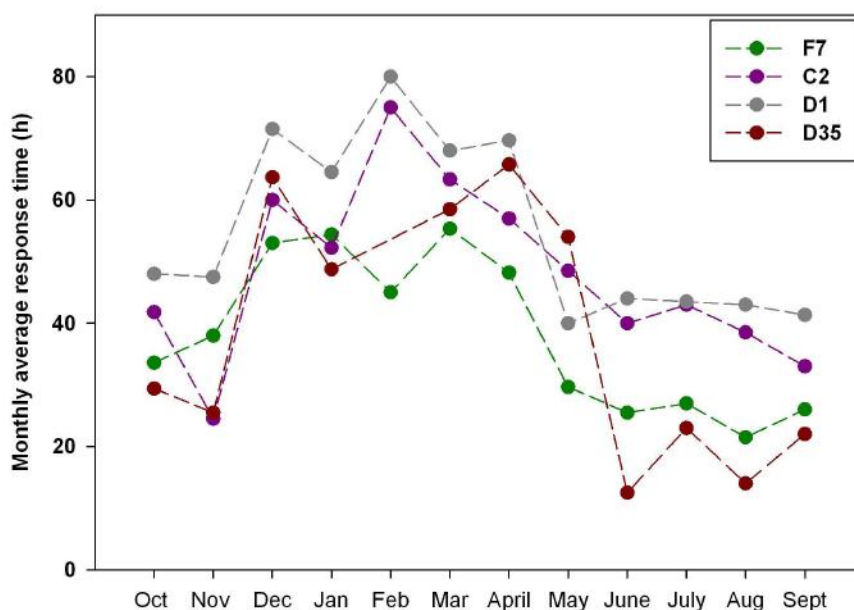


FIGURE 3.24: Monthly response time for the D1, D35, F7 and C2 boreholes. The response time varies seasonally for these boreholes ; the response time is lower during the summer period, from June to October.

### 3.5.8 Discussion

The sliding cross-correlation between rainfall and piezometric level shows that the response time is shorter during the summer.

Previous studies have also reported temporal variations in response time. Lee et al. (2006) showed that the response time is shorter during wet seasons in a chalk aquifer located in Southern England. They partially explain this evolution by seasonal variation in unsaturated zone thickness, with a major increase in time lag when the water table is below a critical depth. In this study, the relationship is reversed; the response time is shorter when the unsaturated zone is thicker (figure 3.25). Therefore, the seasonal variation in response time is not a consequence of the decrease in distance between soil and the water table but is more likely due to a variability of the transfer velocities in the unsaturated zone.

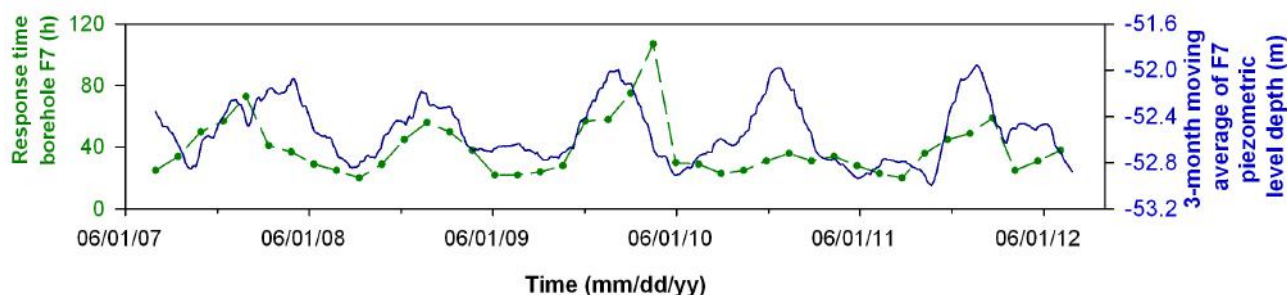


FIGURE 3.25: Time series of response time at the F7 borehole calculated for each sliding cross-correlogram window and of 3-month moving average of the piezometric level. The response time decreases when the thickness of the saturated zone increases.

Seasonal variability in the cross-correlation functions was observed by Larocque et al. (1998). These authors explained this evolution by the fact that during the high-water period, the water levels are higher, flooding some highly karstified fractures that transmit the pressure pulse more rapidly and directly. During the low-water period, these channels are unsaturated, and the pressure pulse is transmitted more slowly and homogeneously in the saturated zone through deeper and narrower fractures. In the present study, the response time is slower during the low-water period (figure 3.25), but a variability in the transfer velocity depending on the saturation of conduits or fractures is conceivable.

The saturation of the unsaturated zone depends on rainfall characteristics. Precipitation data do not show a high seasonal variability in the monthly rainfall quantity (figure 3.23). Nevertheless, the rainfall intensity varies seasonally, with a higher intensity during the summer period (June, July and August) (figure 3.20), where the response time is shorter (figure 3.24). Therefore, we show a link between rainfall intensity and response time at most of the boreholes : when the rainfall intensity increases, the response time decreases (figure 3.26).

The results therefore show that the seasonal variability in the impulse response, and more precisely in the response time, is influenced by the seasonal variability in the input forcing (precipitation) and of its effect on the hydrological process.

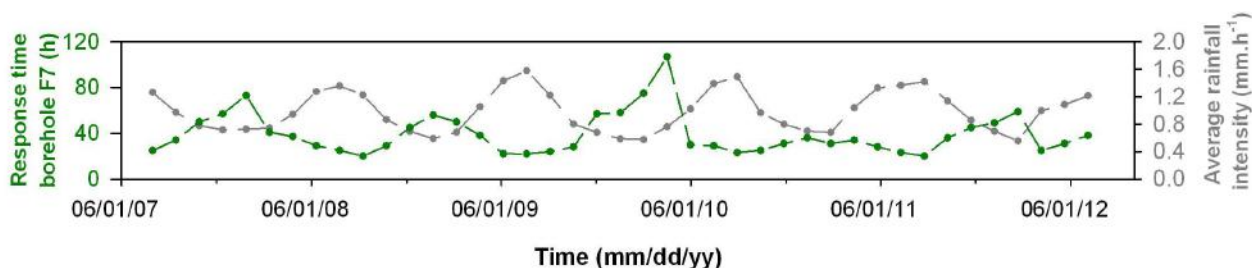


FIGURE 3.26: Time series of rainfall and response time at the F7 borehole. The rainfall and response time are anti-correlated, with a minimum of response time when the rainfall intensity is at a maximum.

From the results, a conceptual model of the aquifer behaviour is drawn, particularly for the epikarst. The epikarst is the upper part of the infiltration zone where the permeability and the porosity are high in comparison to the rock underneath (Klimchouk, 2004). The variability of porosity and permeability induces the development of an epikarstic aquifer if the efficient rainfall, is higher than the output flow, the water flow from the epikarst towards the transition and saturated zone (Mangin, 1975). There are two types of output flow : (1) a “low” or “diffuse” flow by percolation to the base of the epikarst, characteristic of low permeability volumes and (2) the “fast” or “concentrated” flow by conduits or large fractures. The concentrated flow occurs when the epikarst is sufficiently saturated to allow lateral transfers that drive water in the conduits (Aquilina et al., 2005; Williams, 2008). Furthermore, Trček (2007) shows that the epikarst zone discharges dependent of the water storage volume and thus of the epikarst saturation ; if the added volume of water is large, some of the water could be rapidly drained through large fractures into the epikarst conduit network. Thus, we can assume that the variability of the average water velocity in the infiltration zone depends on the epikarst saturation.

During the winter, and when a rainfall event occurs, it usually rains continuously during several days at a low intensity. Consequently, the difference between input and output flows of the epikarst is assumed to be small. It therefore takes more time to fill the epikarst aquifer, which induces a retardation of the "fast" transfer by conduits.

During the summer, the rainfall intensity is high and exceeds the output flow of the epikarst, which is rapidly saturated. Lateral flows occur rapidly in the epikarst and concentrate the transfer of water in preferential paths with a high permeability, inducing a “fast” transfer. In addition, the higher the rainfall intensity, the higher the piezometric level in the epikarstic aquifer. In the epikarst, the porosity and permeability increase exponentially towards the surface (Perrin et al., 2003). Thus, during high intensity rainfall events, some large fractures are flooded and rapidly transmit water towards the saturated zone.

The saturation in the epikarst could change depending on previous rainfall and air temperature. The variability in response time is larger during winter, corresponding to low rainfall intensities. This could be explained by the fact that if the rainfall event is less intense, the initial

conditions of the epikarst have more impact on its saturation velocity and so on the response time (figure 3.27).

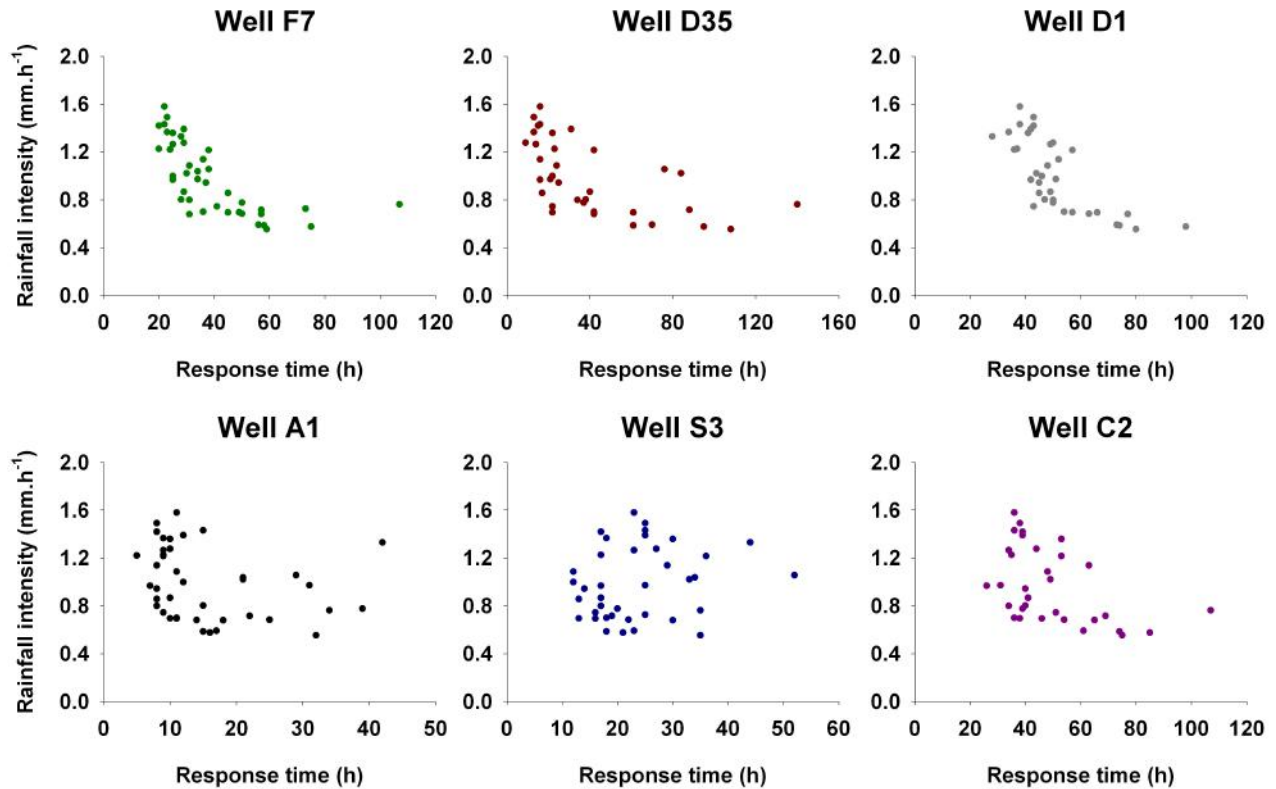


FIGURE 3.27: Rainfall intensity versus response time for each studied borehole. For the A1, D35, F7, D1 and C2 boreholes, the response time decreases when the rainfall intensity increases, and the response time appears to tend towards a limit at high rainfall intensities.

At most of the boreholes, the response time tends to reach a limit at high rainfall intensities (figure 3.27). This can be interpreted as the picture of the maximal transfer velocity (table 3.10), probably due to maximum saturation of the epikarst. The minimum response time varies depending on the borehole, between 8 and 38 h (table 3.10). The variability observed between the boreholes is most likely due to the heterogeneity of the epikarst.

TABLEAU 3.10: Results of the application of the sliding cross-correlogram between rainfall and the piezometric level : characteristics of response times and coefficient correlations of the time series.

Borehole	Minimum response time defined from the asymptote (h)
A1	8
C2	34
D1	38
D35	13
F7	21

### 3.5.9 Conclusion

In this study, we applied the sliding window cross-correlation method to analyse the seasonal variability of water transfer processes in a karst aquifer. We showed that its impulse response, and more particularly, its response time to rainfall, has a strong seasonality and gives information on the function of the unsaturated zone, which suggests the existence of an epikarst reservoir.

The karst aquifer is characterised by seasonal variability in response time, which is shorter during the summer. We explain this by variability in the input forcing, the rainfall intensity : an increase in rainfall intensity induces a decrease in response time. This evolution can be explained by variability in the epikarst saturation depending on rainfall intensity. During the summer, when rainfall intensity is higher, the epikarstic aquifer is quickly saturated, leading to fast and concentrated flows in the conduit porosities. In addition, high saturation of the epikarst induces the flooding of large conduits located in the upper zone of the epikarst that transmit the pressure pulse more rapidly and directly.

The conceptual model proposed, highlighted by seasonal variability in response time and hydrological processes, could be supported and validated by other methods, including geochemical or geophysical techniques.

### **3.6 Conclusion sur l'apport de l'étude de chroniques hydrodynamiques pour la compréhension du système karstique**

Dans cette partie, différentes méthodes de traitement de données ont été appliquées sur des chroniques pluviométriques et piézométriques afin de décrire et de caractériser le système karstique. Le site d'étude est caractérisé par une forte densité spatiale de piézomètres, ce qui en fait un site particulièrement intéressant. En effet, le forçage d'entrée peut être considéré comme uniforme sur toute la zone, au coefficient d'évapotranspiration près. Ainsi, une variabilité de la fonction de transfert entre la pluie et le niveau piézométrique est l'image d'une variation des processus hydrologiques.

Cette approche a permis de souligner la présence des différentes vitesses des écoulements au sein de cet aquifère karstique à partir des fonctions d'autocorrélation du niveau piézométrique (double pente de l'autocorrélation) et des fonctions de corrélation croisée pluie-piézométrie (forme de la fonction de corrélation croisée en pic suivi d'une pente douce). Les fonctions de gain (pluie-piézométrie) mettent en évidence la présence de réserves au sein de l'aquifère karstique. Ce stockage peut induire la présence d'eau à temps de résidence important.

Les analyses corrélatoires et spectrales mettent en évidence la présence d'écoulements très rapides au sein de l'aquifère : les temps de réponse sont de l'ordre de la dizaine d'heures pour la plupart des forages. L'utilisation de la méthode du corrélogramme croisé coulissant souligne une variabilité saisonnière des temps de réponse pour certains forages. Celle-ci est liée à la variabilité de l'intensité des pluies qui induit une variabilité des processus de saturation de la zone non saturée et notamment de l'épikarst et donc des mécanismes d'écoulements différents selon les saisons. La relation établie entre temps de réponse et intensité de la pluie met en évidence le caractère non linéaire de cet aquifère, en adéquation avec les résultats des calculs de fonction de cohérence. Cette relation a permis pour certains piézomètres de déterminer le temps de réponse minimal qui les caractérise.

L'étude spatiale de la fonction de transfert s'avère dans cette étude particulièrement intéressante en raison de la topographie du site d'étude. A partir de l'étude spatiale, un schéma conceptuel d'une partie des écoulements rapides présents dans l'aquifère a pu être élaboré : à l'image d'un bassin versant, au niveau de la zone saturée, la réponse impulsionnelle d'un piézomètre intègre les transferts horizontaux et verticaux qui ont lieu dans leur bassin d'alimentation. Plus le forage se situe en aval du dôme, plus l'arrivée des transferts latéraux liés à un événement pluvieux seront étalés temporellement. Ce modèle a permis d'estimer les vitesses d'écoulement dans la zone saturée, de l'ordre de 72 m/h. Ces vitesses sont cohérentes avec des résultats de traçages artificiels.



La variabilité temporelle de la réponse impulsionnelle clairement liée à la variabilité saisonnière de l'intensité de la pluie, mis en évidence par la méthode du corrélogramme croisé coulissant, souligne l'importance d'une parfaite connaissance du signal d'entrée du système. Ainsi, actuellement dans ce type de calcul, le signal d'entrée utilisé correspond à la précipitation brute. Or, le véritable signal d'entrée dans le système est la pluie nette ou à l'infiltration. L'utilisation de la pluie nette permettrait d'améliorer les interprétations réalisées à partir des fonctions d'analyses corrélatoires et spectrales mais nécessite une amélioration de l'estimation de l'évapotranspiration à l'échelle horaire. Néanmoins, cette approche pourrait être testée sur le système étudié, en raison de l'homogénéité de la couverture végétale et de la faible superficie du site.

# 4

## **Etude de l'aquifère karstique à partir de traceurs géochimiques et isotopiques**

L'objectif de ce chapitre est de caractériser le fonctionnement de l'aquifère karstique à partir de traceurs géochimiques et isotopiques. Comme il a été démontré par l'analyse par traitement du signal de données hydrodynamiques, les eaux souterraines d'un aquifère karstique sont composées de différentes masses d'eau aux vitesses d'écoulement variables, en réponse à une distribution des porosités au sein de l'aquifère. L'étude hydrodynamique a montré la présence de deux grands types de transferts, des transferts rapides, dont les vitesses peuvent atteindre quelques dizaines de mètres par heure et des transferts lents caractérisant des eaux souterraines dont le temps de résidence est estimé à quelques mois au minimum.

L'utilisation de traceurs géochimiques et isotopiques a pour but de discriminer les différentes masses d'eau qui composent l'aquifère en définissant leur composition et leur temps de résidence afin de pouvoir comprendre leurs origines, leurs parcours et leurs proportions relatives au sein de l'aquifère karstique en fonction des différents régimes hydrologiques. Afin d'étudier un large spectre des vitesses de transfert, la composition géochimique et isotopique des eaux souterraines est mesurée et étudiée à différentes échelles temporelles : lors de pics de crue pour étudier les transferts rapides et sur le long terme (pluri-annuels) pour étudier les transferts plus lents.

Ce chapitre s'organise en 4 parties. La première partie a pour but de souligner la forte distribution spatiale et temporelle des temps de résidence des eaux souterraines à partir de mesures ponctuelles de la composition géochimique et isotopique. La seconde partie repose sur l'étude de chroniques physico-chimiques, géochimiques et isotopiques à différentes échelles temporelles (pics de crue, pluri-annuelles) afin de discriminer les différentes masses d'eau composant les eaux souterraines et de déterminer leurs mécanismes d'écoulement au sein de l'aquifère. Dans une troisième partie, la variabilité saisonnière des mécanismes d'écoulement est abordée. Dans une quatrième partie, l'utilisation de traceurs de datation ( $\text{SF}_6$ , CFC,  $^3\text{H}/\text{He}$ ,  $^{39}\text{Kr}$  et  $^{29}\text{Ar}$ ) plus classiquement utilisés dans les milieux poreux ou fracturés, est testée dans ce type d'aquifère pour déterminer l'âge apparent des eaux souterraines. Leurs intérêts et leurs limites d'utilisation dans le milieu karstique seront abordés.

## 4.1 Une large distribution des temps de résidence des eaux souterraines

L'étude géologique de l'aquifère karstique du Dogger sur le bassin versant de la Douix de Léry démontre la présence d'une distribution des porosités au sein de l'aquifère allant de la porosité matricielle à la porosité de conduits d'ordre métrique. Cette distribution de la porosité peut induire une distribution des vitesses de transfert des eaux souterraines au sein de l'aquifère. Dans cette partie, nous proposons de mettre en évidence la distribution des temps de résidence des eaux souterraines grâce à l'utilisation de différents traceurs géochimiques (conductivité électrique, éléments majeurs,  $\delta^{18}\text{O}$ ,  $\delta^2\text{H}$ ,  $\delta^{13}\text{C}$  et radon).

### 4.1.1 Variabilité spatio-temporelle de la conductivité électrique des eaux souterraines

#### *Variabilité spatiale de la conductivité électrique de l'eau et des ions majeurs*

La variabilité de la conductivité électrique spécifique à 25°C des eaux souterraines est très importante sur le site d'étude allant de 0,370 à 2,550 mS/cm (figure 4.1). La conductivité électrique est organisée dans l'espace : les eaux souterraines les plus minéralisées se situent sous le centre du CEA ou à l'aval hydraulique du lieu de relargage des eaux usées de la station d'épuration (figure 4.1). Ces fortes valeurs sont induites par les activités industrielles du CEA. Les conductivités électriques les plus élevées sont systématiquement associées à de fortes teneurs en  $\text{Na}^+$  et  $\text{Cl}^-$  et à des rapports  $\text{Br}/\text{Cl}$  compris entre  $10^{-4}$  et  $10^{-5}$  correspondant au rapport  $\text{Br}/\text{Cl}$  de la halite. Ceci soutient l'hypothèse que les fortes conductivités électriques mises en évidence sur le site sont dues à des activités anthropiques, par exemple le salage des routes.

Pour les sources et forages qui ne sont pas influencés par les activités industrielles, la valeur moyenne de la conductivité électrique est de 0,465 mS/cm, valeur cohérente avec l'environnement carbonaté naturel (Ford & Williams, 1989). Elle varie entre 0,370 mS/cm pour le forage A2 et 0,583 mS/cm pour le forage B4. Dans un milieu carbonaté, la conductivité électrique est contrôlée principalement par l'équilibre calco-carbonique : une variabilité de la conductivité électrique est l'image des conditions d'équilibre de l'eau souterraine avec la roche encaissante différente.

#### *Distribution de la fréquence de minéralisation*

Selon Bakalowicz (1979), les différentes modalités des distributions de fréquence de la conductivité électrique représentent différentes masses d'eaux distinctes géochimiquement. Leurs conductivités électriques moyennes respectives dépendent de leur origine et de leurs temps de résidence.

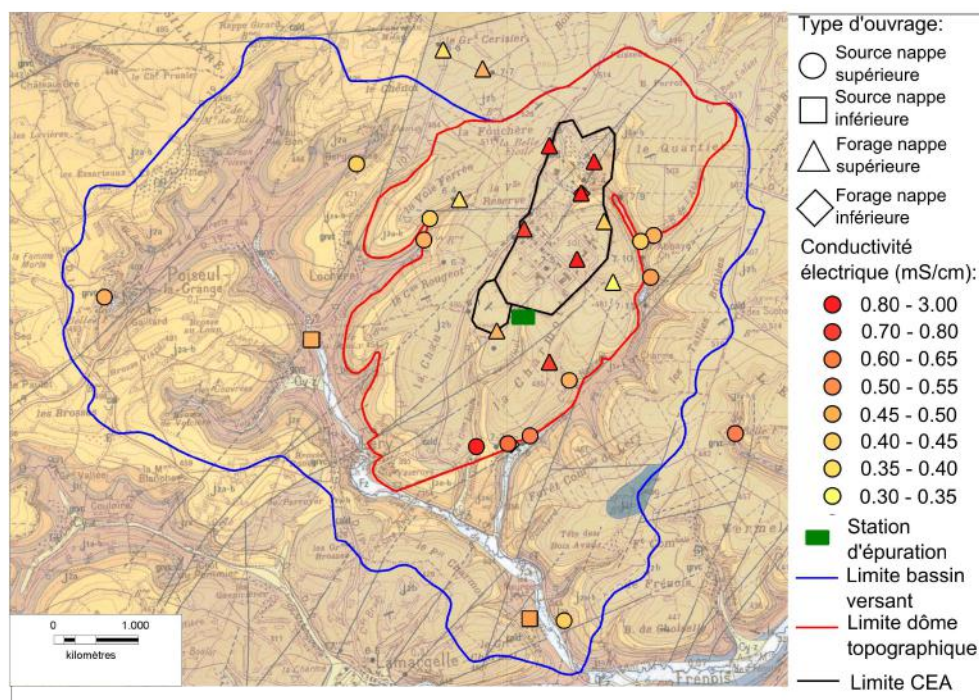


FIGURE 4.1: Conductivité électrique des eaux souterraines lors de la campagne de prélèvements de juillet 2012 (hors pic de crue).

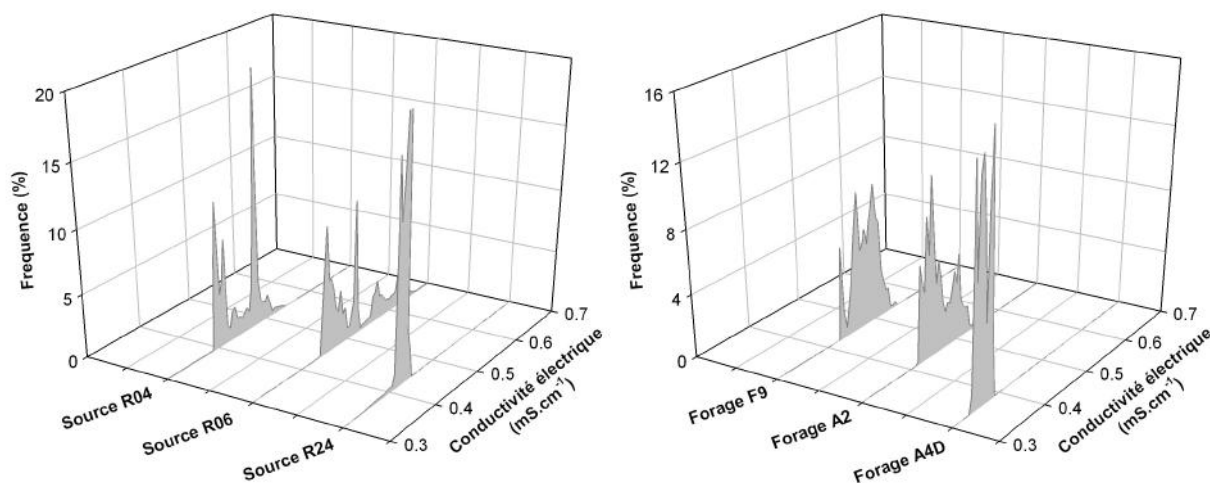


FIGURE 4.2: Distributions de fréquence de la conductivité électrique de l'eau souterraine.

Les distributions de minéralisation au niveau de 3 sources et de 3 forages ont été représentées graphiquement (figure 4.2) : les distributions de fréquence de la conductivité électrique de l'eau souterraine sont plurimodales : ceci démontre que les eaux souterraines sont composées de plusieurs masses d'eau dont les proportions varient au cours du temps. Le nombre de modalités et l'étalement des distributions des fréquences varient selon les ouvrages, soulignant une variabilité temporelle et spatiale des processus d'écoulement des eaux souterraines. L'étalement des distributions de fréquences est plus important sur les sources que sur les forages. Ceci met en évidence qu'au niveau des forages, le nombre de masses d'eau intervenant dans les écoulements souterraines est plus faible.

La conductivité électrique correspond à la minéralisation totale de l'eau souterraine, il s'agit d'un paramètre global de la composition géochimique, qui ne permet pas de déterminer l'origine des masses d'eau. Dans la suite de l'étude, la composition géochimique de l'eau souterraine sera prise en compte afin de mieux caractériser les différentes masses d'eau.

*La conductivité électrique spécifique de l'eau souterraine varie selon les points de mesure et au cours du temps soulignant la présence de plusieurs masses d'eau au sein de l'aquifère dont les proportions relatives varient en fonction de l'ouvrage étudié.*

#### 4.1.2 Signatures isotopiques, $\delta^{18}\text{O}$ et $\delta^2\text{H}$ , des eaux souterraines : variabilité saisonnière du gradient altitudinal

Les signatures isotopiques des sources varient en fonction de l'altitude des points de prélèvements (figure 4.3), notamment lors de la campagne de mars 2011 : plus la source échantillonnée se situe à faible altitude, plus sa signature isotopique est enrichie. Les sources situées en aval des bassins de la station d'épuration sortent du gradient altitudinal, soulignant l'impact non négligeable des rejets d'eaux usées sur la signature isotopique des eaux souterraines de ces sources (figure 4.3).

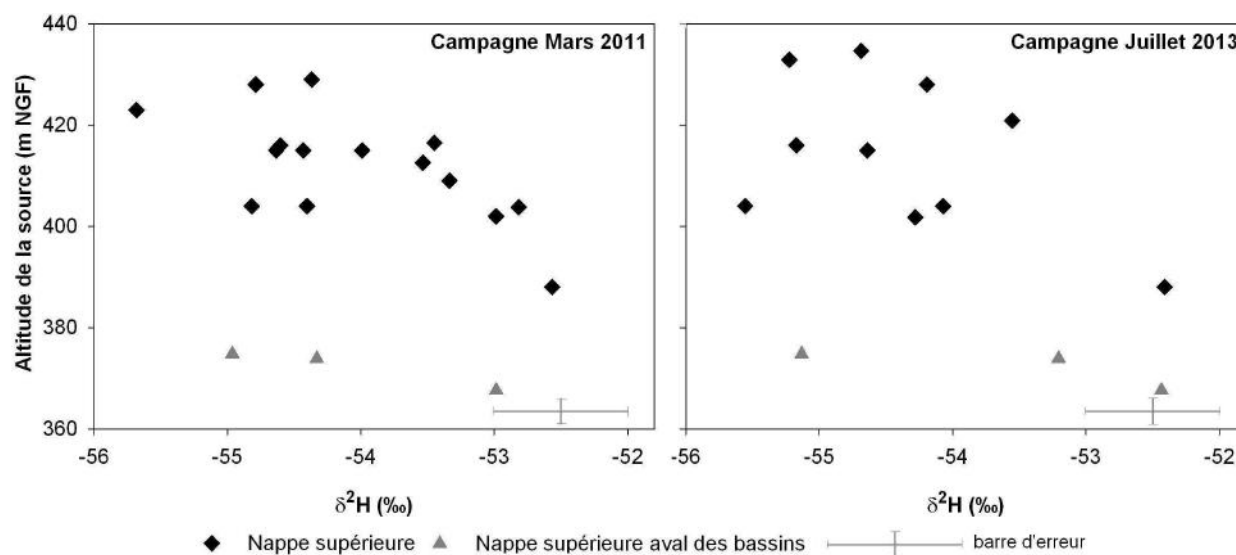


FIGURE 4.3: Signature isotopique des eaux souterraines des sources en fonction de l'altitude de celles-ci lors de deux campagnes de mesures, en mars 2011 et en juillet 2013.

Le gradient altitudinal de la composition isotopique des eaux souterraines est l'image d'un gradient altitudinal dans les précipitations, mis en évidence par de nombreux auteurs (Fiedman et al. 1964 ; Vogel et al., 1975 ; Dincer et al, 1970 ; Celle et al. 2000) : la composition isotopique des précipitations est de plus en plus appauvrie en  $\delta^{18}\text{O}$  et  $\delta^2\text{H}$  quand l'altitude augmente, avec des gradients altitudinaux compris généralement entre -0,1 et -0,6 ‰/100m d'altitude en

$\delta^{18}\text{O}$  et -1 et -4 ‰/100m en  $\delta^2\text{H}$  (IAEA, 2006). Différents processus sont à l'origine de cette variabilité : (1) la diminution de la température avec l'altitude, (2) l'enrichissement en  $\delta^{18}\text{O}$  et  $\delta^2\text{H}$  par évaporation des gouttes de pluie au cours de leur chute dans l'atmosphère, qui est plus importante à basses altitudes (Gat et Dansgaard, 1972), (3) une origine différente des masses d'eau à la base et au sommet des montagnes.

Le gradient altitudinal des sources évolue dans le temps. En effet, en mars 2011, le gradient altitudinal est plus marqué qu'en juillet 2013 (figure 4.3). En mars, le débit des sources est à son maximum. L'eau est probablement composée pour une part importante d'eau de recharge récente, la signature isotopique des eaux est alors fortement influencée par les eaux de pluie récentes : le gradient altitudinal des pluies est faiblement filtré par le système karstique et se retrouve dans les eaux souterraines. En juillet, le gradient altitudinal est moins marqué, la signature isotopique des eaux souterraines est moins organisée, ceci peut s'expliquer par la variation selon les sources des proportions de mélange entre les masses d'eau composant les eaux souterraines et souligne la variabilité de l'âge apparent des sources.

*La variabilité temporelle du gradient altitudinal de la signature isotopique des eaux de sources met en évidence que les eaux souterraines correspondent à un mélange de masses d'eau dont les proportions respectives varient dans le temps et l'espace (fonction des sources et des saisons).*

### 4.1.3 Relation entre le temps de résidence et le débit moyen des sources

La concentration en radon et le rapport Ca/Mg fournissent des informations sur le temps de résidence moyen de l'eau souterraine. Plus le rapport Ca/Mg est faible, plus le temps de résidence de l'eau souterraine est important, cette interprétation repose sur le fait que la dissolution de la dolomite est plus lente que celle de la calcite et suppose la présence de dolomite dans le système (Bakalowicz, 1979; Fairchild et al., 2000; Moral et al., 2008). La concentration en radon dans l'eau souterraine est contrôlée par les caractéristiques lithologiques de la roche encaissante et par le temps de résidence de l'eau dans l'aquifère (Batiot-Guilhe et al., 2007; Adinolfi et al., 2008; Savoy et al., 2011). Plus le temps de résidence de l'eau souterraine est important, plus l'activité en radon sera élevée.

Lors de la campagne de cartographie de juillet 2012, les concentrations en radon, en  $\text{Ca}^{2+}$  et  $\text{Mg}^{2+}$  ont été mesurées dans les eaux souterraines de certaines sources et varient en fonction du débit moyen des sources (figure 4.4) : plus le débit moyen de la source échantillonnée est important, plus la concentration en radon et le rapport Ca/Mg sont élevés (figure 4.4).

Au niveau des sources les plus productives (débit important), le rapport Ca/Mg des eaux souterraines est élevé. Ceci suggère que les eaux alimentant ces sources sont moins en équilibre avec la roche encaissante que les eaux souterraines des sources à plus faible débit, ceci est lié à une surface de contact eau-roche et/ou un temps de résidence dans l'aquifère plus faible. Les

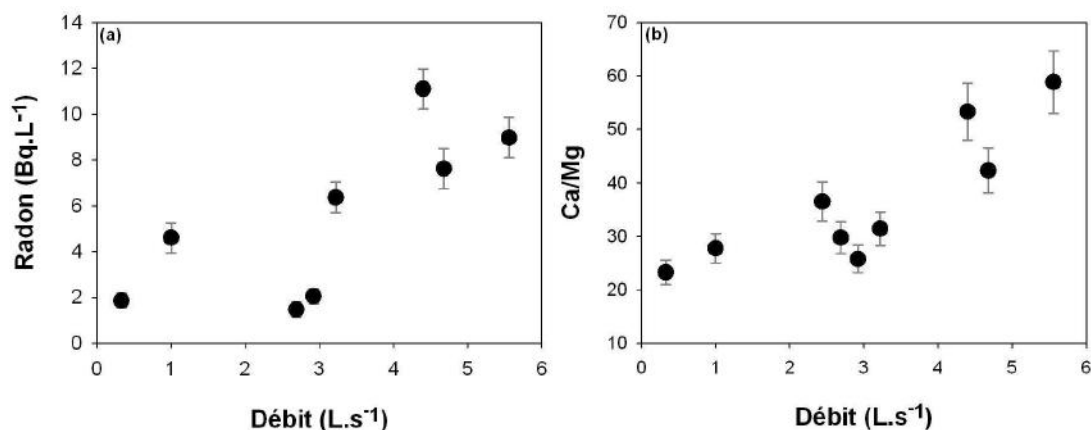


FIGURE 4.4: Concentration en radon (a) et rapport Ca/Mg (b) des eaux souterraines (juillet 2012) en fonction du débit moyen des sources (annexe 3).

eaux souterraines alimentant les sources les plus productives sont probablement composées en proportion importante d'eau de recharge récente qui peut s'écouler rapidement par les conduits ou les fractures ouvertes.

Les eaux souterraines caractérisées par des rapports Ca/Mg élevés, interprétés précédemment comme l'image d'un âge apparent de l'eau souterraine faible, sont associées à des concentrations en radon importantes (figure 4.4). La sens de la corrélation entre le rapport Ca/Mg et la concentration en radon est inattendue. Ainsi, la variation de la concentration en radon n'est pas l'image d'une variation du temps de résidence de l'eau, mais illustre une tendance au dégazage. Les sources dont le temps de résidence est plus important (Ca/Mg faible) sont caractérisées par des débits plutôt faibles. Lorsque le débit des sources est faible, la surface d'échange eau-atmosphère est grande par rapport au volume total d'eau constituant la source, le dégazage du radon vers l'atmosphère impacte donc significativement la concentration en radon mesurée.

*La variation du rapport Ca/Mg des eaux souterraines en fonction des sources suggère une variation de l'âge apparent des eaux souterraines en fonction du débit moyen des sources. Le rapport Ca/Mg souligne une proportion importante d'eau de recharge récente dans la composition des sources les plus productives (débit important, suggérant que ces sources sont préférentiellement alimentées par des écoulements rapides dans des conduits ou des fractures.*

#### 4.1.4 Augmentation du temps de résidence des eaux souterraines de l'amont vers l'aval de l'hydrosystème

L'étude hydrodynamique de l'aquifère a montré une variabilité du temps de réponse du niveau piézométrique aux événements pluvieux en fonction de la position du forage sur le dôme hydrogéologique : les piézomètres situés dans la partie amont du dôme hydrogéologique sont caractérisés par des temps de réponse plus faibles que ceux situés à l'aval. Ceci suggère la



présence d'écoulements rapides dans la zone saturée de l'amont vers l'aval. Dans cette partie, la composition géochimique et isotopique est étudiée en fonction de la position des forages échantillonnés sur le dôme hydrogéologique (distance séparant le forage du haut du dôme). Les signatures de deux traceurs varient de façon organisée : le  $\delta^{13}\text{C}$  et le radon (figure 4.5).

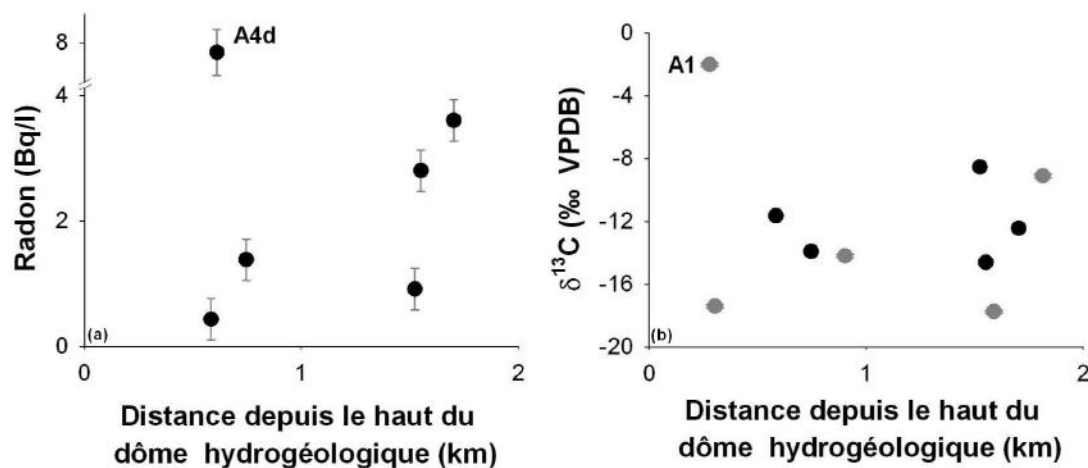


FIGURE 4.5: Concentration en radon (a) et en  $\delta^{13}\text{C}$  (b) des eaux souterraines prélevées dans des forages (juillet 2012) en fonction de la distance par rapport au sommet du dôme. Les points noirs correspondent aux forages prélevés à l'aide de pompes, les points gris correspondent aux forages prélevés à la canne.

Plus les piézomètres se situent vers l'aval du dôme hydrogéologique, plus les concentrations en radon des eaux souterraines prélevées sont élevées excepté pour le piézomètre A4D. La concentration en radon est fonction du temps de résidence de l'eau et des caractéristiques lithologiques de la roche encaissante (Adinolfi et al., 2008). Supposant les caractéristiques lithologiques homogènes au sein de l'aquifère (des analyses de la concentration en radium de la roche pourraient être effectuées pour valider cette hypothèse), l'augmentation de la concentration en radon suggère une augmentation du temps de résidence moyen des eaux souterraines de l'amont vers l'aval du dôme, ce résultat est cohérent avec le schéma proposé lors de l'étude hydrodynamique (partie 3.4).

La composition isotopique  $\delta^{13}\text{C}$  des eaux souterraines varie spatialement : les eaux souterraines prélevées à l'aval du dôme sont légèrement plus enrichies en  $\delta^{13}\text{C}$  que celles prélevées à l'amont. Cet enrichissement montre l'augmentation de l'influence de la dissolution de la calcite dans la signature isotopique en  $\delta^{13}\text{C}$ . Ceci illustre une augmentation relative du temps de résidence des eaux souterraines vers l'aval du dôme, en cohérence avec l'évolution de la concentration en radon.

*La variabilité spatiale des concentrations en radon et des signatures isotopiques en  $\delta^{13}\text{C}$  mettent en évidence une augmentation relative du temps de résidence des eaux souterraines de l'amont vers l'aval du dôme. Ce résultat soutient le modèle conceptuel proposé à partir des données hydrodynamiques (partie 3.4).*

## 4.2 Variabilité des mécanismes d'écoulement des eaux souterraines

Durant environ deux ans et demi (novembre 2010 à février 2013), la conductivité électrique et la température des eaux souterraines ont été mesurées au niveau de 13 forages de la nappe supérieure et 8 sources.

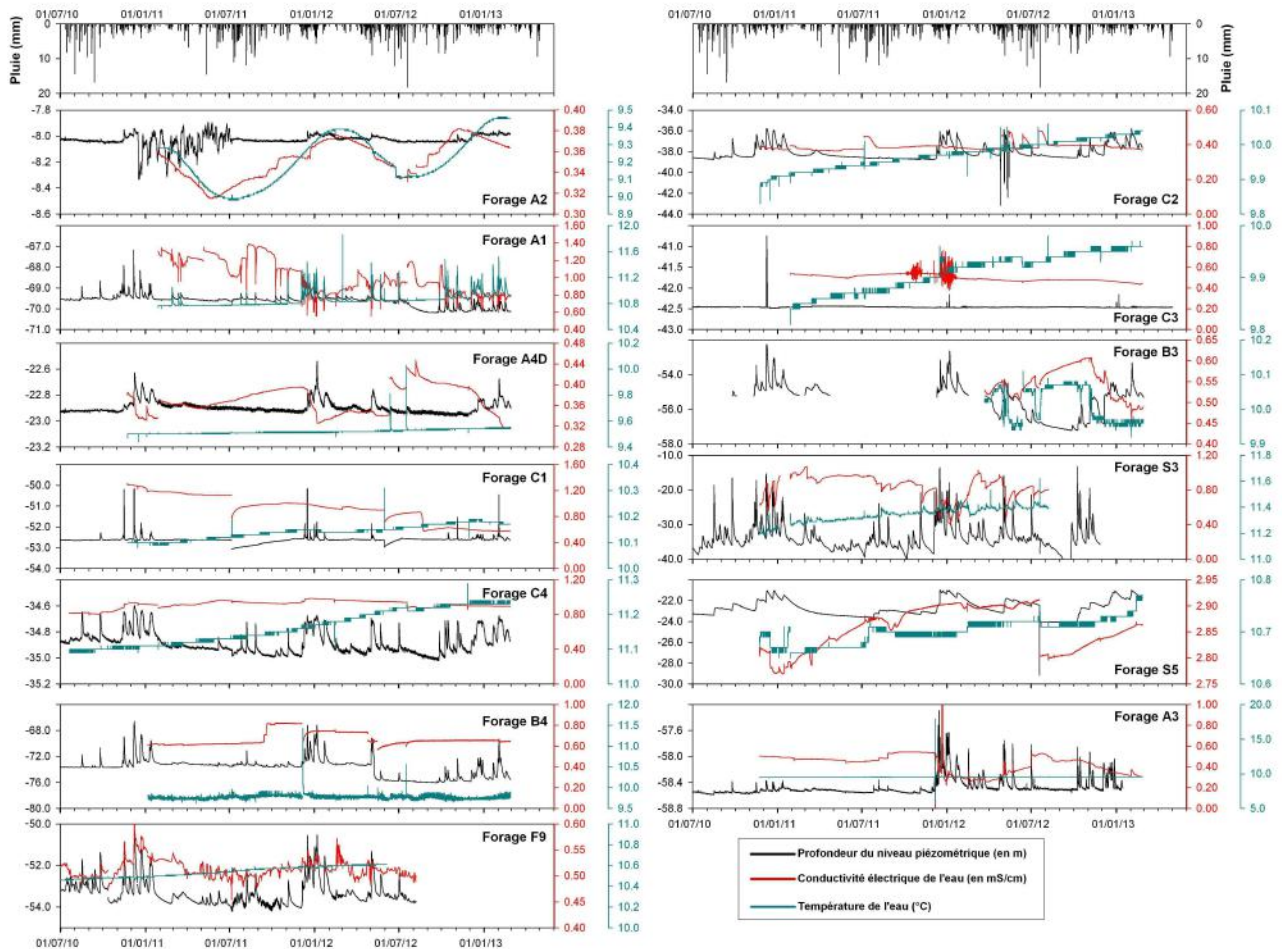


FIGURE 4.6: Chroniques pluviométriques, piézométriques, de conductivité électrique et de température de l'eau souterraine au niveau des forages de la nappe supérieure (juillet 2010- février 2013).

Les chroniques obtenues (figure 4.6) et (figure 4.7) mettent en évidence une très forte variabilité de l'évolution temporelle de ces paramètres selon les forages. On peut observer (i) une variation saisonnière de la conductivité électrique et de la température de l'eau au niveau du forage A2, (ii) une modification de la conductivité électrique lors de pics de crue pour les forages A4D, A1, C2, B3, S5 (hausse ou baisse de la conductivité en crue et réponse plus ou moins tardive); (iii) une absence de variation des paramètres physico-chimiques au cours du temps (sauf artéfact de mesure) pour les forages C1, C3, A3. Cette très forte variabilité est l'image de l'hétérogénéité de la structure de l'aquifère, chaque piézomètre fournit une information locale

sur les mécanismes d'écoulements, une information en relation avec les porosités qu'il recoupe.

Dans cette partie, les mécanismes d'écoulement sont étudiés, les plus représentatifs du système à partir de chroniques physico-chimiques, géochimiques et isotopiques des eaux souterraines sont présentés. Les données sont étudiées à deux échelles temporelles. D'une part, des chroniques pluri-annuelles sont analysées pour étudier les transferts lents. D'autre part, des chroniques haute fréquence lors de pics de crue sont analysées pour étudier les transferts rapides.

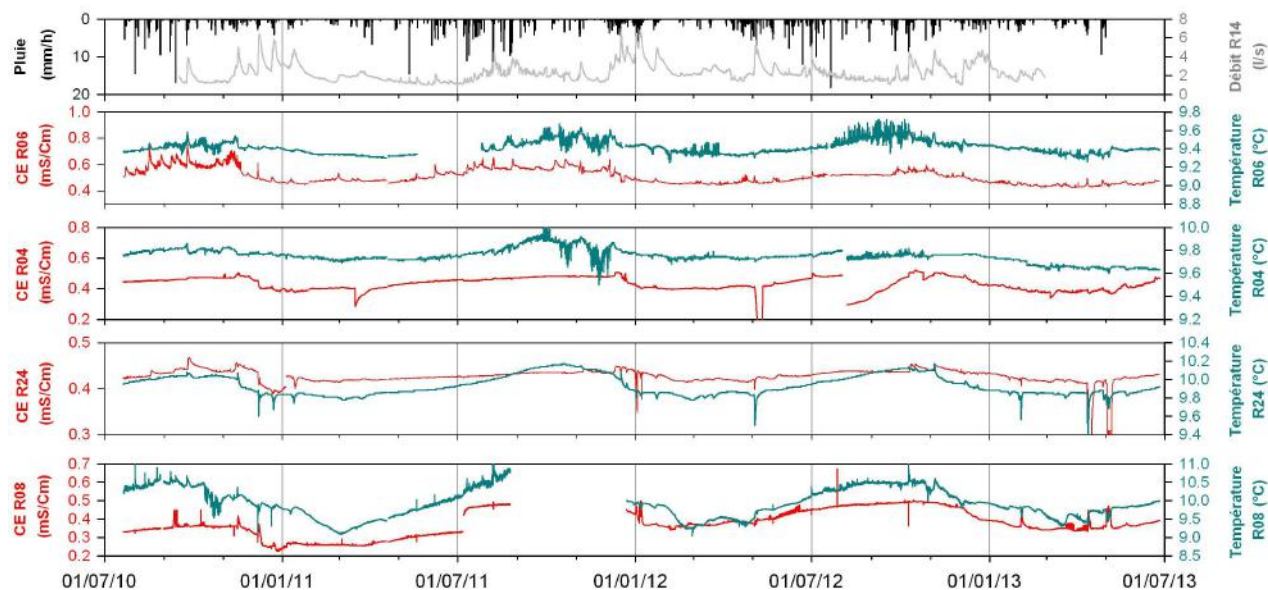


FIGURE 4.7: Chroniques de la conductivité électrique et de la température de l'eau souterraine au niveau des sources de la nappe supérieure (juillet 2010- juillet 2013).

#### 4.2.1 Transferts rapides en réponse à un événement pluvieux

L'étude hydrodynamique a mis en évidence que le niveau piézométrique et le débit des sources varient rapidement après un événement pluvieux. Dans cette partie, on s'intéresse à l'origine et aux processus d'écoulement des masses d'eaux qui induisent l'augmentation du niveau piézométrique et du débit des sources. Pour cela, des chroniques hautes fréquences de paramètres physico-chimiques (conductivité électrique, température, pH) et de la composition en traceurs géochimiques et isotopiques lors de pics de crue obtenues au niveau de divers sources et forages seront étudiées.

La signature en traceurs isotopiques et géochimiques a été suivie lors de deux pics de crue. Le pic de crue, RE1, a eu lieu en mars/avril 2010, il correspond à une période pluvieuse de plusieurs jours, avec une précipitation totale de 54 mm en 5 jours. Le pic de crue, RE2, correspond à deux événements de pluie de forte intensité (orage) successifs, le premier correspond à une pluie de 94 mm tombée en 16 heures et le second, 13 mm en 4 heures.

### 4.2.1.1 Arrivée rapide d'eau de surface

Différents traceurs géochimiques et isotopiques mettent en évidence la présence d'une arrivée rapide d'eau de surface (conductivité électrique, éléments majeurs, isotopes stables, tritium). Dans cette partie, dans un premier temps, des arrivées rapides d'eau de surface sont mises en évidence au niveau de forages grâce au suivi de la conductivité électrique. Dans un second temps, lors de pics de crue, la composition géochimique des eaux souterraines au niveau de deux sources est étudiée afin de calculer la proportion relative de cette masse d'eau.

#### *Diminution de la conductivité électrique de l'eau souterraine : traceur d'arrivée rapide d'eau de surface.*

Sur la totalité des 13 forages étudiés, les forages A4D, A1 et C2 montrent des variations de niveau piézométrique associées à des diminutions de la conductivité électrique (figure 4.8). La diminution de la conductivité électrique de l'eau souterraine est associée à des arrivées au sein de la zone saturée d'eaux de surface, peu minéralisées par rapport aux eaux souterraines pré-événements. Cette composante est particulièrement visible sur une période allant de l'automne jusqu'au printemps. Entre les événements de recharge, la conductivité électrique augmente soulignant la part grandissante d'eau minéralisée issue de l'infiltration lente ou diffuse.

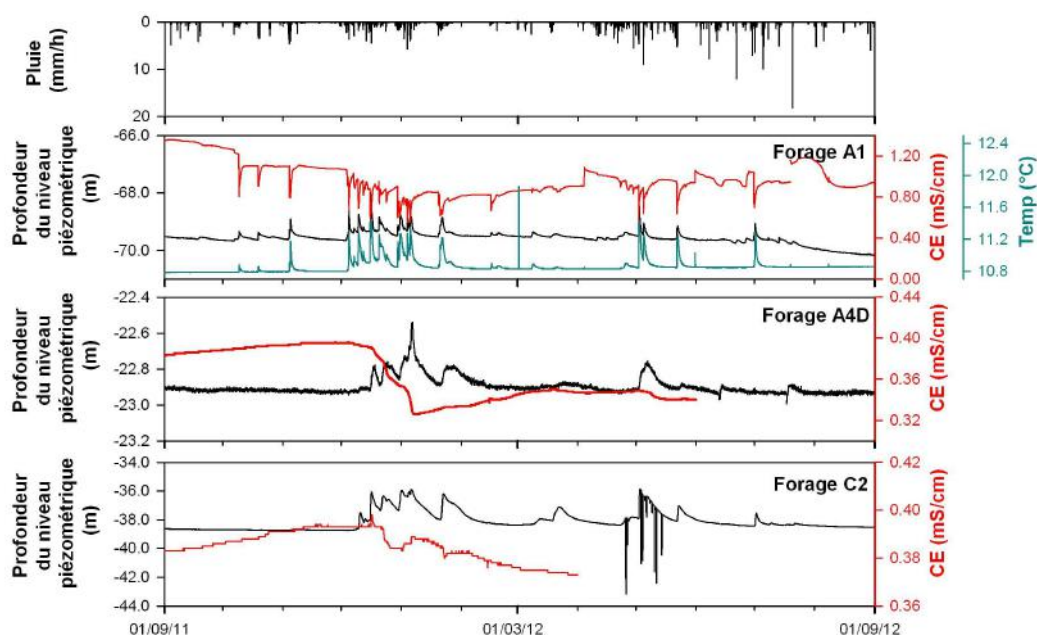


FIGURE 4.8: Chroniques du niveau piézométrique, de la conductivité électrique (CE) et de la température de l'eau au niveau des forages A1, A4D et C2.

Le forage A1 est un des piézomètres les plus réactifs en terme de piézométrie avec une réponse à tous les événements pluvieux en été et en hiver. La conductivité électrique de l'eau souterraine chute brutalement à chaque variation du niveau piézométrique illustrant des arrivées d'eau de surface. Les variations de conductivité électrique sont associées à des augmentations de

température tout au long de l'année. Généralement, les variations de température lors d'arrivées d'eau de surface suivent les températures extérieures, diminution en hiver et augmentation en été. La présence d'une zone chauffée dans le sous-sol à proximité explique l'augmentation systématique de la température. La corrélation croisée entre le niveau piézométrique et la température de l'eau souligne l'absence de décalage temporel entre les deux paramètres (avec un coefficient de corrélation de 0,92). La variation piézométrique est l'image d'un transfert de masse depuis la surface par des conduits et reflète la présence de connections importantes entre sol et la zone non saturée.

**Variation de la composition géochimique et isotopique de la source R24 lors du pic de crue RE2 : mise en évidence de masse d'eau à très faible temps de résidence (quelques heures).**

Lors du pic de crue RE2, la composition géochimique de la source R24 est modifiée (figure 4.9).

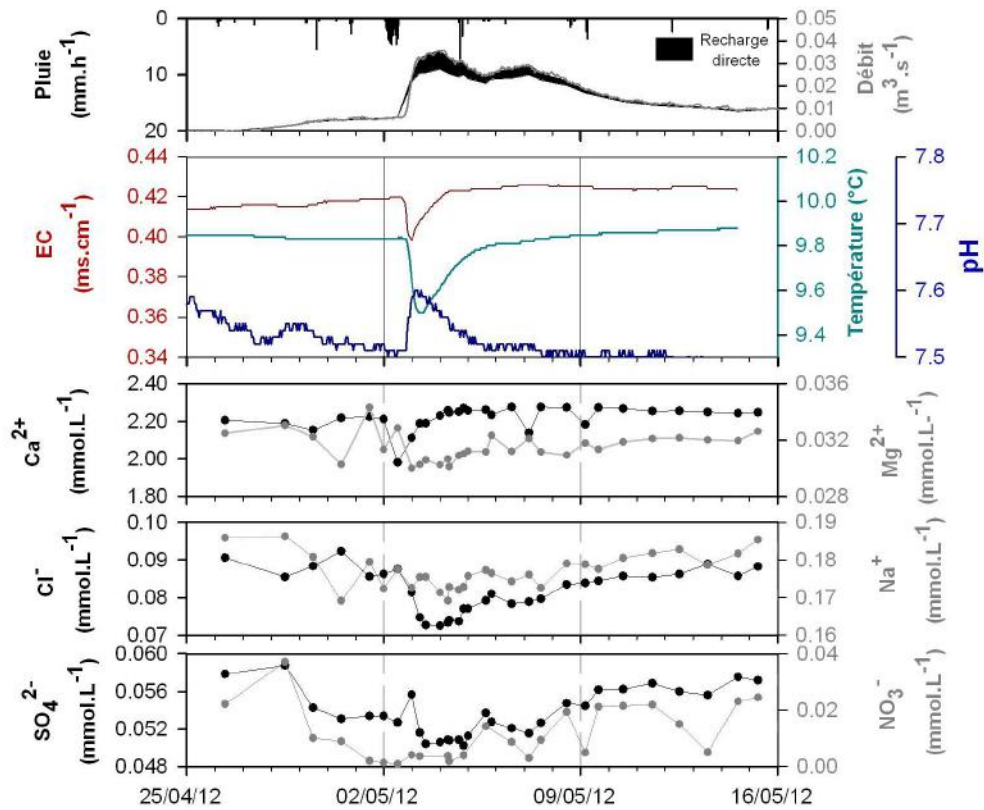


FIGURE 4.9: Evolution des précipitations, des paramètres physico-chimiques et des concentrations en éléments majeurs des eaux souterraines au niveau de la source R24 lors du pic de crue RE2. L'aire noire représente la partie du débit due à la recharge directe d'eau de pluie estimée par calcul de mélange à partir de la concentration en  $\text{Cl}^-$  dans les eaux souterraines et dans l'eau de pluie.

Le pic de crue RE2 est composé de deux événements de recharge. Lors du premier événement de pluie, les paramètres physico-chimiques de la source R24 changent brutalement avec une diminution de la conductivité et de la température et une augmentation du pH suivi d'un retour au

niveau de base pour tous les paramètres. Lors du second événement de recharge, les paramètres physico-chimiques restent stables : les deux événements pluvieux n'induisent pas exactement les mêmes mécanismes de recharge. Ainsi, les processus de recharge varient en fonction de l'état de l'aquifère avant l'événement pluvieux, par exemple la saturation de l'épikarst et/ou de la caractéristique de l'événement pluvieux (intensité, cumul). Ceci a également été mis en évidence par l'étude hydrodynamique et notamment par la variabilité des temps de réponse en fonction de l'intensité des pluies (partie 3.5).

*Variation de la composition géochimique des eaux souterraines lors du pic de crue.*

L'évolution temporelle lors du pic de crue des concentrations en anions et cations majeurs a été étudiée par une analyse en composantes principales à l'aide du logiciel xlstat (figure 4.10). L'analyse en composantes principales a été réalisée à partir de 30 individus (échantillons) et de 10 variables (débit, température, pH, conductivité électrique, éléments majeurs). Les données sont relativement structurées : les deux premiers facteurs principaux de l'ACP expriment 61 % de la variance totale. L'axe F1 (43,5 % de la variance exprimée) est principalement porté par la température et les ions de surface ( $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Cl}^-$  et  $\text{SO}_4^{2-}$ ) dans la partie positive et le débit dans la partie négative, ceci met en évidence une dilution des ions par l'arrivée d'eau de surface. L'axe F2 (17,1 % de la variance exprimée) est porté par la conductivité électrique et la concentration en  $\text{Ca}^{2+}$ . Il faut noter que la concentration en  $\text{Ca}^{2+}$  est indépendante du débit. Ainsi, les variations en calcium ne sont pas synchrones à la variation du débit.

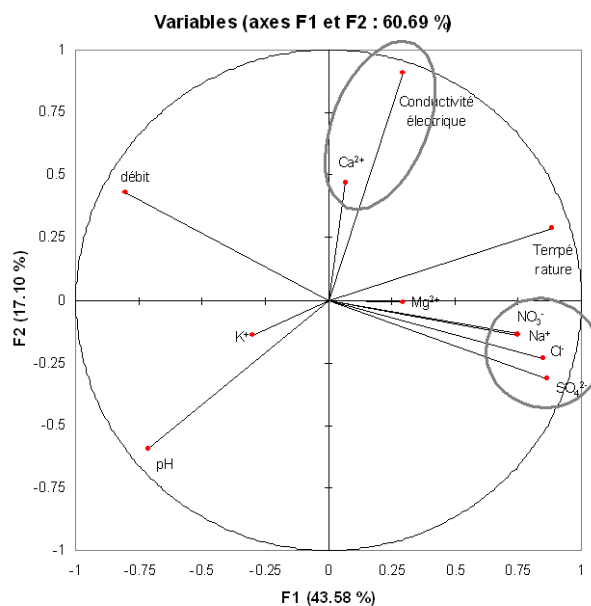


FIGURE 4.10: Analyses en composantes principales des paramètres physico-chimiques et des concentrations en anions et cations majeurs lors du pic de crue RE2 des eaux souterraines de la source R24.

Ainsi, lors de l'événement pluvieux RE2 au niveau de la source R24, deux types de recharge directe ont été mis en évidence :

- *une recharge directe à vitesse de transfert élevée* qui est à l'origine de la diminution de la concentration en  $\text{Ca}^{2+}$  et de la conductivité, de la température de l'eau et de l'augmentation du pH au début de l'événement pluvieux. L'augmentation du pH et la diminution de la concentration en calcium soulignent la présence d'un transfert extrêmement rapide. En effet, la diminution du pH met en évidence qu'au passage de l'eau dans la zone non saturée, celle-ci n'a pas eu le temps de se charger en  $\text{CO}_2$ , ceci signifie que l'équilibre  $\text{CO}_{2\text{g}}-\text{CO}_{2\text{aq}}$  n'est pas atteint, or la demi-vie de cet équilibre est de quelques minutes (Langmuir, 1997). Ainsi, la vitesse de transfert de cette masse d'eau est extrêmement rapide, de l'ordre de l'heure,
- *une recharge directe d'eau de surface plus lente* mise en évidence par l'anti-corrélation entre le débit et les concentrations en  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Cl}^-$  et  $\text{SO}_4^{2-}$ . La concentration en  $\text{Ca}^{2+}$  ré-augmente alors que les concentrations en ions  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Cl}^-$  et  $\text{SO}_4^{2-}$  continuent de diminuer : l'eau de recharge à l'origine de la baisse de la concentration en  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Cl}^-$  et  $\text{SO}_4^{2-}$  est donc en équilibre avec les carbonates. La demi-vie de l'équilibre eau-calcite est de quelques jours à quelques semaines (Langmuir, 1997). Ainsi, cette masse d'eau provenant de la surface est caractérisée par un temps de résidence de l'ordre de la semaine.

*Estimation de la proportion d'eau de recharge rapide par décomposition de l'hydrogramme géochimique.*

Le traceur  $\text{Cl}^-$  est un élément conservatif. La variation de la concentration en  $\text{Cl}^-$ , anti-corrélée avec le débit met en évidence une arrivée d'eau de surface. La décomposition de l'hydrogramme géochimique permet d'estimer la proportion de la masse d'eau de recharge récente, on se reportera à l'équation donnée dans la partie 2.3.2.6. Si l'on suppose un mélange binaire entre de l'eau de pluie (dont la concentration en  $\text{Cl}^-$  de la pluie est supposée constante durant l'épisode de pluie et égale à 0,023 mmol/L) et de l'eau souterraine pré-événement, la proportion d'eau de recharge rapide peut être estimée par décomposition de l'hydrogramme de crue. A partir de la décomposition de l'hydrogramme géochimique, la recharge directe est estimée à 9 % du débit total de la source sur l'ensemble de l'épisode de crue (figure 4.9).

#### ***Variation de la composition isotopique de la source R14 lors du pic de crue RE1 : calcul de proportion de la part de mélange d'eau récente***

Au niveau de la source R14, la signature géochimique n'est pas décrite car elle est affectée par les rejets de la station d'épuration située en amont hydraulique. Les signatures isotopiques en  $\delta^{18}\text{O}$  et en tritium de la source R14 sont appauvries lors du pic de crue RE1 (figure 4.11). Lors de cet événement, la signature en tritium et en  $\delta^{18}\text{O}$  de la pluie est plus faible que celle de l'eau souterraine pré-événement. L'appauvrissement des signatures isotopiques souligne une arrivée d'eau de recharge directe.

Si l'on suppose un mélange binaire entre de l'eau de pluie et de l'eau souterraine pré-événement, la proportion d'eau de recharge rapide peut être estimée par décomposition de l'hydrogramme

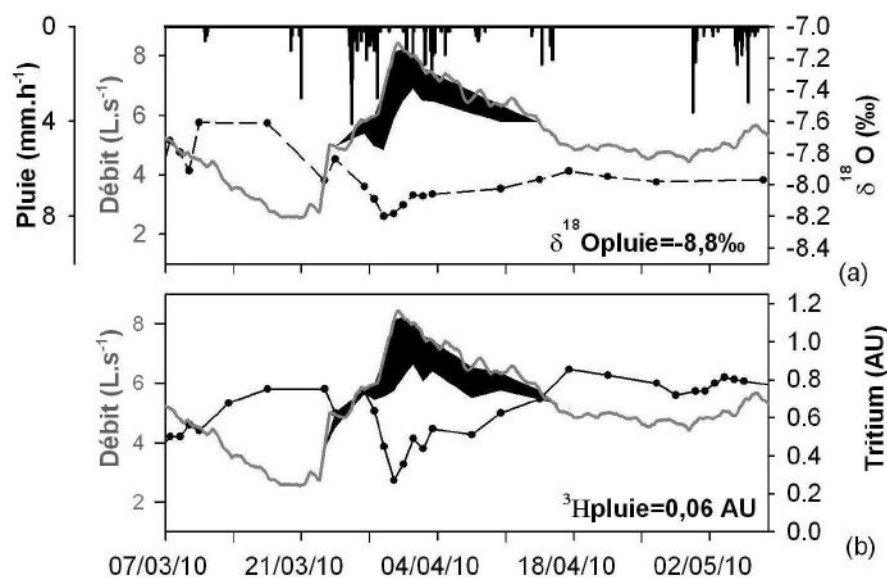


FIGURE 4.11: Pluie, débit et signature isotopique,  $\delta^{18}\text{O}$  et tritium de la source R14 lors du pic de crue RE1. Lors de l'événement pluvieux, la signature isotopique de la pluie vaut en  $\delta^{18}\text{O}$ ,  $-8,8\text{‰}$  et en  $^3\text{H}$ ,  $0,06\text{ AU}$ . L'aire noire représente la partie du débit due à la recharge directe d'eau de pluie estimée par calcul de mélange, à partir des données  $\delta^{18}\text{O}$  et  $^3\text{H}$ .

de crue. On se reportera à l'équation donnée dans la partie 2.3.2.6. La composition isotopique de la pluie a été mesurée pour cet événement :  $\delta^{18}\text{O} = -8,8\text{‰}$  et  $^3\text{H} = 0,06\text{ AU}$ . La proportion d'eau de surface rapide qui alimente la source R14 lors de ce pic de crue varie au cours de l'événement et atteint un maximum de 30 % du débit total. Sur la totalité de l'événement, cela représente environ 7,5 % à 8 % du débit total (figure 4.11).

Lors des pics de crues des arrivées d'eau de recharge rapides sont mises en évidence grâce à une variabilité significative entre la signature isotopique de la pluie et celle des eaux souterraines. Au niveau de la source R14, cette variabilité est significative en raison du marquage de la signature isotopique en  $\delta^{18}\text{O}$  et  $\delta^2\text{H}$  des eaux souterraines par la station d'épuration située en amont hydraulique (partie 4.1.2). Au niveau d'autres sources (R06, R24, R08), aucune variation de la signature isotopique des eaux souterraines n'est observable lors des pics de crue en raison de l'absence de variabilité significative entre la signature isotopique des eaux souterraines et celle de la pluie. Ceci met en évidence que dans le cadre de cette étude, les isotopes stables ne sont pas des traceurs idéaux de la recharge directe.

*Des arrivées d'eau de recharge directe dans la zone saturée en réponse aux événements pluvieux ont été mises en évidence à partir de différents traceurs (conductivité électrique, température, concentrations en éléments majeurs, signatures en  $\delta^{18}\text{O}$ ,  $\delta^2\text{H}$  et tritium). Au niveau de deux sources, la proportion de cette masse d'eau lors d'un pic de crue est estimé à 7,5-8 %. Le temps de transfert de l'eau de surface au sein de l'aquifère varie selon la taille des porosités empruntées et peut être extrêmement rapides (quelques heures).*



#### 4.2.1.2 Remobilisation d'eau ancienne stockée dans la zone non saturée

Sur une source (R06) et un forage (F1) étudiés, les pics de crue sont corrélés à des augmentations de la conductivité électrique (figure 4.12 et 4.14). Une augmentation de la minéralisation totale de l'eau est liée à l'arrivée ou à l'augmentation de la proportion d'une masse d'eau fortement minéralisée. Différentes hypothèses peuvent être émises sur l'origine de la masse d'eau :

- *une eau de surface anthropisée.* L'eau de surface, habituellement considérée comme peu minéralisée peut contenir un élément modifiant la conductivité électrique naturelle, par exemple du sel de route et ainsi être caractérisée par une forte conductivité électrique,
- *une eau stockée dans l'épikarst remobilisée lors d'événements pluvieux, par mélange ou effet piston :* la forte minéralisation de cette eau est soit liée à un long temps de résidence soit le résultat de la forte  $p\text{CO}_2$  dans l'épikarst.

Afin de déterminer l'origine de la masse d'eau plus fortement minéralisée, la variation de la composition géochimique des eaux souterraines lors d'un pic de crue est étudiée sur le forage F1 puis sur la source R06.

##### *Origine de la masse d'eau fortement minéralisée au niveau du forage F1*

Durant le pic de crue RE2, la teneur en tritium est corrélée au débit (figure 4.12). Depuis 40 ans, le contenu en tritium des pluies au niveau du site du CEA de Valduc diminue (figure 4.13), ainsi l'augmentation en tritium lors des pics de crue dans les eaux souterraines souligne une remobilisation d'eau ancienne stockée dans l'aquifère. Les augmentations de la conductivité électrique sont corrélées à des diminutions du pH, excepté durant la période hivernale (décembre à février) (figure 4.12). L'épikarst correspond à la zone apicale de la zone d'infiltration et se caractérise par une pression partielle en  $\text{CO}_2$  souvent importante qui peut varier saisonnièrement, la  $p\text{CO}_2$  est plus forte durant les périodes estivales en raison des activités végétales et bactériennes plus importantes. Une remobilisation d'eau stockée dans l'épikarst, transférée à la zone saturée peut induire une diminution du pH de l'eau souterraine de la zone saturée.

Lors du pic de crue RE2, le rapport Ca/Mg et la teneur en tritium ne sont pas parfaitement corrélés. L'étude géochimique des carottes de roche du forage F1 ne démontre pas la présence de dolomites. Ainsi, la variation du rapport Ca/Mg est la manifestation d'un processus à l'origine d'une augmentation de magnésium dans les eaux souterraines, qu'il est difficile de définir sans information supplémentaire, il peut s'agir par exemple d'échanges ioniques sur des feuilles d'argiles ou d'une réaction chimique dans le sol.

Ainsi, au niveau de ce forage, on peut supposer que lors d'un événement pluvieux, l'eau est transmise au milieu souterrain rapidement par des conduits (temps de réponse faible). Cette arrivée d'eau induit dans l'épikarst un mélange entre les eaux de recharge et des eaux anciennes stockées, concentrées en tritium et avec une forte  $p\text{CO}_2$ . Cette hypothèse va dans le

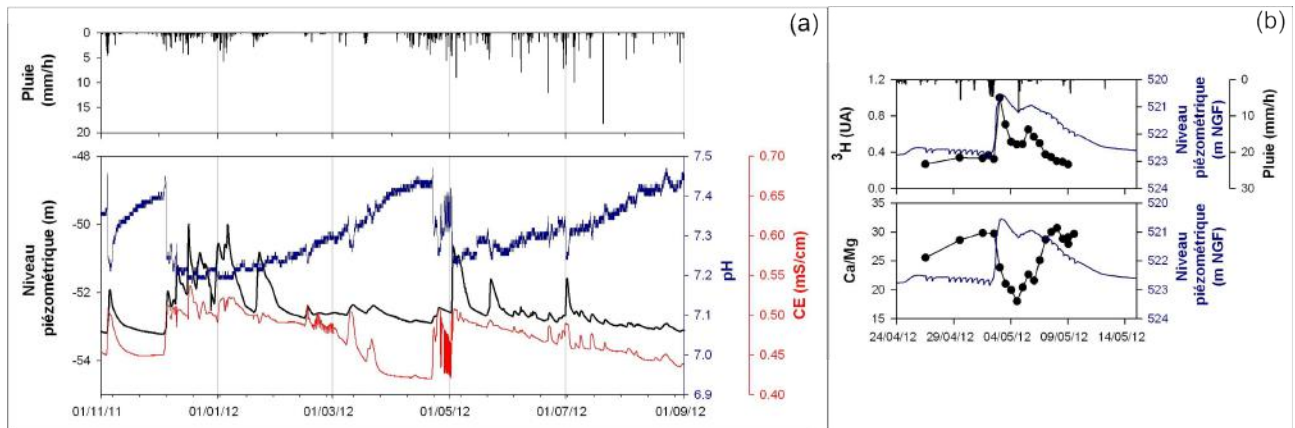


FIGURE 4.12: Chroniques pluviométriques, de conductivité électrique (CE), pH (a) et de teneur en tritium et du rapport  $\text{Ca}^{2+}/\text{Mg}^{2+}$  des eaux souterraines lors du pic de crue RE2 (b) au niveau du forage F1.

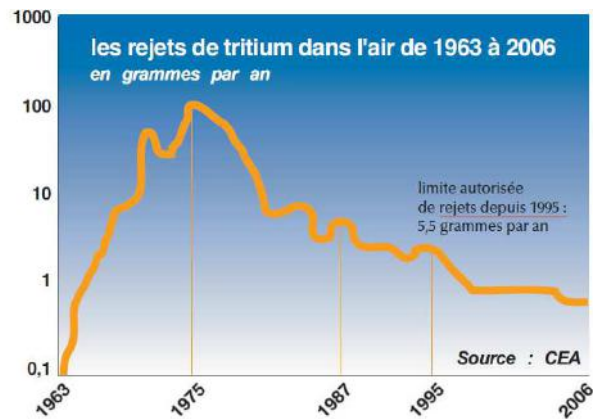


FIGURE 4.13: Rejets atmosphériques en tritium par le centre de Valduc depuis 1963 (Source Seiva, 2008).

même sens que les résultats obtenus lors de l'étude des paramètres hydrodynamiques par traitement du signal qui démontre la présence d'un épikarst fonctionnel à partir de la méthode du corrélogramme croisé coulissant.

### *Origine de la masse d'eau fortement minéralisée au niveau du source R06*

Lors du pic de crue RE2 (figure 4.14), la conductivité électrique augmente et est corrélée aux concentrations en  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  et  $^3\text{H}$  mettant en évidence la remobilisation d'eau ancienne à temps de résidence élevé. Durant le pic de crue, les concentrations en  $\text{Na}^+$  et  $\text{Cl}^-$  augmentent et le pH diminue, ce couplage soutient l'hypothèse que l'eau "ancienne" provient de l'épikarst. En effet, au sein de l'épikarst, la  $\text{pCO}_2$  est forte en comparaison au reste de l'aquifère en raison d'activités végétales et bactériennes importantes. Les ions  $\text{Na}^+$  et  $\text{Cl}^-$  apportés par la pluie sont concentrés par évaporation dans les premiers mètres de l'aquifère. De plus, l'absence de variation de la signature isotopique en isotopes stables,  $\delta^{18}\text{O}$ ,  $\delta^2\text{H}$  et  $\delta^{13}\text{C}$  soutient l'hypothèse d'un déplacement d'eau "ancienne". La signature isotopique en  $\delta^{13}\text{C}$  est proche de -14 ‰, cette valeur est caractéristique d'une eau chargée en  $\text{CO}_2$  du sol en équilibre avec la calcite en système

fermé, ce qui appuie l'hypothèse d'une remobilisation d'eau stockée dans l'épikarst.

Lors de ce pic de crue, la température de l'eau diminue mettant en évidence un transfert rapide d'eau depuis la surface. Ce mécanisme n'est pas mis en évidence par les autres traceurs géochimiques. Ceci démontre la présence d'un mélange entre eau de recharge et eau "ancienne" dans l'épikarst avant le transit vers la zone saturée par les conduits ou des fractures ouvertes.

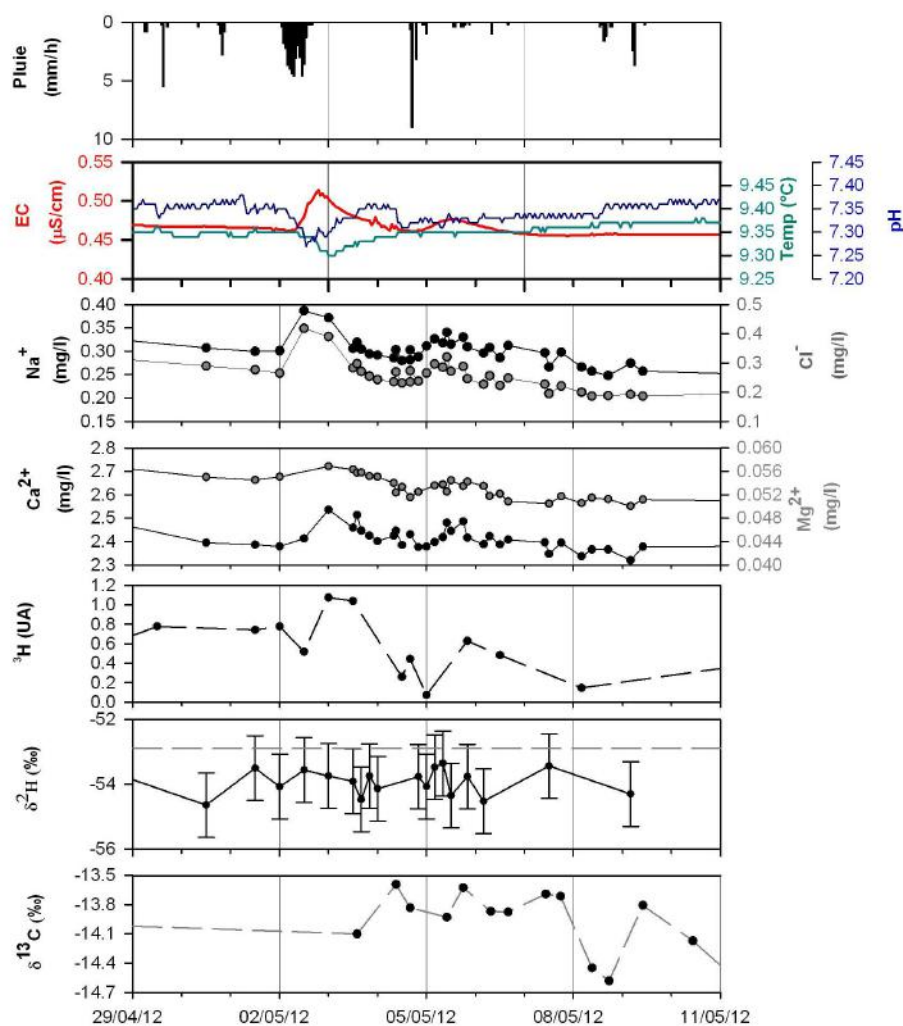


FIGURE 4.14: Chroniques pluviométriques, de conductivité électrique, de concentration en éléments majeurs, en tritium et en  $^{13}\text{C}$  sur la source R06 lors du pic de crue RE2.

*Au niveau de certains forages et sources, lors de pics de crue, une remobilisation d'eau stockée au sein de la zone non saturée et déplacée rapidement a pu être mise en évidence par des augmentations de la conductivité électrique, de la concentration en éléments majeurs et par la signature en tritium. L'évolution des traceurs suggère que cette eau est stockée dans la zone non saturée, dans une zone proche de la surface où la  $p\text{CO}_2$  est forte, probablement dans l'épikarst. La remobilisation de cette eau peut se faire soit par effet piston (une eau de surface pousse de l'eau ancienne stockée) ou par mélange au sein de l'épikarst entre l'eau de recharge et l'eau stockée.*

#### 4.2.1.3 Mise en évidence de plusieurs masses d'eau, transférées depuis la surface ou remobilisées, lors d'un pic de crue au niveau d'une source

Au niveau de la source R08, lors d'un pic de crue, la conductivité électrique diminue puis augmente jusqu'à dépasser le niveau de base (figure 4.15), cette évolution est visible parfois également au niveau de la source R24, RI. L'évolution en deux temps de la conductivité électrique traduit la mise en jeu de deux masses d'eau : une eau faiblement minéralisée probablement de l'eau de surface et une eau fortement minéralisée. L'étude d'un pic de crue permet de déterminer l'origine de ces deux masses d'eau.

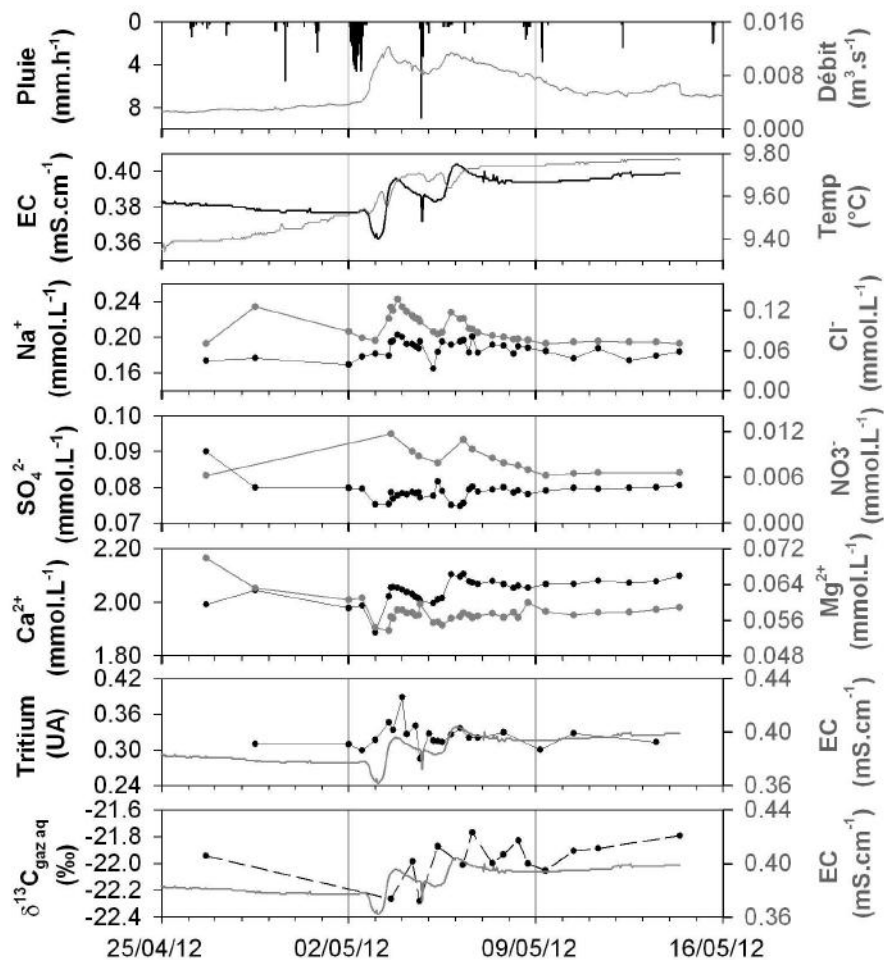


FIGURE 4.15: Chroniques de précipitations, de la concentration en éléments majeurs, en tritium et en  $^{13}\text{C}$  sur la source R08 lors du pic de crue RE2.

Lors du pic de crue RE2, la composition géochimique et isotopique des eaux souterraines varie en deux temps (figure 4.15) :

(1) une diminution de la conductivité électrique et de la concentration en anions et cations majeurs notamment en  $\text{Ca}^{2+}$ , de la concentration en tritium et un appauvrissement de la signature isotopique  $\delta^{13}\text{C}$ . La concentration en tritium de la source avant l'événement pluvieux est de 0,32 UA et la teneur en tritium de la pluie est de 0,07 UA, la diminution de la concentration

en tritium illustre l'arrivée d'eau de recharge directe. L'appauvrissement de la signature isotopique  $\delta^{13}\text{C}$  traduit une augmentation de la contribution des gaz du sol par rapport à la calcite. Ainsi, l'évolution des différents traceurs met en évidence l'arrivée d'eau de surface rapide par des conduits,

-(2) une augmentation de la conductivité électrique, de la concentration en  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Cl}^-$  et de la teneur en tritium. L'évolution de ces paramètres met en évidence la remobilisation d'eau stockée dans l'épikarst ou la zone non saturée.

*Au niveau de certaines sources, l'augmentation du débit en réponse à un événement pluvieux peut être liée à l'arrivée de plusieurs masses d'eau. Au niveau de la source R08, deux masses d'eau ont pu être identifiées, une eau de recharge directe rapide et une eau stockée dans l'aquifère remobilisée lors de l'événement pluvieux.*

*Le suivi de la signature géochimique et isotopique des eaux souterraines lors de pics de crue a permis d'étudier les transferts rapides, de déterminer l'origine et le temps de résidence des masses d'eau à l'origine de ces transferts.*

*Les processus d'écoulements souterrains varient selon les sources et les forages étudiés, traduisant l'hétérogénéité géologique (fracturation, karstification) et hydrogéologique qui règnent au sein d'un aquifère karstique.*

*Lors d'un pic de crue, différents processus de recharge ont été mis en évidence au sein de l'aquifère :*

*- des recharges directes d'eau de surface. Au niveau de la source R14 et R24, cette recharge est estimée à moins de 10 % du débit total d'un pic de crue. Des mesures de la concentration en  $\text{Ca}^{2+}$  ont montré que l'écoulement de cette masse d'eau peut être extrêmement rapide, inférieur à quelques jours,*

*- la remobilisation d'eau stockée dans l'épikarst, déplacée lors des pics de crue. Cette masse d'eau est mise en évidence par des compositions géochimiques et isotopiques en cohérence avec des eaux stockées dans la partie supérieure de l'aquifère (forte  $p\text{CO}_2$ , concentration importante en  $\text{Na}^+$  et  $\text{Cl}^-$ ).*

## 4.2.2 Ecoulements lents au sein de l'aquifère karstique

Le suivi en continu de la conductivité et de la température des eaux souterraines durant plusieurs années permet d'étudier les mécanismes d'écoulement lent qui ont lieu au sein de l'aquifère. Différents types d'écoulement lent ont pu être mis en évidence, des écoulements lents au sein de la zone non saturée, des transferts de masse retardés par rapport au transfert de pression.

### 4.2.2.1 Ecoulement lent et diffus à travers la zone non saturée mis en évidence au niveau du forage A2

Au niveau du forage A2, la conductivité électrique et la température de l'eau souterraine varient saisonnièrement, elles sont maximales durant la période hivernale (figure 4.16).

#### *Géochimie de l'eau souterraine*

Durant les périodes estivales, les ions d'origine météorologique peuvent se concentrer dans le sol par évaporation, ceci peut induire une variation saisonnière de la conductivité électrique des eaux d'infiltration. Ainsi, la variation saisonnière de la conductivité électrique de l'eau souterraine au niveau du forage A2 peut être l'image de la variation saisonnière de la conductivité électrique de l'eau d'infiltration. Ceci met en évidence une infiltration continue et diffuse d'eau de surface jusqu'à la zone saturée. Cette hypothèse est soutenue par l'absence de variation piézométrique. Le déphasage entre les deux signaux (conductivité de l'eau de surface et de l'eau souterraine) est d'environ 6 mois, la vitesse maximale de l'écoulement lent au niveau du forage A2 peut être déduite à partir de l'épaisseur de la zone non saturée (égale à 8 m) et estimée à environ 16 m/an.

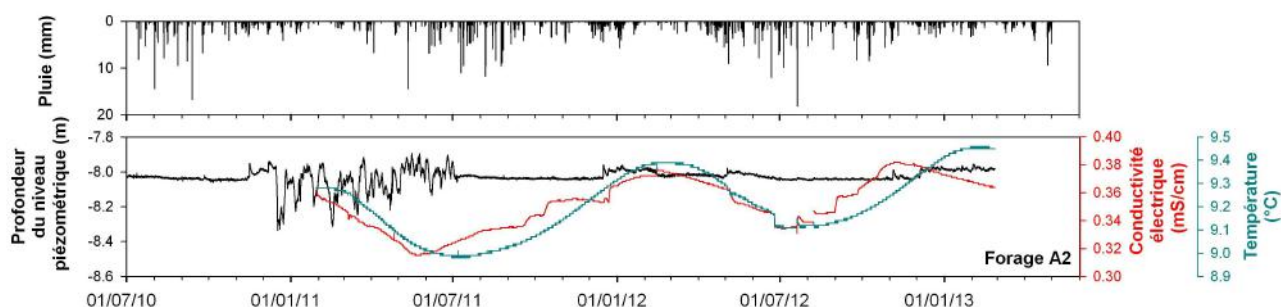


FIGURE 4.16: Chroniques de précipitations, de niveau piézométrique, de température et de conductivité électrique de l'eau souterraine au niveau du forage A2 (juillet 2010-mars 2013).

Afin d'étayer l'argumentation, les compositions géochimiques des eaux souterraines prélevées au niveau du forage A2 en octobre 2010 et en juillet 2012 sont comparées. Dans l'eau souterraine

au niveau du forage A2, au mois de juillet, les isotopes stables sont plus appauvris et la concentration en calcium plus faible qu'en octobre (tableau 4.1). Or, dans les eaux d'infiltration, les isotopes stables varient saisonnièrement et sont les plus appauvris durant la période hivernale. Ceci soutient l'hypothèse d'une infiltration diffuse de l'eau de recharge, le temps de transfert de l'eau de la surface jusqu'à la zone saturée est alors de 6 mois. Idéalement, un suivi mensuel de la composition géochimique des eaux souterraines au niveau de ce forage permettrait de donner plus de robustesse à l'hypothèse formulée ici.

TABLEAU 4.1: Composition géochimique de l'eau souterraine au niveau du forage A2 lors de deux campagnes de mesures.

Paramètres	Juillet 2012	Octobre 2010
$\delta^{18}\text{O}$ (‰)	-7,93	-7,73
$\delta^2\text{H}$ (‰)	-54,52	-52,97
Ca (mg/L)	56	65

### *Température de l'eau*

Le transfert de chaleur au sein d'un aquifère est soumis principalement à deux processus :

- *la conduction ou diffusion* : il s'agit du transfert de chaleur au sein d'un milieu, sans déplacement de matière, sous l'influence d'une différence de température,
- *l'advection* : le flux de chaleur est transporté par un fluide (exemple : eau) en déplacement.

Au niveau du forage A2, la température de l'eau varie saisonnièrement. Il s'agit du seul forage où une telle variation est identifiable (figure 4.6). Ce forage se différencie des autres par sa faible épaisseur de zone non saturée : 8 m. [Bundschuh \(1993\)](#) a démontré que le transfert de chaleur par conduction au sein d'un aquifère n'a lieu que pour les aquifères fins d'une épaisseur inférieure à 20 m. Au niveau de ce forage, la température de l'eau ne varie pas à haute fréquence (figure 4.16), soutenant l'hypothèse d'un transfert conductif de la chaleur.

Néanmoins, les chroniques de conductivité électrique et de température de l'eau au niveau du forage A2 sont corrélées et déphasées. Le signal de la conductivité électrique est moins lisse que celui de la température. Deux hypothèses peuvent être émises sur l'origine des variations saisonnières de ces deux paramètres :

- soit elles ont pour origine deux processus différents : la conduction pour la température et l'advection pour la conductivité électrique,
- soit l'advection est à l'origine du signal périodique sur la température et la conductivité électrique. La variation saisonnière de ces deux paramètres dans les eaux souterraines est l'image de la variation saisonnière de la température de l'air et de la conductivité électrique des eaux

souterraines. Dans ce cas, l'équilibration thermique entre l'eau et la roche lisse le signal température.

*La variation saisonnière de la composition géochimique au niveau du forage A2 illustre la présence d'une infiltration continue et diffuse à travers la zone non saturée au sein de l'aquifère dont la vitesse maximale est estimée à 16 m/an.*

#### 4.2.2.2 Déphasage entre la variation du niveau piézométrique et la variation de la composition géochimique

Trois forages, S3, S5 et B3, présentent des variations des paramètres physico-chimiques en réponse aux événements pluvieux significativement déphasées (déphasage supérieur à quelques jours) par rapport aux niveaux piézométriques (figure 4.17). Le décalage temporel entre la variation du niveau piézométrique et celle des paramètres physico-chimiques illustre la différence de vitesse entre le déplacement de l'onde de pression hydraulique et le déplacement de la masse d'eau (Birk et al., 2004).

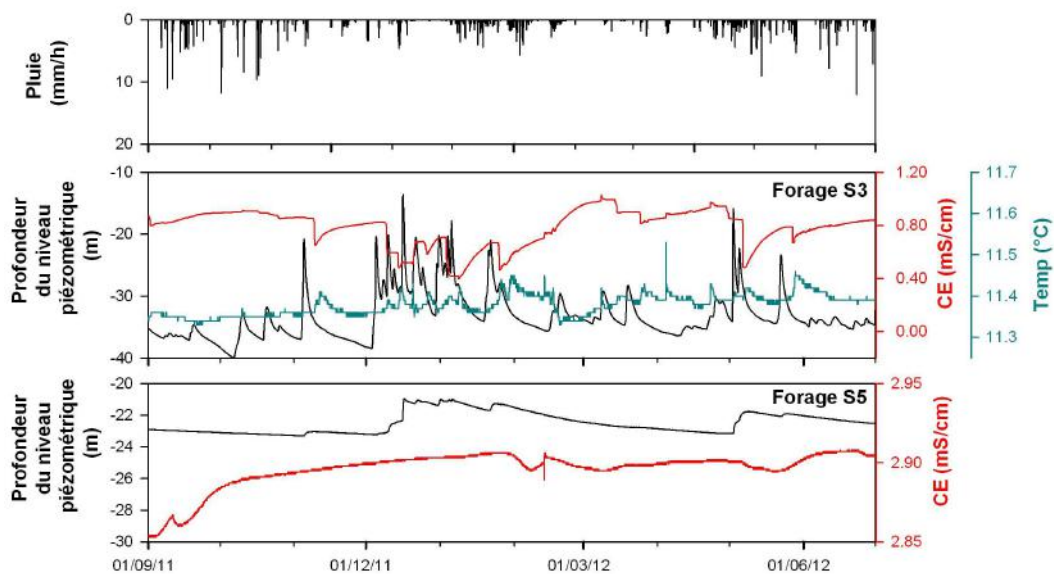


FIGURE 4.17: Chroniques de pluviométriques, du niveau piézométrique, de conductivité électrique (CE) et de température de l'eau au niveau des forages S3 et S5.

Au niveau du forage S3, le niveau piézométrique varie quelques heures après l'événement pluvieux avec une amplitude importante (figure 4.17). Cette variation piézométrique est suivie d'une diminution de la conductivité et d'une augmentation de la température un peu plus de cinq jours après la variation du niveau piézométrique (temps de réponse calculé à partir d'analyses corrélatoires niveau piézométrique/conductivité) (figure 4.17). L'anticorrélation conductivité/température, même en période hivernale, s'explique par la localisation du forage sur une zone anthropisée.



Le forage S5 est un forage caractérisé par un temps de réponse aux événements pluvieux très grand et une inertie très forte. Après une variation du niveau piézométrique, la conductivité électrique diminue systématiquement avec un déphasage important, compris entre 9 et 55 jours selon les événements (figure 4.17). Le forage S5 est un forage particulièrement inertiel en terme de transfert de masse et de transfert de pression, ce forage doit se situer dans une zone où la perméabilité est très faible.

*Le déphasage important entre la variation du niveau piézométrique lors d'un pic de crue et la diminution de la conductivité électrique met en évidence la présence d'un déplacement relativement lent de certaines masses d'eau au sein de l'aquifère. Le décalage entre la réponse hydraulique et la variation de la physico-chimie correspond au temps de trajet de l'eau pour s'infiltrer depuis la surface et atteindre les forages.*

#### 4.2.2.3 Mise en évidence de transfert de pression sans transfert de masse

Au niveau de trois forages, C3, B4 et C1, la conductivité électrique ne varie pas lors de pics de crue. Les seules variations visibles résultent d'artéfacts liés à des prélèvements ou à des problèmes d'appareils de mesure. Seuls les forages B4 et C3 seront présentés (figure 4.18).

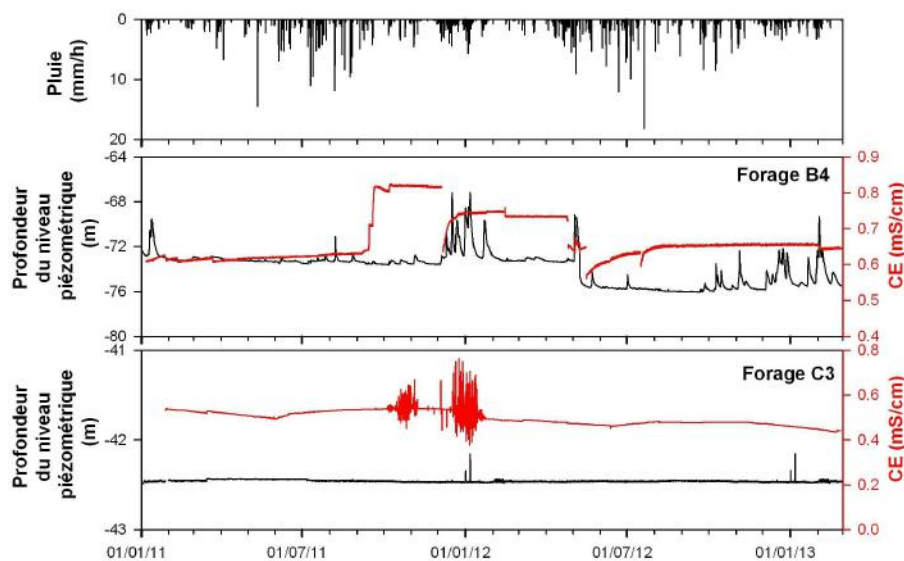


FIGURE 4.18: Chroniques pluviométrique et du niveau piézométrique et de conductivité électrique (CE) au niveau des forages B4 et C3. Les variations de la conductivité au niveau du forage B4 sont liées à des pompages.

Pour ces forages, lors de variations du niveau piézométrique en réponse aux événements pluvieux, aucune variation de la conductivité électrique n'est détectable, ceci peut s'expliquer par :

- soit une variation piézométrique liée au transfert d'une onde de pression en zone saturée. L'eau à l'origine de la variation de niveau piézométrique a une composition géochimique identique à l'eau pré-événement,

- soit une variation piézométrique due à un apport d'eau de composition géochimique différente de celle contenue dans la zone saturée, mais en quantité insuffisante pour être détectable par les appareils de mesure. C'est probablement le cas pour le forage C3 dont les variations du niveau piézométrique sont faibles (figure 4.18).

*L'absence de variation des paramètres physico-chimique malgré une réponse hydraulique en réponse à un événement pluvieux met en évidence la présence de transfert de pression au sein de l'aquifère sans transfert de masse et souligne ainsi la présence d'eau à fort temps de résidence au sein de l'aquifère.*

*L'étude de la variabilité des paramètres physico-chimiques a permis de mettre en évidence la présence d'écoulement lent au niveau de certains forages. Les vitesses d'écoulement n'ont pu être estimées qu'au niveau du forage A2 et correspondent au transfert de l'eau d'infiltration dans la zone non saturée dans ce secteur probablement par des vides de petites tailles.*

### 4.2.3 Les différents transferts au sein de l'aquifère

L'étude de la composition géochimique et isotopique des eaux souterraines a permis de mettre en évidence trois types d'écoulements au sein de l'aquifère karstique en réponse aux événements pluvieux (figure 4.19).

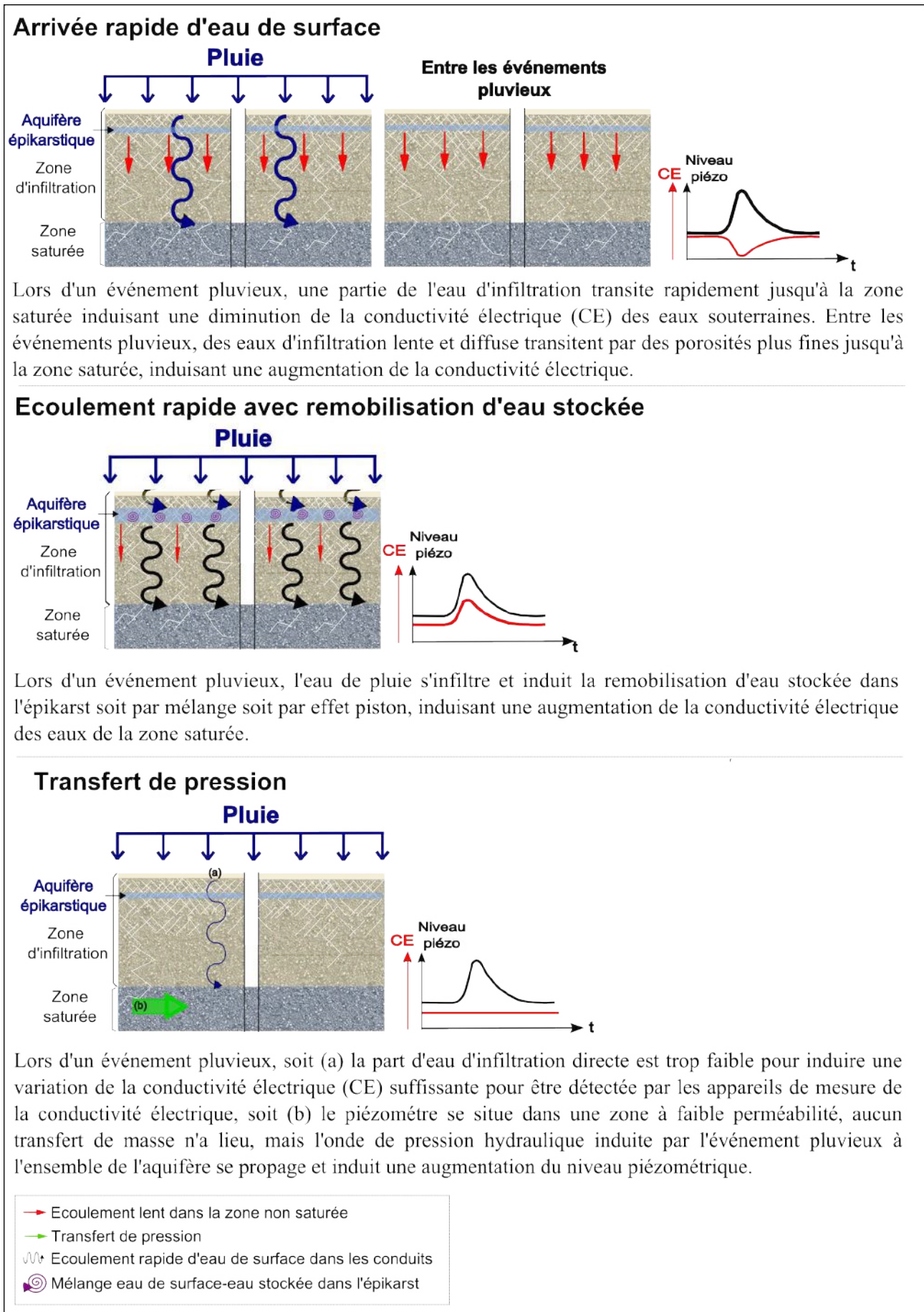


FIGURE 4.19: Schéma des trois types d'écoulement rapide mis en évidence au sein de l'aquifère karstique.

## 4.3 Variabilité saisonnière des processus de recharge

Dans les parties précédentes, la présence de différentes masses d'eau au sein de l'aquifère karstique et une large distribution de vitesses de transfert ont été mises en évidence. L'étude des chroniques piézométriques et débitmétriques par traitement du signal a mis en évidence une variabilité saisonnière des temps de réponse. Dans cette partie, la variabilité au cours du temps des mécanismes d'écoulement est étudiée à partir de chroniques annuelles et pluri-annuelles de la composition géochimique et isotopique au niveau des sources.

### 4.3.1 Une réponse aux évènements pluvieux fonction des conditions initiales

Les processus de transfert des eaux souterraines lors de pics de crue varient selon le type d'épisodes pluvieux et la période de l'évènement pluvieux, mettant en évidence une variation des proportions relatives des différentes masses d'eau intervenant lors des pics de crue (figure 4.20).

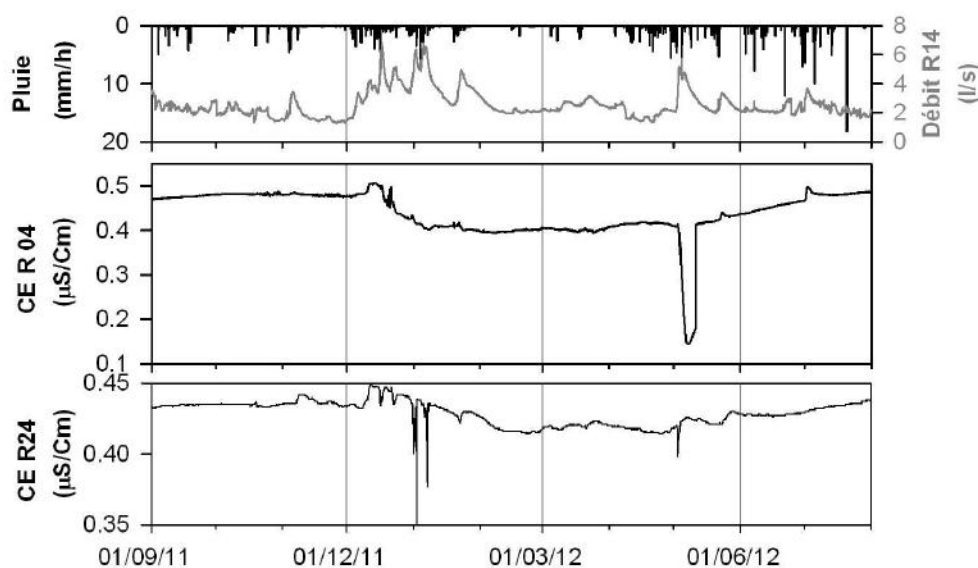


FIGURE 4.20: Chroniques de pluviométrie et de conductivité électrique (CE) au niveau des sources R24 et R04. Les débits de R04 et R24 n'étant pas disponibles, le débit de R14 est donné à titre indicatif, comme proxys des débits sur ces sites.

Au niveau des sources R24 et R04, les premiers pics de crue après la période estivale sont corrélés à une augmentation de la conductivité électrique, les suivants à une diminution. Deux hypothèses sont possibles :

- la mise en charge de réservoirs différents selon l'intensité de l'évènement pluvieux ou l'état de saturation du système : soit de l'eau de surface directe qui transite rapidement vers la zone saturée et induit une diminution de la conductivité électrique soit la remobilisation d'eau

stockée dans l'épikarst qui induit une augmentation de la conductivité électrique. Les deux processus interviennent probablement à chaque pic de crue, mais leurs proportions respectives varient selon les pics de crue jusqu'à même masquer l'une ou l'autre des masses d'eau,

- l'arrivée d'eau de surface tout au long de l'année dont la minéralisation varie au cours des saisons en raison de la concentration des ions  $\text{Na}^+$  et  $\text{Cl}^-$  dans le sol par évaporation.

*L'évolution des paramètres physico-chimiques en réponse à un événement pluvieux est variable au cours de l'année pour une même source. Ceci souligne une variation des masses d'eau impliquées dans les écoulements et les proportions relatives de celles-ci en fonction de l'intensité des pluies et des saisons.*

### 4.3.2 Variabilité saisonnière de la recharge efficace

La comparaison des signatures isotopiques de la pluie et des eaux souterraines permet d'étudier les modalités de recharge des eaux souterraines.

#### *Signatures isotopiques $\delta^{18}\text{O}$ et $\delta^2\text{H}$ des eaux météoriques*

La droite météorique locale a pu être établie à partir de mesures effectuées entre mars 2010 et juillet 2012 (figure 4.21) :

$$\delta^2\text{H} = 7,4 \times \delta^{18}\text{O} + 3,4$$

La pente des pluies des eaux météoriques (7,4) est plus faible que celle de la droite des eaux météoriques mondiales (8,0) (Clark & Fritz, 1997). Ceci peut s'expliquer par l'évaporation des gouttes de pluies lors du trajet dans l'atmosphère durant la période estivale (Celle et al., 2000). Une étude saisonnière de la pente montre que celle-ci est plus forte durant les périodes hivernales (7,7) et soutient l'hypothèse de l'évaporation lors du trajet dans l'atmosphère.

Les valeurs moyennes des teneurs isotopiques dans les précipitations sur le site d'étude pondérées par les hauteurs d'eau de pluie sont  $\delta^{18}\text{O} = -7,29 \text{ ‰}$  et  $\delta^2\text{H} = -50,56 \text{ ‰}$  (période mars 2010-mars 2012).

#### *Signatures isotopiques $\delta^{18}\text{O}$ et $\delta^2\text{H}$ des eaux souterraines*

Les signatures isotopiques en  $\delta^{18}\text{O}$  et  $\delta^2\text{H}$  des eaux souterraines au niveau de forages et de sources ont été mesurées sur des échantillons prélevés durant la campagne de prélèvements de juillet 2012 (hors pic de crue).

Les signatures isotopiques des eaux souterraines de la nappe supérieure et de la nappe inférieure s'alignent sur la droite météorique locale des précipitations (figure 4.21). Les deux nappes sont donc directement alimentées par les précipitations, la nappe supérieure ne peut pas être

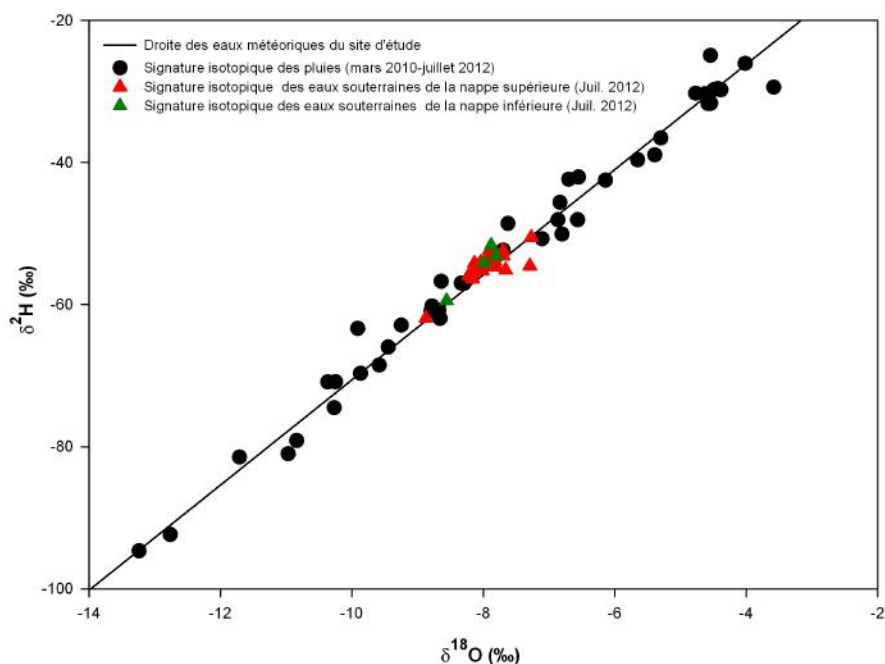


FIGURE 4.21: Signature isotopique des pluies et des eaux souterraines (les barres d'erreur sont comprises dans les figurés).

alimentée par la nappe inférieure de façon significative car les deux nappes sont séparées par une couche de marne imperméable. La signature isotopique moyenne de la nappe supérieure est de  $-7,93 \text{ ‰}$  pour le  $\delta^{18}\text{O}$  et  $-54,33 \text{ ‰}$  pour le  $\delta^2\text{H}$ . Au niveau de la nappe inférieure, les moyennes sont légèrement plus appauvries :  $-8,06 \text{ ‰}$  en  $\delta^{18}\text{O}$  et  $-54,60 \text{ ‰}$  en  $\delta^2\text{H}$ . Cette différence souligne une variabilité des modalités de la recharge entre les deux nappes. La nappe inférieure possède un bassin d'alimentation plus grand que la nappe supérieure, la signature isotopique plus appauvrie montre que la recharge a lieu à une altitude plus élevée.

Au niveau de la nappe supérieure, la variabilité de la signature est faible avec un écart type de  $0,37 \text{ ‰}$  pour le  $\delta^{18}\text{O}$  et  $2,01 \text{ ‰}$  pour le  $\delta^2\text{H}$ . Quelques points de prélèvements ont des signatures légèrement atypiques : les forages C2 ( $\delta^{18}\text{O} : -7,29 \text{ ‰}$ ) et S5 ( $\delta^{18}\text{O} : -7,27 \text{ ‰}$ ) sont plus enrichis et le forage A1 est plus appauvri ( $\delta^{18}\text{O} : -8,87 \text{ ‰}$ ). La présence de ces signatures atypiques, qui ne s'explique pas par des processus simples souligne la complexité et l'hétérogénéité de cet aquifère.

Les eaux souterraines sont légèrement appauvries par rapport à la signature moyenne des pluies. Ceci indique que la recharge de l'aquifère n'est pas uniforme sur l'année. La recharge efficace est plus faible en été du fait de l'évapotranspiration.

*La signature isotopique moyenne des eaux souterraines légèrement appauvrie par rapport à la signature des précipitations locales montre une recharge efficace plus faible en été qu'en hiver due à l'évapotranspiration. Ce résultat met en évidence que l'évapotranspiration a une influence non négligeable sur la recharge efficace.*

### 4.3.3 Variabilité saisonnière de la conductivité, de la température et de la composition géochimique et isotopique des eaux souterraines au niveau des sources

#### 4.3.3.1 Variabilité saisonnière de la température des eaux souterraines au niveau des sources

La température de l'eau souterraine varie saisonnièrement au niveau des sources avec un maximum vers le mois de septembre (figure 4.22). Le déphasage entre la température extérieure et la température des eaux souterraines et l'amplitude des variations diffère selon les sources de 28 jours à 76 jours (tableau 4.2). La variation saisonnière de la température de l'eau peut être liée à la conduction de la chaleur à travers l'aquifère.

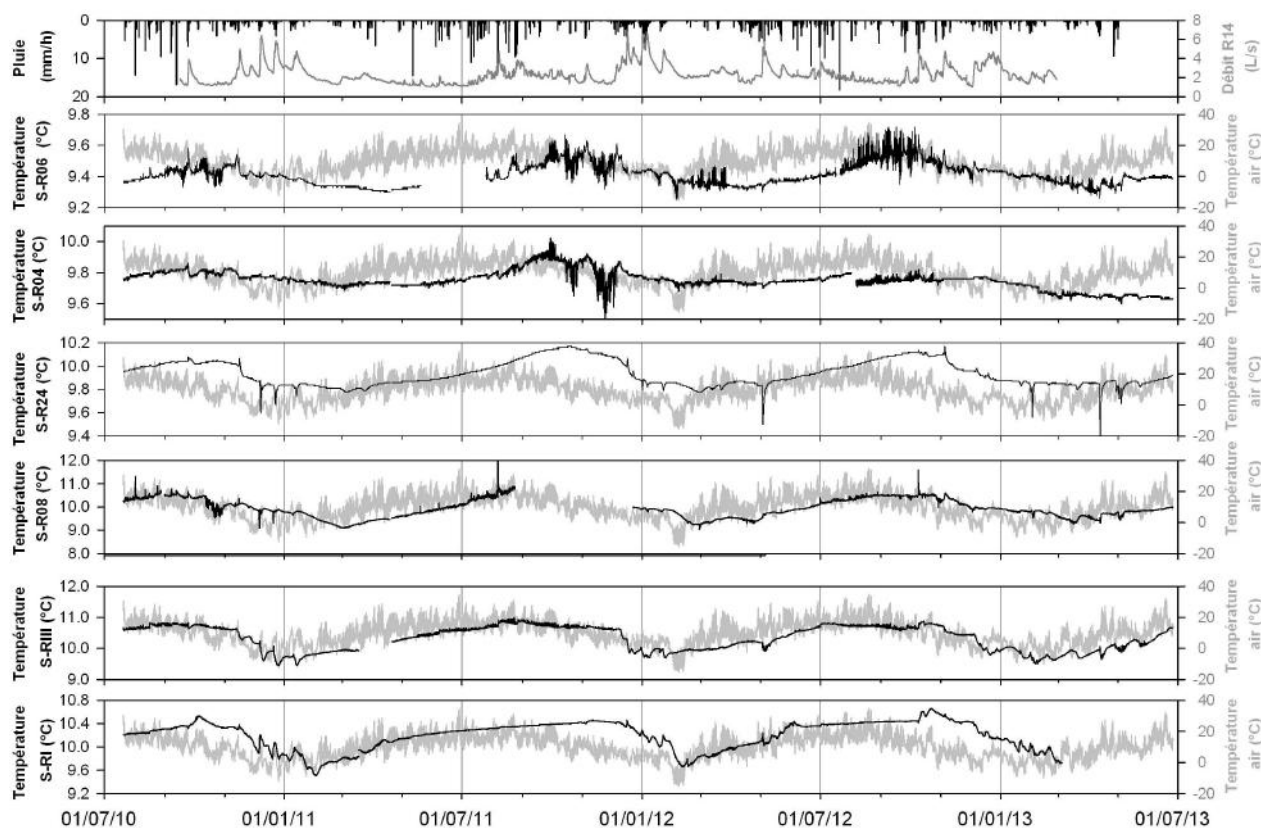


FIGURE 4.22: Pluviométrie et variabilité saisonnière de la température de l'eau souterraine au niveau des sources de la nappe supérieure et inférieure (juillet 2010-juillet 2013).

Au niveau des sources, la température de l'eau souterraine varie à haute fréquence (à l'échelle de quelques jours) en plus du signal saisonnier notamment lors des périodes hivernales (figure 4.22). Ceci met en évidence qu'un second signal se superpose au signal de conduction : il s'agit de l'advection. Lors des pics de crue, la température de l'eau des sources change (partie 4.2.1). La présence de nombreux pics de crue durant les périodes de recharge (novembre, décembre) induit

TABLEAU 4.2: Variabilité saisonnière de la température de l'eau. Résultats des corrélations croisées entre température de l'air et température de l'eau.

Points de mesure	Amplitude de la variation (°C)	Temps de réponse (j)	Coefficient de corrélation
R04	0,27	76	0,54
R06	0,24	74	0,67
R24	0,37	62	0,69
RIII	1,23	28	0,72
RI	1,03	43	0,68

une diminution globale importante de la température de l'eau. Une recharge directe importante à cette période de l'année est donc montrée.

#### 4.3.3.2 Variabilité saisonnière de la conductivité électrique des eaux souterraines

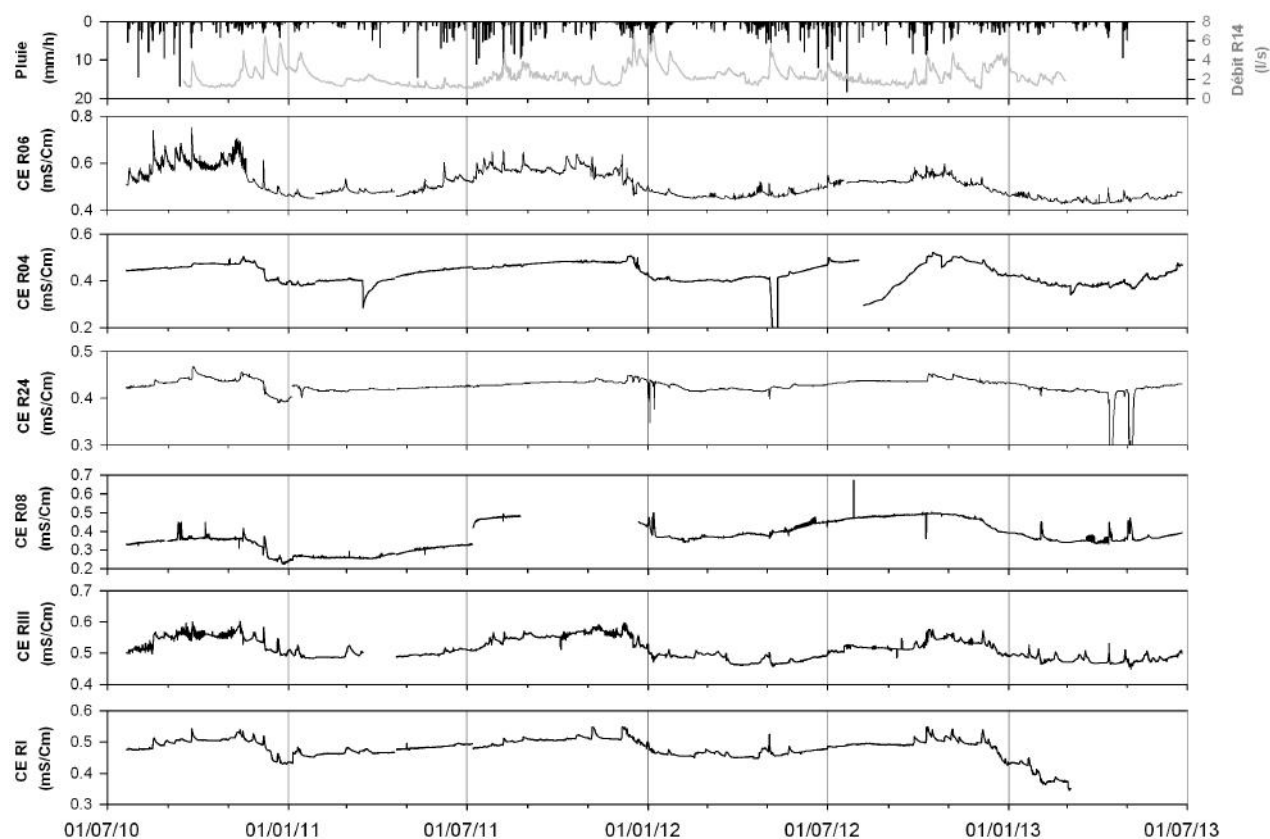


FIGURE 4.23: Variabilité saisonnière de la conductivité électrique de l'eau au niveau des sources (juillet 2010-juillet 2013).

De façon analogue à la température de l'eau, la conductivité électrique varie saisonnièrement au niveau des sources avec une valeur maximale aux alentours du mois d'octobre lors des



basses eaux. L'amplitude des variations saisonnières de la conductivité électrique est significative et atteint 0,1 mS/cm pour la source R06 (figure 4.23). Au niveau des mois de novembre ou décembre, la conductivité électrique diminue fortement en réponse à des épisodes de crue successifs, ceci met en évidence l'augmentation de la proportion relative des eaux de recharge récente, faiblement minéralisées. Durant cette période, l'âge apparent de l'eau devrait être le plus faible.

#### 4.3.3.3 Variabilité saisonnière de la composition géochimique et isotopique des eaux souterraines

Afin de comprendre l'origine de la variation annuelle de la conductivité électrique des eaux souterraines au niveau des sources, les variations annuelles de la composition géochimique de celles-ci en anions et cations majeurs, en isotopes stables et en  $\delta^{13}\text{C}_{\text{CITD}}$  ont été étudiées. Seuls les résultats obtenus au niveau de la source R06 dont la variabilité saisonnière de la composition géochimique est la plus remarquable seront exposés (figure 4.24). Les chroniques géochimiques des autres sources sont présentées en annexe 4.

##### *Les éléments majeurs*

La variation saisonnière de la conductivité électrique des eaux de la source R06 est associée à une variation saisonnière du contenu en anions et cations majeurs. Les concentrations  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{HCO}_3^-$ ,  $\text{Na}^+$  et  $\text{Cl}^-$  sont plus élevées en basses eaux qu'en hautes eaux (figure 4.24).

L'augmentation des concentrations en  $\text{Na}^+$  et  $\text{Cl}^-$  dans les eaux souterraines durant la période estivale peut être soit :

- *l'image de la variation saisonnière de l'évaporation.* Durant la période estivale, la part d'eau de pluie ré-évaporée est plus grande que durant l'hiver, ceci induit une concentration des ions  $\text{Na}^+$  et  $\text{Cl}^-$  dans le sol ou dans l'épikarst, remobilisés lors des événements pluvieux,

- *l'image de l'augmentation du temps de résidence apparent de l'eau souterraine soit par la vidange d'un stock d'eau à temps de séjour important ou par la diminution de la proportion d'eau récente.* Si le temps de résidence de l'eau est important, les interactions eau-roche peuvent être très abouties et induire la libération d'inclusions fluides présentes dans la matrice carbonatée.

Les concentrations en  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  et  $\text{HCO}_3^-$  augmentent doucement durant l'été et l'automne et suivent l'augmentation de la  $\text{pCO}_2$ . Une augmentation de la  $\text{pCO}_2$  conduit à augmenter le potentiel de dissolution de l'eau. Ainsi, l'augmentation des concentrations en  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  et  $\text{HCO}_3^-$  de l'eau souterraine est liée en partie à la variabilité temporelle de la  $\text{pCO}_2$ . L'augmentation de la  $\text{pCO}_2$  à la fin de l'été est favorisée par une diminution de la diffusivité du  $\text{CO}_2$  vers l'atmosphère liée à l'augmentation du contenu en eau du sol (Gillon et al., 2009).

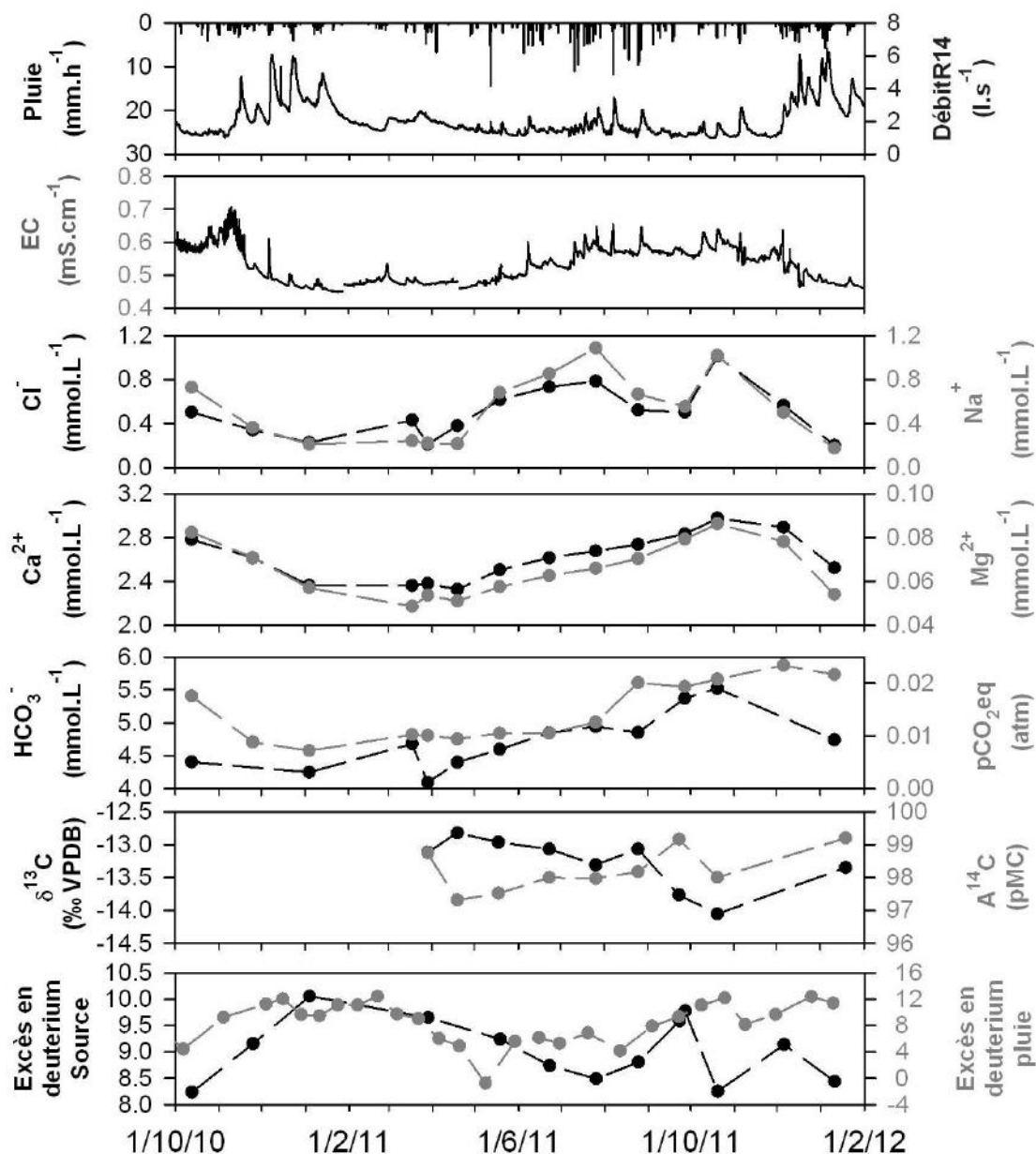


FIGURE 4.24: Chroniques de la composition géochimique et isotopique au niveau de la source R06. Le débit n'est pas mesuré au niveau de la source R06, il est illustré par le débit de la source R14 qui a un comportement similaire (octobre 2010 à février 2012).

### Le $\delta^{13}C_{CITD}$

Le  $\delta^{13}C_{CITD}$  varie également saisonnièrement au niveau de la source R06 (figure 4.24) : le  $\delta^{13}C_{CITD}$  est plus enrichi en période estivale, l'amplitude de la variation est de 1 ‰ VPDB. Deux hypothèses peuvent être émises :

- l'étude hydrodynamique a montré que le temps de réponse entre événement pluvieux et variation du niveau piézométrique est plus faible en été. Plus le transfert en zone non saturée est rapide, plus la mise en équilibre de l'eau avec les carbonates a lieu en système

fermé (arrivée de l'eau de recharge en zone saturée) et plus le  $\delta^{13}\text{C}_{\text{CITD}}$  tend vers la signature isotopique des carbonates et s'enrichit,

- l'enrichissement de la signature  $\delta^{13}\text{C}_{\text{CITD}}$  peut être liée à l'augmentation de la contribution des eaux stockées dans l'aquifère. La signature  $\delta^{13}\text{C}_{\text{CITD}}$  de ces eaux à long temps de résidence tend vers la signature des carbonates. Cette contribution relative des eaux stockées est donc plus importante durant les basses eaux (Emblanch et al., 2003).

L'appauvrissement du  $\delta^{13}\text{C}_{\text{CITD}}$  et l'augmentation de l'activité  $^{14}\text{C}$  en septembre peuvent être expliquées par l'augmentation de la  $\text{pCO}_2$  qui induit une plus grande disponibilité du  $\text{CO}_2$ .

### *L'excès en deutérium*

L'excès en deutérium est défini comme :

$$d = \delta^2\text{H} - 8 \times \delta^{18}\text{O} \quad (4.1)$$

Sur le site d'étude, l'excès en deutérium varie de façon saisonnière, avec une diminution durant les périodes estivales (figure 4.24). Cette saisonnalité est classiquement expliquée par l'enrichissement lié à l'évaporation des gouttes sous le nuage, au cours des mois chauds et secs lorsque les hauteurs de précipitations sont faibles (IAEA, 2006).

L'excès en deutérium des eaux souterraines de la source R06 varie saisonnièrement, ce signal est plus marqué que celui en  $\delta^{18}\text{O}$  et  $\delta^2\text{H}$ . Ceci s'explique par une saisonnalité de l'excès en deutérium des eaux météoriques également plus marquée. La présence d'un signal saisonnier de l'excès en deutérium dans les eaux souterraines de la source R06 démontre qu'une partie de l'eau souterraine a un temps de résidence inférieur à un an et démontre la présence d'une recharge effective tout au long de l'année au niveau de cette source.

Au niveau des sources R08 et R04, de façon analogue à la source R06, les concentrations en  $\text{Ca}^{2+}$  et  $\text{Mg}^{2+}$  varient saisonnièrement avec un maximum en fin d'été. Au niveau de la source R24, la variabilité saisonnière des concentrations en anions et cations majeurs est beaucoup plus faible à l'image de la variabilité annuelle de la conductivité électrique (annexe 4).

*Au niveau des sources de la nappe supérieure, la variation saisonnière de la composition géochimique met en évidence :*

- une variation saisonnière de la  $\text{pCO}_2$  qui induit une variation saisonnière des concentrations en  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  et  $\text{HCO}_3^-$  dans les eaux souterraines,
- une variation saisonnière des concentrations en  $\text{Na}^+$  et  $\text{Cl}^-$  qui souligne la variabilité de la recharge efficace selon les saisons,
- une variation de la signature isotopique en  $\delta^{13}\text{C}_{\text{CITD}}$  qui peut traduire soit la vidange d'un réservoir à temps de résidence important soit la variation des vitesses de transfert dans la zone non saturée.

## 4.4 Apports et limites des traceurs de datation dans la compréhension du fonctionnement de l'aquifère karstique

L'étude géochimique précédente a mis en évidence la présence d'écoulements lents au sein de l'aquifère. L'étude géochimique et isotopique précédemment réalisée ne fournit pas d'informations précises sur l'âge apparent des masses d'eau lentes. Pour obtenir cette information, des traceurs de datation sont utilisés : SF<sub>6</sub>, CFC, <sup>3</sup>H/He, <sup>85</sup>Kr et <sup>39</sup>Ar. Les concentrations de ces traceurs ont été mesurées au niveau de 6 sources et 4 forages au maximum. Deux types de campagnes ont été réalisées, une campagne en étiage pour tous les traceurs et une campagne en crue pour les SF<sub>6</sub>, CFC-12.

### 4.4.1 Tritium/hélium

La méthode de datation tritium/hélium permet de dater des eaux souterraines âgées de moins de 50 ans. Cette méthode repose sur la décroissance radioactive du tritium en hélium. Dans la zone saturée, l'hélium triogénique (c'est-à-dire produit par la décroissance du tritium) n'est pas transféré vers l'atmosphère. La connaissance des concentrations en tritium et en hélium triogénique permet de calculer l'âge apparent de l'eau souterraine. D'autres sources d'hélium existent dans les eaux souterraines (excès d'air, production radiogénique) et doivent être soustraites à l'hélium mesuré pour obtenir la concentration en hélium triogénique. Ainsi, la correction de l'excès d'air est indispensable pour obtenir un âge apparent juste, il est estimé classiquement à partir des concentrations en <sup>20</sup>Ne et <sup>4</sup>He (partie 2.3.2.5). Dans les eaux souterraines et notamment dans le milieu karstique, l'excès d'air attendu est important.

TABLEAU 4.3: Concentrations en <sup>20</sup>Ne, <sup>3</sup>He et <sup>4</sup>He dans les eaux souterraines prélevées durant la campagne de juillet 2012.

Points de mesure	<sup>20</sup> Ne (cc.g <sup>-1</sup> )	<sup>3</sup> He (cc.g <sup>-1</sup> )	<sup>4</sup> He (cc.g <sup>-1</sup> )
Source R08	1,79.10 <sup>-7</sup>	7,10.10 <sup>-14</sup>	4,58.10 <sup>-8</sup>
Source R04		9,15.10 <sup>-14</sup>	4,54.10 <sup>-8</sup>
Source R14	1,79.10 <sup>-7</sup>	6,64.10 <sup>-14</sup>	4,58.10 <sup>-8</sup>
Source R15	1,81.10 <sup>-7</sup>	6,35.10 <sup>-14</sup>	4,65.10 <sup>-8</sup>
Source R24		6,81.10 <sup>-14</sup>	4,53.10 <sup>-8</sup>
Source R25	1,81.10 <sup>-7</sup>	8,29.10 <sup>-14</sup>	4,64.10 <sup>-8</sup>
Forage A4D	1,84.10 <sup>-7</sup>	5,32.10 <sup>-14</sup>	4,70.10 <sup>-8</sup>
Forage B3		7,12.10 <sup>-14</sup>	4,89.10 <sup>-8</sup>
Forage B4	2,23.10 <sup>-7</sup>	8,29.10 <sup>-14</sup>	5,87.10 <sup>-8</sup>
Forage C2		8,84.10 <sup>-14</sup>	4,84.10 <sup>-8</sup>

Les concentrations en  $^{20}\text{Ne}$  et  $^4\text{He}$  des échantillons d'eaux souterraines prélevés lors de campagne de cartographie de juillet 2012 sont proches de la valeur de solubilité de ces éléments à la température de recharge de 10,5 °C, soit  $1,81 \cdot 10^{-7}$  ccSTP.g $^{-1}$  pour le  $^{20}\text{Ne}$  et  $4,62 \cdot 10^{-8}$  ccSTP.g $^{-1}$  pour le  $^4\text{He}$  (tableau 4.3). Ceci met en évidence l'absence d'excès d'air significatif, ce qui dans le cas d'aquifère karstique, est incohérent. Ainsi, l'eau souterraine s'est ré-équilibrée avec l'atmosphère après la recharge. Le milieu karstique favorise cette équilibration du fait de sa structure (fracture ouverte, conduits karstiques reliant la zone saturée avec l'atmosphère).

De plus, le site d'étude est caractérisé par un marquage en tritium des eaux souterraines en raison des activités industrielles du CEA. La concentration en tritium dans les eaux souterraines devrait induire une production en hélium triogénique importante et donc des concentrations en hélium total supérieures à la valeur à la solubilité. Or, les concentrations en  $^3\text{He}$  sont proches de la valeur à la solubilité (à 10,5°C) qui est de  $6,28 \cdot 10^{-14}$  ccSTP.g $^{-1}$  (tableau 4.3), soulignant la ré-équilibration de l'eau souterraine avec l'atmosphère après la recharge.

*En raison de la ré-équilibration de l'eau souterraine avec l'atmosphère, mise en évidence par les concentrations en  $^{20}\text{Ne}$ ,  $^4\text{He}$  et  $^3\text{He}$  dans les eaux souterraines, il n'est pas possible de déterminer l'âge apparent de l'eau souterraine échantillonnée à partir de la méthode de datation tritium/hélium. Cette méthode de datation n'est pas adaptée à l'étude de ce système karstique.*

#### 4.4.2 $^{85}\text{Kr}$ et $^{39}\text{Ar}$

$^{85}\text{Kr}$

Le  $^{85}\text{Kr}$  permet de dater des eaux d'âge apparent compris entre l'actuel et 50 ans. Cette méthode de datation repose sur la comparaison du rapport  $^{85}\text{Kr}/\text{Kr}$  des eaux souterraines et de la chronique atmosphérique connue dans l'hémisphère nord. Le rapport  $^{85}\text{Kr}/\text{Kr}$  a été mesuré dans l'air et dans les eaux souterraines en dehors de pics de crue (tableau 4.4).

TABLEAU 4.4: Rapport  $^{85}\text{Kr}/\text{Kr}$  et  $^{39}\text{Ar}/\text{Ar}$  dans les eaux souterraines.

Date de prélèvement	Points de mesure	$^{85}\text{Kr}$ (dpm/cc Kr)	$^{39}\text{Ar}$ (% moderne)
Sept 2011	Atmosphère	390±21	
	Source R06	86±6	
	Source R24	131±6	96±8
Juillet 2012	Atmosphère	80±10	
	Forage B4	74±5	95±8
	Source RIII	71±3	
	Source RI	323±12	

Les concentrations atmosphériques sur le site d'étude sont comprises entre 80 et 390 dpm/cc Kr (tableau 4.4) alors que la concentration atmosphérique mesurée dans l'hémisphère nord est actuellement estimée à 85 dpm/cc Kr (Winger et al., 2005). Le  $^{85}\text{Kr}$  est principalement émis dans l'atmosphère lors du reconditionnement des combustibles nucléaires. L'ouest de la France se trouve balayé par des panaches de  $^{85}\text{Kr}$  issus de l'Usine de retraitement de la Hague. Les valeurs de concentration en  $^{85}\text{Kr}$  atmosphérique, mesurées sur le site d'étude en septembre 2011, plus élevées que celles attendues pour la moyenne de l'hémisphère nord, pourraient rendre compte de l'un de ces panaches.

Dans les eaux souterraines, les teneurs en  $^{85}\text{Kr}$  sont comprises entre 74 et 323 dpm/cc Kr (tableau 4.4). Les eaux souterraines prélevées dans les sources RI et R24 ont des concentrations en  $^{85}\text{Kr}$  supérieures à la valeur atmosphérique mesurées actuellement dans l'hémisphère nord (85 dpm/cc Kr). Ces fortes valeurs sont induites par les panaches atmosphériques de la Hague qui sont transmis aux eaux souterraines.

Les concentrations des eaux souterraines prélevées dans le forage B4 et la source RIII en juillet 2012 sont de 74 et 71 dpm/cc Kr respectivement. Ces concentrations, inférieures à la concentration atmosphérique de l'hémisphère nord, permettent d'estimer des âges apparents. Si l'on suppose un modèle "piston-flow" (partie 2.3.25), l'âge apparent est de  $3\pm 1$  ans et  $4\pm 1$  ans pour le forage B4 et la source RIII respectivement. Si un modèle exponentiel est supposé (partie 2.3.25), l'âge apparent est alors de 6-7 ans.

La concentration en  $^{85}\text{Kr}$  de la source R06, 86 dpm/cc Kr, correspond à la teneur atmosphérique (sans prendre en compte les rejets de la Hague). Ainsi, les eaux souterraines au niveau de la source R06 sont considérées comme actuelles, ceci met en évidence une forte part d'eau de recharge récente au niveau de cette source, résultat en cohérence avec les résultats en isotope stable présentés précédemment (partie 4.3.3.3).

Les calculs d'âge effectués à partir des rapports  $^{85}\text{Kr}/\text{Kr}$  sont sous-estimés, car ces estimations se basent sur l'utilisation de la chronique atmosphérique de l'hémisphère nord et ne tient pas compte des rejets de la Hague mis en évidence précédemment.

### $^{39}\text{Ar}$

L' $^{39}\text{Ar}$  permet de dater des eaux dont l'âge apparent est compris entre 50 et 1000 ans. La datation des eaux souterraines par le  $^{39}\text{Ar}$  repose sur la décroissance radioactive de cet élément et la comparaison de l'activité mesurée lors de l'échantillonnage et l'activité en  $^{39}\text{Ar}$  lors de la recharge de l'eau souterraine. L'activité en  $^{39}\text{Ar}$  lors de la recharge correspond à l'activité  $^{39}\text{Ar}$  dans l'atmosphère qui est connue et constante au cours du temps.

Dans les eaux souterraines de la source R24 et du forage B4, les teneurs en  $^{39}\text{Ar}$  sont comprises entre 87 % et 104 % d'eau moderne (en prenant en compte les erreurs de mesure). Connaissant

la loi de décroissance de l'argon et la teneur atmosphérique en  $^{39}\text{Ar}$ , l'âge apparent de ces eaux est estimé entre 54 ans et l'actuel. Ainsi, les eaux souterraines au niveau de ces points de prélèvements ne comportent pas une part d'eau ancienne (inférieure à 50 ans) significative.

*La datation des eaux souterraines à partir du  $^{85}\text{Kr}$  est rendue complexe par la présence de panaches de la Hague qui augmentent ponctuellement significativement la concentration atmosphérique en  $^{85}\text{Kr}$  au niveau du site d'étude. Néanmoins, cette méthode a souligné, au niveau de deux points de mesure, la présence d'eau "ancienne" (pluri-annuelle), dont l'âge apparent est estimé entre 3 et 7 ans, ce qui souligne la présence d'écoulement lent au sein de l'aquifère. La datation des eaux souterraines à partir du  $^{39}\text{Ar}$  met en évidence que les eaux souterraines ne comportent pas une part d'eau ancienne (plus ancienne que 50 ans) significative.*

#### 4.4.3 CFC-12 et $\text{SF}_6$

Le CFC-12 et le  $\text{SF}_6$  sont utilisés pour estimer l'âge apparent des eaux souterraines jeunes (moins de 50 ans). La datation à l'aide de ces deux traceurs repose sur la comparaison des concentrations en  $\text{SF}_6$  et CFC-12 dans les eaux souterraines et dans l'atmosphère.

##### *$\text{SF}_6$ des gaz du sol*

Les teneurs en  $\text{SF}_6$  des gaz du sol, prélevés entre 0,10 m et 2,40 m en mars 2013, sont en moyenne égales à 8,12 ppt (tableau 4.4). Cette valeur est légèrement supérieure à la valeur établie par l'USGS dans l'hémisphère nord. Ceci traduit certainement l'impact de la région parisienne sur les teneurs atmosphériques en  $\text{SF}_6$  (Santella et al., 2012). Les âges apparents seront calculés à partir des concentrations atmosphériques en CFC et  $\text{SF}_6$  fournies par l'USGS (Jurgens et al., 2012) corrigées du facteur de pollution calculé précédemment pour le  $\text{SF}_6$ .

##### *Variation des concentrations en CFC-12 et $\text{SF}_6$ lors d'un pic de crue*

Durant l'épisode de crue RE2 en mai 2012, les concentrations en  $\text{SF}_6$  et CFC-12 des eaux souterraines au niveau de la source R24 suivent la même évolution que le débit (figure 4.25). Ceci met en évidence une possible variabilité de l'âge des eaux mobilisées lors de l'épisode de crue (partie 4.2.1.1).

A partir des concentrations en Cl<sup>-</sup>, par décomposition de l'hydrogramme géochimique entre deux masses d'eau : eau pré-événement et eau de recharge directe, la proportion de l'eau de recharge récente qui compose l'eau souterraine de la source R24 lors du pic de crue a été estimée : elle varie au cours du pic de crue et atteint 20 % au maximum (partie 4.2.1.1). Cette proportion est corrélée à la concentration en  $\text{SF}_6$  dans les eaux souterraines (figure 4.26). A partir de cette relation linéaire, les concentrations en  $\text{SF}_6$  de l'écoulement de base (correspondant à une proportion d'eau de recharge nulle) ainsi que celle de l'eau de recharge (correspondant à une

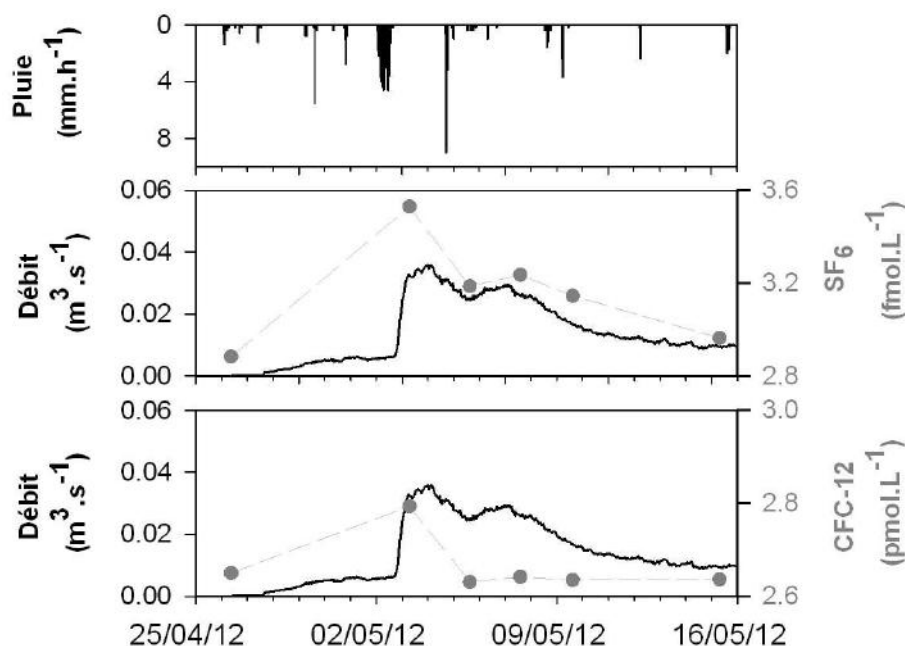


FIGURE 4.25: Pluviométrie et variation des concentrations en CFC-12 et SF<sub>6</sub> des eaux souterraines de la source R24 lors du pic de crue RE2 .

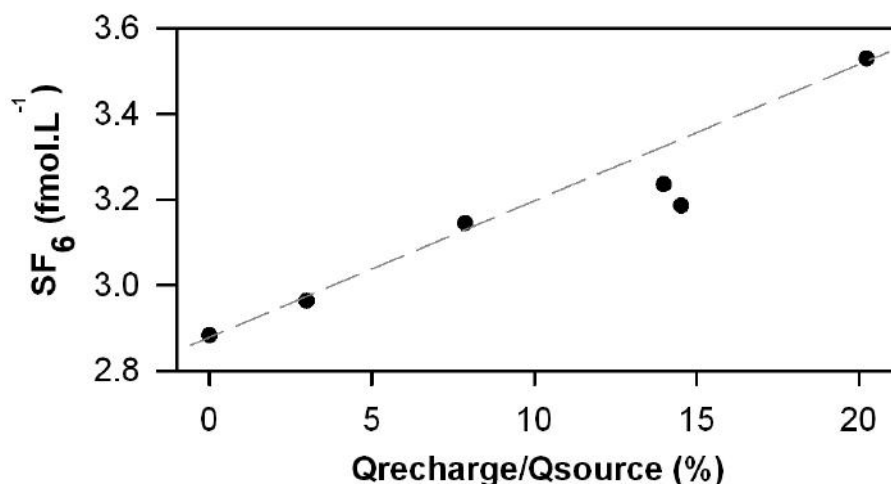


FIGURE 4.26: Concentration en SF<sub>6</sub> en fonction de la part du débit dû à la recharge directe, estimé à partir des concentrations en chlorure lors du pic de crue RE2

proportion d'eau de recharge égale à 100 %) sont estimés, et valent respectivement 2,9 fmol.L<sup>-1</sup> et 5,7 fmol.L<sup>-1</sup>.

La concentration en SF<sub>6</sub> de l'eau de recharge estimée par cette méthode (5,7 fmol.L<sup>-1</sup>) est supérieure à la concentration d'eau en équilibre avec l'atmosphère lors de l'événement pluvieux (3,4 fmol.L<sup>-1</sup>). Cette différence est probablement l'image d'un excès d'air, processus largement exprimé dans les aquifères karstiques (Babinka, 2007). Mais cette hypothèse est en contradiction avec les mesures en <sup>3</sup>He et <sup>20</sup>Ne (partie 4.4.1) qui démontrent l'absence d'excès d'air et la ré-équilibration de l'eau souterraine avec l'atmosphère. Les coefficients de diffusion des gaz rares <sup>3</sup>He (5,73.10<sup>-5</sup> cm<sup>2</sup>.sec<sup>-1</sup>) (Jahne et al., 1987) et <sup>20</sup>Ne (2,98.10<sup>-5</sup> cm<sup>2</sup>.sec<sup>-1</sup>) (Jahne et al., 1987)



sont plus élevés que ceux du CFC-12 ( $7,2 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^2 \cdot \text{sec}^{-1}$  (Warner & Weiss, 1985) et du  $\text{SF}_6$  ( $1,2 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2 \cdot \text{sec}^{-1}$  (King & Saltzman, 1995). La variabilité des coefficients de diffusion peut expliquer en partie l'absence de dégazage pour le CFC-12 et le  $\text{SF}_6$ . Les gaz rares ont été analysés au GRAM (Gaz Rare A Montréal) dans le but de calculer l'excès d'air, les résultats obtenus sont incompatibles avec des eaux souterraines récentes, il y a un excès important en  $^4\text{He}$  par rapport aux autres gaz rares. Ces résultats n'ont pas pu être utilisés pour calculer l'excès d'air et interpréter les données.

Afin de prendre en compte simultanément les mesures en CFC-12 et en  $\text{SF}_6$ , différents modèles de mélange présentés dans la partie 2.3.2.5 ont été testés. Les modèles utilisés sont ceux proposés par l'USGS (Jurgens et al., 2012). Les compositions en CFC-12 et en  $\text{SF}_6$  des échantillons d'eau souterraines sont comparées aux concentrations modélisées à partir de trois modèles : "piston flow (PFM)", "exponential model (EMM)" and "binary model (BMM)" en prenant en compte l'excès d'air déterminé précédemment et égal à 7,2 cc (figure 4.27). Le modèle le plus cohérent avec la composition des eaux souterraines est le modèle "binary model" qui correspond au mélange de deux masses d'eau, l'une transférée par "piston flow" dont l'âge apparent est estimé à 29 ans et une eau de recharge récente. Ce résultat est cohérent avec d'autres études dans les milieux karstiques (Long & Putnam, 2006).

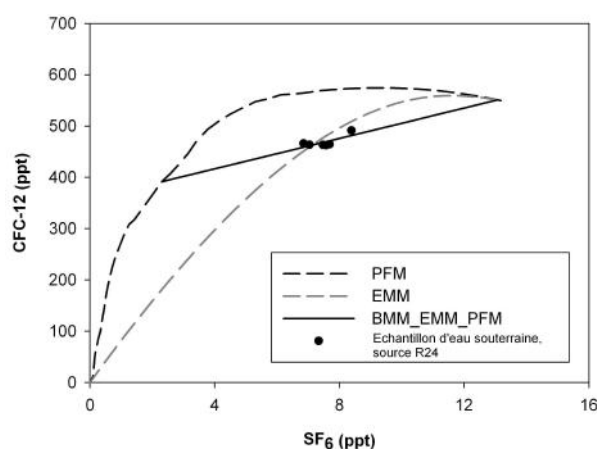


FIGURE 4.27: Courbes CFC-12 et  $\text{SF}_6$  obtenues à partir des différents modèles de mélange et échantillons d'eau souterraine prélevés au niveau de la source R24. Le modèle PFM correspond au modèle "piston flow", le modèle EMM correspond au modèle "Exponential Mixing Model" et le "BMM-EMM-EPF" correspond à un modèle de mélange avec une composante dont l'écoulement est modélisé comme un mélange exponentiel et une seconde composante qui correspond à de l'eau transférée par "piston-flow".

*La datation des eaux souterraines à partir des données CFC-12 et  $\text{SF}_6$  est complexe sans la connaissance de l'excès d'air. Un modèle de mélange entre deux masses d'eau, une eau de recharge récente et une eau ancienne correspondant à l'écoulement de base a été réalisé et a permis de déterminer l'âge apparent de l'écoulement de base, estimé à 29 ans.*

## 4.5 Conclusion sur l'apport de l'utilisation de traceurs géochimiques et isotopiques pour la compréhension du système karstique

Dans cette partie, une large gamme de traceurs isotopiques et géochimiques a été utilisée afin de discriminer les différentes masses d'eau présentes au sein de l'aquifère karstique étudié dans le but de connaître la distribution des vitesses de transfert et des temps de résidence de l'eau souterraine.

Ces traceurs permettent de mettre en évidence une très large gamme des temps de résidence de l'eau souterraine allant de quelques heures lors de pics de crue (mis en évidence par les concentrations en  $\text{Ca}^{2+}$  et les variations de pH lors de pics de crue) jusqu'à quelques années au niveau de l'écoulement de base (mis en évidence par les traceurs de datation,  $\text{SF}_6$ , CFC, et  $^{85}\text{Kr}$ ).

L'étude géochimique et isotopique des eaux souterraines est cohérente avec les résultats obtenus lors de l'étude hydrodynamique par traitement du signal du système karstique et permet d'apporter des informations supplémentaires. En effet, le traitement du signal effectué sur les données piézométriques et débitmétriques a démontré la présence deux grands types d'écoulements : les écoulements rapides (temps de réponse inférieur à quelques jours) et les écoulements lents (temps de résidence supérieur à quelques mois).

L'étude des traceurs géochimiques et isotopiques a permis de distinguer au sein des écoulements rapides, 3 grands types d'écoulement : des **transferts d'eau de surface très rapides** (quelques heures), qui modifient la composition géochimique des eaux souterraines et notamment la concentration en  $\text{Ca}^{2+}$ , des **transferts d'eau de surface un peu plus lent** (quelques jours à quelques semaines), mis en évidence par la diminution par dilution de la concentration des ions dans les eaux souterraines, exceptés pour les ions  $\text{Ca}^{2+}$ , des **transferts rapides d'eau avec remobilisation d'eau stockée dans l'épikarst** par effet de piston ou mélange, mis en évidence par l'augmentation de la concentration en éléments majeurs du système calco-carbonique et des teneurs en tritium.

L'utilisation des traceurs de datation ( $\text{SF}_6$ , CFC, et  $^{85}\text{Kr}$ ) a permis de mettre en évidence la présence d'eau à temps de résidence important, supérieur à quelques années. L'utilisation des traceurs de datation dans cet aquifère s'est avéré extrêmement complexe. La présence de dégazage de l'eau souterraine vers l'atmosphère rend l'utilisation du couplage tritium-hélium impossible pour déterminer l'âge apparent des eaux souterraines. L'utilisation des traceurs  $\text{SF}_6$ , CFC est complexe en raison de la présence d'excès d'air. Néanmoins, la variabilité de la concentration en  $\text{SF}_6$  et CFC-12 lors d'un pic de crue a permis de décomposer les eaux souterraines en deux masses d'eau et ainsi d'estimer l'âge apparent de l'écoulement de base. Le

$^{85}\text{Kr}$  semble être le traceur le plus adapté dans les milieux karstiques (en l'absence de pollution atmosphérique) car ce gaz rare n'est pas influencé par l'excès d'air mais nécessite le dégazage d'une quantité importante d'eau souterraine. L'utilisation de ce traceur a permis d'estimer l'âge apparent de l'eau souterraine en étiage entre 3 et 7 ans.

L'étude géochimique et isotopique des eaux souterraines a souligné une très forte hétérogénéité des mécanismes d'écoulement au sein de l'aquifère. En effet, les sources et les forages étudiés réagissent presque tous différemment aux précipitations. Aucune logique spatiale des écoulements n'apparaît. Néanmoins, l'utilisation de traceurs des eaux rapides (radon,  $^{13}\text{C}$ ) a montré une augmentation des temps de résidence des eaux souterraines de l'amont vers l'aval du dôme, soutenant le modèle conceptuel décrit à partir de l'évolution des temps de réponse pluie-niveau piézométrique proposé dans le chapitre 3.

# 5

## **Conclusion générale**

L'objectif de cette thèse est de mieux comprendre et de mieux définir les transferts souterrains dans les différentes parties (zone d'infiltration, zone saturée) d'un aquifère karstique. Les aquifères karstiques se différencient des autres types d'aquifères par un fonctionnement complexe lié à une large distribution des porosités allant de la porosité matricielle (micrométrique) à la porosité de conduits (plurimétrique). Cette distribution induit une distribution des vitesses de transfert. Ainsi, les eaux souterraines peuvent être décomposées en plusieurs masses d'eau en fonction de leur temps de résidence.

L'originalité de ce travail repose sur le couplage de deux méthodes complémentaires : (i) une approche hydrodynamique qui s'appuie sur l'analyse de chroniques piézométriques et débitométriques à partir d'outils de traitement du signal et (ii) une approche géochimique et isotopique basée sur l'utilisation de nombreux traceurs naturels et anthropiques. En raison de la large distribution des temps de résidence attendue et de la complexité du fonctionnement de ce système, des traceurs variés des eaux souterraines ont été utilisés (conductivité électrique, pH, température, éléments majeurs,  $\delta^{18}\text{O}$ ,  $\delta^2\text{H}$ ,  $\delta^{13}\text{C}$ ,  $^3\text{H}$ , He, radon,  $^{85}\text{Kr}/\text{Kr}$ , CFC,  $\text{SF}_6$ ,  $^{39}\text{Ar}$ ). L'approche multi-traceurs avait pour but de différencier les différentes masses d'eau qui composent les eaux souterraines, mais également d'identifier l'intérêt et l'apport de ces traceurs dans l'étude des milieux karstiques. Les différents traceurs n'ont pas été utilisés aux mêmes échelles spatiales et temporelles en fonction de leur intérêt et de l'objectif d'utilisation de chacun. Les deux approches, hydrodynamique et géochimique ont été appliquées à différentes échelles temporelles ; avec des mesures et des échantillonnages des eaux souterraines à haute fréquence lors de pics de crue et avec un suivi pluri-annuel à pas d'échantillonnage plus large (mensuel). L'intérêt majeur du site étudié est lié à la forte densité de points de mesure et d'échantillonnage équipés pour la plupart de sondes multi-paramètres (31 sondes), ceci a permis une étude spatiale à échelle assez fine. De plus, la faible superficie de la zone étudiée ( $40 \text{ km}^2$ ) permet de supposer que la fonction d'entrée (pluie) est identique en tout point du site. Cette hypothèse est particulièrement intéressante car dans ce cas, une variabilité des réponses, géochimiques et hydrodynamiques, est induite uniquement par l'aquifère et fournit des informations sur le fonctionnement de l'aquifère karstique.

## Synthèse des résultats

Bien que cette étude ait porté sur une surface relativement faible ( $40 \text{ km}^2$ ), elle a mis en évidence une variabilité spatiale de la composition géochimique des eaux souterraines, notamment de la concentration en radon, de la signature en  $\delta^{13}\text{C}$  et du rapport Ca/Mg. Cette variabilité est interprétée en terme de variabilité du temps de résidence moyen des eaux souterraines ce qui souligne l'hétérogénéité des circulations et le caractère karstique de cet aquifère. Les deux approches, hydrodynamique et géochimique, ont mis en évidence différents modes de transfert

de l'eau souterraine au sein de l'aquifère. L'analyse de chroniques hydrodynamiques (pluie, niveau piézométrique, débit) à partir de la forme des fonctions d'autocorrélation, de corrélation croisée et de densité spectrale, a permis de séparer les écoulements en deux grandes catégories et d'estimer des vitesses de transfert : les écoulements rapides (temps de réponse pluie-niveau piézométrique inférieur à quelques heures) et les écoulements lents (quelques mois). L'analyse de chroniques hydrodynamiques ne permet pas de discriminer les masses d'eau qui composent ces deux catégories ni de déterminer leurs origines. De façon complémentaire, l'approche géochimique permet de différencier au sein des eaux "rapides", trois masses d'eau différentes et au sein des eaux "lentes", une fraction d'écoulement très inertielle avec des masses d'eau au temps de résidence relativement importante. Ces différents mécanismes d'écoulement sont présentés ci-dessous. Le couplage des deux approches géochimiques et hydrodynamiques présentées précédemment a également mis en évidence une organisation spatiale de certains processus malgré la forte hétérogénéité structurale de l'aquifères et a souligné l'importance de la zone non saturée dans les mécanismes d'écoulement des eaux souterraines.

### *Les différents modes de transfert de l'eau souterraine dans l'aquifère*

En se basant sur l'évolution de la composition géochimique des eaux souterraines à différentes échelles et de la connaissance des cinétiques d'équilibres gaz-solution-roche, quatre grands types de transfert ont pu être identifiés, du plus rapide au plus lent :

- (A) *des transferts "très rapides" d'eau de surface (quelques heures à quelques jours) impliquant des conduits karstiques ou des fractures ouvertes dans la zone non saturée et la zone saturée.* L'arrivée de ces eaux s'accompagne d'une perte de saturation vis à vis de la calcite, ce qui implique des transferts extrêmement rapides. Les transferts les plus rapides, reconnus sur le site d'étude par leur signature en  $\text{Ca}^{2+}$  et leur pH, sont de l'ordre de quelques heures (mis en évidence au niveau de la source R24). Leur vitesse très élevée implique nécessairement des transferts à travers des conduits ou des fractures ouvertes.
- (B) *des déplacements "très rapides" d'eau stockée dans la zone non saturée de l'aquifère.* Il s'agit de la remobilisation lors de pics de crue d'eau à temps de résidence important (quelques semaines et jusqu'à quelques années). Ces transferts ont été mis en évidence par l'augmentation des concentrations en tritium et en certains éléments majeurs lors des pics de crue (exemple forage F9 et source R06). L'eau remobilisée est caractérisée par une forte  $\text{pCO}_2$  par rapport à celle de la zone saturée, soulignant une remobilisation d'eau stockée dans une zone proche de la surface, probablement au niveau de l'épikarst.
- (C) *des transferts "rapides" (quelques jours à quelques semaines) d'eau de surface.* Ces transferts ont lieu à des vitesses plus lentes que les transferts "A" et mettent en jeu des porosités plus fines. Ces transferts sont mis en évidence par la diminution des teneurs en  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Cl}^-$  et  $^3\text{H}$  et des  $\delta^{18}\text{O}$ ,  $\delta^2\text{H}$  et  $\delta^{13}\text{C}$  ainsi que par la stationnarité des teneurs en calcium à l'échelle d'un

pic de crue. Ceci met en évidence que cette arrivée d'eau de surface est en équilibre avec la calcite, contrairement à l'eau des transferts de type "A".

- (D) des transferts "très lents" induisant la présence de masses d'eau souterraine à temps de résidence supérieurs à quelques mois et allant jusqu'à quelques années. Ce type de transfert a été mis en évidence par des suivis continus de la conductivité électrique. Ces suivis ont démontré une variation saisonnière de la conductivité électrique associée à un transfert advectif lent de l'eau d'infiltration (au niveau du forage A2). De plus, l'utilisation de traceurs de datation ( $^{85}\text{Kr}/\text{Kr}$ , CFC,  $\text{SF}_6$ ) a souligné la présence de masses d'eau d'âge apparent supérieur à quelques années.

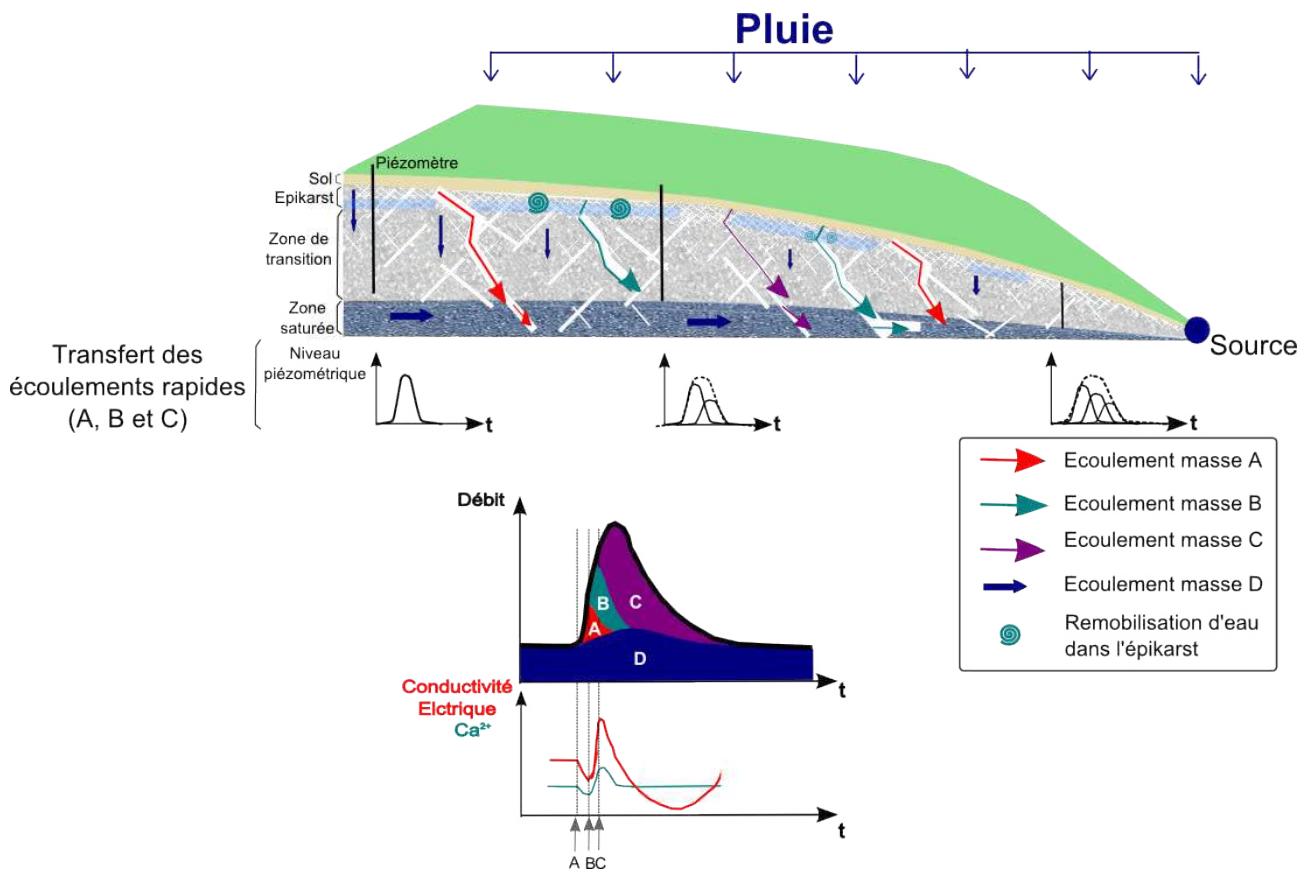


FIGURE 5.1: Schéma des mécanismes d'écoulement des quatre masses d'eau identifiées au sein de l'aquifère. La masse d'eau A correspond à de l'eau de surface transférée très rapidement vers la zone non saturée et les sources, la masse d'eau B correspond à de l'eau stockée dans l'épikarst, remobilisée et déplacée rapidement lors de pics de crue, la masse d'eau C correspond à de l'eau de surface transférée rapidement vers la zone saturée et les sources, et la masse D se caractérise par des transferts lents. En fonction du point d'étude, de l'épisode de pluie et de la saison, les proportions entre les différentes masses d'eau (A, B, C et D) ne sont pas conservées.

Lors d'un pic de crue, la proportion de la recharge directe d'eau de surface, somme des écoulements A et C, a été estimée à 7 % du débit total (sur deux sources), ceci met en évidence une faible part des écoulements rapides d'eau de surface à l'échelle d'un cycle hydrologique.

Les diverses masses d'eau au sein de l'aquifère, explicitées précédemment, se différencient par leurs vitesses de transfert. Cette distribution des vitesses de transfert implique l'existence d'une gamme étendue de perméabilités à l'origine des écoulements. L'étude à différentes échelles spatiales et temporelles démontre que selon le point de mesure (géochimie et hydrodynamique), la saison et l'intensité de la sollicitation, l'aquifère répond de façon très hétérogène et non linéaire. Cette hétérogénéité rend le système complexe à étudier, mais elle permet de souligner la présence de différents mécanismes d'écoulement grâce à la variabilité des proportions relatives de chaque masse d'eau ou de chaque mécanisme d'écoulement.

En s'affranchissant de certains processus localisés liés à l'hétérogénéité du système karstique, un schéma conceptuel des écoulements a été proposé. La première arrivée d'eau correspond à un transfert très rapide d'eau de surface (masse d'eau A) qui peut induire localement la remobilisation d'eau stockée par exemple dans l'épikarst (masse d'eau B). Dans un second temps, des eaux de surface plus lentes (masse d'eau C) arrivent avec une distribution des vitesses de transfert. Ces arrivées d'eau sont soulignées par la diminution globale de la conductivité électrique et de la concentration en éléments majeurs durant la période de recharge. Entre les événements pluvieux, les sources sont alimentées par la vidange de réservoirs situés dans l'aquifère notamment dans la zone d'infiltration et plus particulièrement l'épikarst, ce qui induit une augmentation globale de la conductivité électrique de l'eau souterraine (figure 5.1). Les proportions relatives des différents écoulements (A, B, C et D) varient en fonction des points de mesure, des épisodes de crue et de la saison.

### ***Une organisation spatiale des écoulements rapides***

Malgré la forte hétérogénéité des réponses de cet hydrosystème, une organisation spatiale des écoulements souterrains rapides (masses d'eau A, B et C) a été mise en évidence grâce au couplage hydrodynamique-géochimique. Pour cette étude, seuls les piézomètres caractérisés par des variations significatives du niveau piézométrique lors d'événements pluvieux ont été utilisés. L'étude de chroniques hydrodynamiques par traitement du signal a montré que le temps de réponse et l'inertie du niveau piézométrique augmente vers l'aval du dôme hydrogéologique. Ainsi plus un forage se situe à l'aval, plus il subit longtemps l'impact d'un événement pluvieux. Ce constat met en évidence la superposition des arrivées verticales d'eau de surface dans la zone non saturée et des arrivées horizontales d'eau depuis l'amont du dôme. Ce schéma se rapproche fortement des modèles hydrologiques utilisés pour les études de bassin versant, ce qui souligne le caractère karstique du système étudié. L'étude géochimique est en cohérence avec ce schéma, en effet, les traceurs d'eau rapide (radon et  $\delta^{13}C$ ) ont mis en évidence une augmentation du temps de résidence des eaux souterraines de l'amont vers l'aval du dôme.

### ***L'importance du rôle de la zone non saturée***

La fonction d'entrée du système (excédant hydrique, intensité des pluies) n'est pas constante au cours de l'année. Afin d'étudier la variabilité saisonnière des mécanismes d'écoulement, deux ap-



proches ont été appliquées : le développement de la méthode du corrélogramme croisé coulissant et la mesure de la composition géochimique des eaux souterraines sur un cycle hydrologique.

Une variation saisonnière des temps de réponse pluie-niveau piézométrique est mise en valeur par l'application de la méthode du corrélogramme croisé coulissant. Cette variabilité s'explique en partie par une variabilité de l'intensité de la pluie, qui induit une variabilité de la vitesse de saturation de l'épikarst et ainsi du temps de transfert de l'eau du sol jusqu'à la zone non saturée.

La zone non saturée modifie de façon significative la composition géochimique des eaux d'infiltration. La zone non saturée et l'épikarst sont des lieux de stockage préférentiels de l'eau. Ainsi, les suivis géochimiques lors de pics de crue mettent en évidence une remobilisation d'eau à temps de résidence élevé au passage du front d'eau de recharge. La composition géochimique de cette eau "ancienne" (forte concentration en  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Cl}^-$  et faible pH) souligne que cette eau est stockée dans une zone proche de la surface, soulignant la présence d'un épikarst fonctionnel sur le site étudié.

## Limites et perspectives

Cette thèse a porté sur l'étude d'un aquifère karstique du Dogger situé en Bourgogne, la zone d'étude limitée à quelques dizaines de  $\text{km}^2$  a permis d'étudier à échelle spatiale fine les réponses du système à des événements pluvieux. Malgré une faible superficie, les mécanismes d'écoulement et les proportions relatives des différentes masses d'eau présentes dans les eaux souterraines sont très hétérogènes. L'étude en parallèle de nombreux forages et sources et l'hétérogénéité des réponses géochimiques et hydrodynamiques a permis d'étudier les différents mécanismes d'écoulement au sein de l'aquifère. Les deux approches utilisées pour répondre aux objectifs de la thèse et les réponses qui ont été apportées soulèvent de nouvelles questions ou de nouvelles perspectives.

### *Le corrélogramme croisé coulissant : un outil simple pour l'étude de la variabilité temporelle du fonctionnement*

Les systèmes karstiques sont des aquifères au fonctionnement non linéaire en raison de la distribution des porosités, de la présence de réservoirs karstiques et de l'épikarst. D'un point de vue méthodologique, une approche innovante pour étudier la variabilité temporelle du temps de réponse de l'aquifère aux événements pluvieux a été développée : la méthode du corrélogramme croisé coulissant. Elle permet d'étudier l'évolution de la réponse impulsionnelle au cours du temps. Dans cette étude, elle a été appliquée à l'échelle de quelques années avec des fenêtres de trois mois entre des chroniques pluviométriques et piézométrique. L'étude de la réponse impulsionnelle sur des périodes courtes par la méthode du corrélogramme croisé coulissant permet

d'étudier l'évolution de celle-ci au cours du temps et de la comparer à d'autres paramètres (pluie, évapotranspiration, épaisseur de la zone non saturée). L'application de cette méthode dans d'autres contextes permettrait d'étudier sa pertinence et ses limites. Ainsi, l'utilisation de cette méthode pour l'étude d'autres aquifères karstiques permettrait de valider la méthode sur d'autres données. Actuellement, la limite de cette approche consiste à utiliser des fenêtres suffisamment grandes pour avoir un nombre suffisant de pics de crue. Le développement de sondes multi-paramètres permet de mesurer en continu de plus en plus de traceurs géochimiques, comme le radon ou le CO<sub>2</sub> dissous. L'application de la méthode du corrélogramme croisé coulissant sur ce type de chroniques soulignerait la variabilité temporelle des masses d'eau mises en jeu dans les écoulements souterrains.

### *Les traceurs de datation dans le milieu karstique*

Durant cette thèse, l'utilisation de traceurs de datation (<sup>3</sup>H/He, <sup>85</sup>Kr, CFC, SF<sub>6</sub>, <sup>39</sup>Ar) pour étudier le fonctionnement des aquifères karstiques a été expérimentée. Dans le cadre de cette étude, nous avons montré que le couplage <sup>3</sup>H et <sup>4</sup>He n'apporte pas d'information intéressante en raison d'un dégazage de l'eau souterraine vers l'atmosphère. A partir, des concentrations en <sup>39</sup>Ar, nous mettons en évidence que dans les eaux souterraines prélevées, aucune masse d'eau d'âge apparent supérieur à 50 ans n'est présente en quantité significative. Les traceurs <sup>85</sup>Kr, CFC-12, SF<sub>6</sub> utilisés pour dater les eaux de moins de 50 ans, ont mis en évidence, au sein de l'aquifère, la présence de masses d'eau caractérisées par des temps de résidence supérieurs à plusieurs années (traceur <sup>85</sup>Kr), voire plusieurs dizaines d'années (traceurs CFC, SF<sub>6</sub>). Ces estimations sont peu précises et reposent sur des hypothèses fortes (hypothèses sur l'excès d'air, sur les mélanges de masses d'eau, sur la concentration atmosphérique en <sup>85</sup>Kr). Mais l'utilisation de ces méthodes représente une avancée majeure dans l'étude de cet aquifère, car elles mettent en évidence la présence de masses d'eaux à temps de résidence importants, soulignant l'intérêt d'utiliser ce type de traceurs dans le cadre de l'étude des aquifères karstiques. Le site d'étude, en raison de la faible épaisseur de sa zone non saturée (contact atmosphère-zone non saturée probable) et de sa faible superficie (faible distribution de l'âge des eaux) n'est peut être pas le site le plus adapté à ce type de traceurs. Ainsi, l'utilisation de ces traceurs dans des aquifères karstiques profonds semblent plus probante (Katz et al., 2001).

L'évolution de la concentration en CFC-12 et SF<sub>6</sub> lors d'un pic de crue et l'interprétation qui a pu être réalisée à partir de ces données met en évidence la nécessité dans le milieu karstique d'échantillonner ces traceurs en étiage mais également en pic de crue à haute fréquence. L'échantillonnage d'eau souterraine en amont des mesures en laboratoire pour les traceurs de datation notamment pour le <sup>85</sup>Kr (durée des échantillonnages, utilisation de pompe) rend complexe l'utilisation de ces traceurs lors d'événements pluvieux. Le développement de nouvelles méthodes d'échantillonnage, plus simples et pseudo-autonomes, permettrait d'obtenir des mesures à haute fréquence de ces traceurs lors de pics de crue.

### *Variabilité spatiale de la réponse impulsionnelle*

L'étude spatiale de la réponse impulsionnelle et des temps de résidence de l'eau a permis d'établir un modèle des transferts rapides au sein de l'aquifère : les écoulements rapides s'organisent de l'amont vers l'aval du dôme, à l'image des modèles de bassin versant, mettant en évidence une organisation spatiale des écoulements rapides au sein de la zone saturée. Le développement d'un modèle numérique permettrait de valider le modèle conceptuel établi, de décomposer les différents transferts, verticaux dans la zone non saturée et horizontaux dans la zone saturée, et de connaître plus précisément les vitesses de transfert. Le couplage de ce modèle avec les mesures géochimiques permettrait de définir les proportions de certains réservoirs et notamment des eaux de recharge directe.

### *Variabilité saisonnière du fonctionnement de la zone non saturée*

L'étude saisonnière de la fonction de transfert entre pluie et niveau piézométrique par la méthode du corrélogramme croisé coulissant souligne une variabilité saisonnière des temps de réponse et donc des processus d'infiltration de l'eau de recharge. La variabilité saisonnière des temps de réponse est à ce stade expliquée par une variabilité de la saturation de l'épikarst en fonction des saisons et de l'intensité des précipitations. Le suivi de la teneur en eau dans les premiers mètres de l'aquifère grâce à l'utilisation de tensiomètres permettrait d'étudier la vitesse d'infiltration du front d'eau. Des stations sol ont été équipées sur le site d'étude, les résultats seront étudiés par la suite. Des études ont montré l'intérêt d'utiliser des outils géophysiques (Jacob et al., 2008) pour l'étude de la variation saisonnière de la saturation de l'épikarst. Utilisés lors de pics de crue dans ces conditions hydrologiques différentes (été et hiver), ils pourraient fournir des informations sur les mécanismes de saturation de l'épikarst lors d'événements pluvieux.

Cette étude a permis de mettre en évidence la remobilisation d'eau stockée dans la zone non saturée ou l'épikarst. La connaissance de la composition géochimique de ces eaux n'a pas pu être déterminée, ainsi l'importance de cette masse d'eau dans les écoulements souterrains n'a pas pu être identifiée précisément. Les suivis géochimiques et isotopiques lors des pics de crue ont permis de montrer qu'il s'agissait potentiellement d'eau stockée dans l'épikarst. Ainsi, le suivi de la qualité de l'eau stockée dans l'épikarst par la mise en place de piézomètres, de bougies poreuses ou d'infiltromètres à mèches permettrait de caractériser ce pôle d'eau, son temps de résidence moyen et de déterminer la proportion relative de cette masse d'eau dans les écoulements souterrains.

---

## Bibliographie

- Achim, P., Dupont, H., Leroy, A., & Armand, P. (2010). An Operational Meteorological Forecast System at Mesoscale for Radiological and Chemical Impact Assessment. *Proceeding of HARMO 13 int. conf.*, (pp. 580–584).
- Adinolfi, F., Falgiani, A., Parisse, B., Petitta, M., Spizzico, M., & Tallini, M. (2008). Chemical and isotopic ( $^{18}\text{O}$ ,  $^2\text{H}$ ,  $^{13}\text{C}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ ) multi-tracing for groundwater conceptual model of carbonate aquifer (Gran Sasso INFN underground laboratory – central Italy). *Journal of hydrology*, 357(3–4), 368–388.
- Alban, F. (2010). *Construction d'un modèle géologique 3D du site de Valduc*. Rapport de stage, Université de Bordeaux, 84 pages.
- Alban, F. (2011). *Construction d'un modèle géologique 3D du site de Valduc*. Rapport de stage, Université de Bordeaux, 80 pages.
- Althaus, R., Klump, S., Onnis, A., Kipfer, R., Purtschert, R., Stauffer, F., & Kinzelbach, W. (2009). Noble gas tracers for characterisation of flow dynamics and origin of groundwater : A case study in Switzerland. *Journal of hydrology*, 370(1–4), 64–72.

- Amraoui, F., Razack, M., & Bouchaou, L. (2003). Turbidity dynamics in karstic systems. Example of Ribaa and Bittit springs in the Middle Atlas (Morocco). *Hydrological Sciences Journal*, 48(6), 971–984.
- Andreo, B., Jiménez, P., Durán, J. J., Carrasco, F., Vadillo, I., & Mangin, A. (2006). Climatic and hydrological variations during the last 117–166 years in the south of the Iberian Peninsula, from spectral and correlation analyses and continuous wavelet analyses. *Journal of hydrology*, 324(1–4), 24–39.
- Angelini, P. (1997). Correlation and spectral analysis of two hydrogeological systems in Central Italy. *Hydrological Sciences Journal*, 42(3), 425–438.
- Antea (2010). *CEA Centre de Valduc. Etudes hydrogéologiques. Forages, essais de pompages et traçage multitraceurs*. Rapport d'étude.
- Aquilina, L., Ladouche, B., & Dörfliger, N. (2005). Recharge processes in karstic systems investigated through the correlation of chemical and isotopic composition of rain and springwaters. *Applied Geochemistry*, 20(12), 2189–2206.
- Atkinson, T. C. (1977). Diffuse flow and conduit flow in limestone terrain in the Mendip Hills, Somerset (Great Britain). *Journal of hydrology*, 35(1–2), 93–110.
- Babinka, S. (2007). *Multi-tracer study of karst waters and lake sediments in Croatia and Bosnia-Herzegovina : Plitvice Lakes national park and Bihac area*. Thèse, University Bonn, 167 pages.
- Bailly-Comte, V., Martin, J. B., & Sreaton, E. J. (2011). Time variant cross correlation to assess residence time of water and implication for hydraulics of a sink-rise karst system. *Water Resources Research*, 47(5).
- Bakalowicz, M. (1979). *Contribution de la géochimie des eaux à la connaissance de l'aquifère karstique et de la karstification*. Thèse doct. d'état sc. nat., Université Paris VI, 269 pages.
- Bakalowicz, M. (1986). De l'Hydrogéochimie en karstologie. *Karst Euskadi*, (pp. 105–129).
- Bakalowicz, M. (1992). *Géochimie des eaux et flux de matières dissoutes. L'approche objective du rôle du climat dans la karstogénèse*. In *Karst et évolutions climatiques. Hommage à Jean-Nicod*. Talence, Presses Universitaires de Bordeaux.
- Bakalowicz, M. (2005). Karst groundwater : a challenge for new resources. *Hydrogeology Journal*, 13(1), 148–160.
- Bakalowicz, M. (2010). Karst et ressources en eau souterraine : un atout pour le développement des pays méditerranéens. *Science et changements planétaires / Sécheresse*, 21(4), 319–22.

- Bakalowicz, M., Blavoux, B., & Mangin, A. (1974). Apports du traçage isotopique naturel à la connaissance du fonctionnement d'un système karstique - teneurs en oxygène-18 de trois systèmes des Pyrénées, France. *Journal of hydrology*, 23(1-2), 141-158.
- Barbieri, M., Boschetti, T., Petitta, M., & Tallini, M. (2005). Stable isotope ( $^2\text{H}$ ,  $^{18}\text{O}$ , and  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ) and hydrochemistry monitoring for groundwater hydrodynamics analysis in a karst aquifer (Gran Sasso, Central Italy). *Applied Geochemistry*, 20(11), 2063-2081.
- Batiot-Guilhe, C., Seidel, J.-L., Jourde, H., Hébrard, O., & Bailly-Comte, V. (2007). Seasonal variations of  $\text{CO}_2$  and  $^{222}\text{Rn}$  in a mediterranean sinkhole - spring (Causse d'Aumelas, SE France). *International Journal of Speleology*, 36(1), 51-56.
- Baubron, J.-C. & Sabroux, J.-C. (1984). *Analyse de gaz dans les sols sur les zones de Bouillante et de Moscou (Guadeloupe) Rep.* BRGM rapport n° 84 SGN 400 GTH, Orléans. 94 pages.
- Birk, S. & Hergarten, S. (2010). Early recession behaviour of spring hydrographs. *Journal of hydrology*, 387(1-2), 24-32.
- Birk, S., Liedl, R., & Sauter, M. (2004). Identification of localised recharge and conduit flow by combined analysis of hydraulic and physico-chemical spring responses (Urenbrunnen, SW-Germany). *Journal of hydrology*, 286(1-4), 179-193.
- Blein, O. (2005). *Rapport des descriptions pétrographiques et structurales des carottes du centre de Valduc (CEA)*. Rapport d'étude, 54 pages.
- Bouchaou, L., Mangin, A., & Chauve, P. (2002). Turbidity mechanism of water from a karstic spring : example of the Ain Asserdoune spring (Beni Mellal Atlas, Morocco). *Journal of hydrology*, 265(1-4), 34-42.
- Box, G., Jenkins, G., & Reinsel, G. (1994). *Time Series Analysis : Forecasting and Control*. Prentice Hall Inc. Englewood Cliffs, NJ, USA, third edition.
- BRGM (2004). Bd Scan-Géol50. Cartes images dallées 8032, 8033, 8140 et 8141. *BRGM, Orléans*.
- Bu, X. & Warner, M. (1995). Solubility of chlorofluorocarbon 113 in water and seawater. *Deep Sea Research Part I : Oceanographic Research Papers*, 42(7), 1151 - 1161.
- Bullister, J. L. & Weiss, R. F. (1988). Determination of  $\text{CCl}_3\text{F}$  and  $\text{CCl}_2\text{F}_2$  in seawater and air. *Deep Sea Research Part A. Oceanographic Research Papers*, 35(5), 839-853.
- Bundschuh, J. (1993). Modeling annual variations of spring and groundwater temperatures associated with shallow aquifer systems. *Journal of hydrology*, 142(1-4), 427-444.

- Burger, A. (1983). Prospection et captage des eaux souterraines des roches carbonatées du Jura. *Société Suisse de l'Industrie du Gaz et des Eaux, Zurich*, (pp. 533–583).
- 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.
- Cartwright, I., Weaver, T., Fulton, S., Nichol, C., Reid, M., & Cheng, X. (2004). Hydrogeochemical and isotopic constraints on the origins of dryland salinity, murray basin, victoria, australia. *Applied Geochemistry*, 19(8), 1233 – 1254.
- Castany, G. & Margat, J. (1977). *Dictionnaire français d'hydrogéologie*. BRGM Service géologique national, Orléans, 249 pages.
- Celle, H., Daniel, M., Mudry, J., & Blavoux, B. (2000). Signal pluie et traçage par les isotopes stables en méditerranée occidentale. exemple de la région avignonnaise (sud-est de la france). *Earth and Planetary Sciences*, 331, 647–650.
- Cerepi, A. & Loisy, C. (2008). *Modèle géologique du dôme du site de Valduc (Carbonates Bajocien - Bathonien de Bourgogne)*. Rapport d'étude.
- Cerepi, A. & Loisy, C. (2009). *Modèle géologique du dôme du site de Valduc (Carbonates Bajocien - Bathonien de Bourgogne)*. Rapport d'étude.
- Clark, I. & Fritz, P. (1997). *Environmental Isotopes in Hydrogeology*. CRC Press Lewis Publishers, 328 pages.
- Clarke, W. B., Jenkins, W. J., & Top, Z. (1976). Determination of tritium by mass spectrometric measurement of  $^3\text{H}^3\text{He}$ . *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 27(9), 515–522.
- Cook, P. & Herczeg, A. (1999). *Environmental Tracers in Subsurface Hydrology*. Kluwer Academic Publishers, 544 pages.
- Cook, P. G. & Solomon, D. K. (1997). Recent advances in dating young groundwater : chlorofluorocarbons,  $^3\text{H}^3\text{He}$  and  $^{85}\text{Kr}$ . *Journal of hydrology*, 191(1–4), 245–265.
- Copin-Montegut, G. (1997). *Chimie de l'eau de mer* . Editions Institut Océanographique, Collection Synthèse.
- Cras, A., Marc, V., & Travi, Y. (2007). Hydrological behaviour of sub-mediterranean alpine headwater streams in a badlands environment. *Journal of Hydrology*, 339(3–4), 130 – 144.
- Csolennvironnement (2008). *Réalisation de la carte pédologique sur le site CEA/DAM de Valduc*. Rapport d'étude.

- Davis, S., Whittemore, D., & Fabryka-Martin, J. (1998). Uses of Chloride/Bromide Ratios in Studies of Potable Water. *Ground Water*, 36(2), 338–350.
- Dewandel, B., Lachassagne, P., Bakalowicz, M., Weng, P., & Al-Malki, A. (2003). Evaluation of aquifer thickness by analysing recession hydrographs. Application to the Oman ophiolite hard-rock aquifer. *Journal of hydrology*, 274(1–4), 248–269.
- Diggle, P. (1990). *Times series : A biostatistical introduction*. Oxford Statistical Science Series. Oxford Science Publications, 5 edition.
- Doctor, D., Alexander, E. Calvin, J., Petrič, M., Kogovšek, J., Urbanc, J., Lojen, S., & S., W. (2006). Quantification of karst aquifer discharge components during storm events through end-member mixing analysis using natural chemistry and stable isotopes as tracers. *Hydrogeology Journal*, 14(7), 1171–1191.
- Dreybrodt, W. (1996). Principles of Early Development of Karst Conduits Under Natural and Man-Made Conditions Revealed by Mathematical Analysis of Numerical Models. *Water Resources Research*, 32(9), 2923–2935.
- Droque, C. (1969). *Contribution à l'étude quantitative des systèmes hydrologiques karstiques, d'après l'exemple de quelques karsts périméditerranéens*. PhD thesis, Université de Montpellier.
- Droque, C. (1974). Structure de certains aquifères karstiques d'après les résultats de travaux de forage. *CR Acad Sci Paris, série III*, 278, 2621–2624.
- Edmunds, W. (1996). Bromine geochemistry of British groundwaters. *Mineralogical Magazine*, 60(2), 275–284.
- Eisenlohr, L., Bouzelboudjen, M., Király, L., & Yvan, R. (1997). Numerical versus statistical modelling of natural response of a karst hydrogeological system. *Journal of hydrology*, 202(1–4), 244–262.
- Emblanch, C. (1997). *Les équilibres chimiques et isotopiques du carbone dans les aquifères karstiques : étude en région méditerranéenne de montagne*. PhD thesis, Thèse Université d'Avignon et des Pays de Vaucluse, 198 pages.
- Emblanch, C., Blavoux, B., Puig, J.-M., & Couren, M. (1998). Le marquage de la zone non saturée du karst à l'aide du carbone 13. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences - Series IIA - Earth and Planetary Science*, 326(5), 327–332.
- Emblanch, C., Zuppi, G. M., Mudry, J., Blavoux, B., & Batiot, C. (2003). Carbon 13 of TDIC to quantify the role of the unsaturated zone : the example of the Vaucluse karst systems (Southeastern France). *Journal of hydrology*, 279(1–4), 262–274.



- Etcheverry, D. (2002). *Valorisation des méthodes isotopiques pour les questions pratiques liées aux eaux souterraines : Isotopes de l'oxygène et de l'hydrogène*. Office fédéral des eaux et de la géologie, 72 pages.
- Fairchild, I., Borsato, A., Tooth, A., Frisia, S., Hawkesworth, C., Huang, Y., McDermott, F., & Spiro, B. (2000). Controls on trace element (Sr–Mg) compositions of carbonate cave waters : implications for speleothem climatic records. *Chemical Geology*, 166(3–4), 255–269.
- Fleury, P., Plagnes, V., & Bakalowicz, M. (2007). Modelling of the functioning of karst aquifers with a reservoir model : Application to Fontaine de Vaucluse (South of France). *Journal of hydrology*, 345(1–2), 38–49.
- Ford, D. & Williams, P. (1989). *Karst Geomorphology and Hydrology*. Unwin Hyman, London, 601 pages.
- Foucault, A. & Raoult, J. (2005). *Dictionnaire de Géologie*.
- Fournier, M. (2006). *Identification des modalités de transport et de la vulnérabilité du karst de la craie. Application de nouveaux outils statistiques d'analyse des données au système du Hannebot (Seine-Maritime, France)*. Thèse de doctorat, Université de Rouen, 233 pages.
- Geyer, T., Birk, S., Liedl, R., & Sauter, M. (2008). Quantification of temporal distribution of recharge in karst systems from spring hydrographs. *Journal of hydrology*, 348(3–4), 452–463.
- 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 <sup>14</sup>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 <sup>13</sup>C and <sup>14</sup>C variability in soil CO<sub>2</sub>. *Geoderma*, 189–190(0), 431–441.
- Goldscheider, N., Meiman, J., Pronk, M., & Smart, C. C. (2008). Tracer tests in karst hydrogeology and speleology. *International Journal of Speleology*, 37, 27–40.
- Goody, D. C., Darling, W. G., Abesser, C., & Lapworth, D. J. (2006). Using chlorofluorocarbons (CFCs) and sulphur hexafluoride (SF<sub>6</sub>) to characterise groundwater movement and residence time in a lowland Chalk catchment. *Journal of hydrology*, 330(1–2), 44–52.
- Grasso, D. A. & Jeannin, P.-Y. (1994). Etude critique des méthodes d'analyse de la réponse globale des systèmes karstiques. Application au site de Bure (JU, Suisse). *Bulletin d'Hydrogéologie de l'Université de Neuchâtel*, 13, 87–113.

- Hanin, G. (2010). *Contrôles structural et hydrogéologique sur la dynamique d'un champ captant en contexte crayeux karstique et sa sensibilité aux variations du signal climatique : Implications en matière de vulnérabilité de la ressource*. Thèse de doctorat, Université de Rouen, 306 pages.
- Happell, J., Opsahl, S., Top, Z., & Chanton, J. (2006). Apparent CFC and  $^3\text{H}$  age differences in water from Floridan Aquifer springs. *Journal of hydrology*, 319(1–4), 410–426.
- Holland, G., Lollar, B. S., Li, L., Lacrampe-Couloume, G., Slater, G. F., & Ballentine, C. J. (2013). Deep fracture fluids isolated in the crust since the Precambrian era. *Nature*, 497, 357–360.
- Hut, G., Ostlund, H., & Van DERBORG, K. (1986). Fast and complete  $\text{CO}_2$ -to-graphite conversion for  $^{14}\text{C}$  accelerator mass spectrometry. *Radiocarbon*, 28, n°2A, 186–190.
- IAEA (2006). Use of chlorofluorocarbons in hydrology : A guidebook. *IAEA Vienna, STI/PUB 1238*, (pp. 277).
- IGN (2003). Carte topographique scannée SCAN 25 78038, 78039, 79038, 79039. IGN.
- Jacob, T., Bayer, R., Chery, J., Jourde, H., Moigne, N., Boy, J.-P., Hinderer, J., Luck, B., & Brunet, P. (2008). Absolute gravity monitoring of water storage variation in a karst aquifer on the larzac plateau (Southern France). *Journal of hydrology*, 359(1–2), 105–117.
- Jacob, T., Chery, J., Bayer, R., Le Moigne, N., Boy, J.-P., Vernant, P., & Boudin, F. (2009). Time-lapse surface to depth gravity measurements on a karst system reveal the dominant role of the epikarst as a water storage entity. *Geophysical Journal International*, 177(2), 347–360.
- Jahne, B., Heinz, G., & Dietrich, W. (1987). Measurement of the diffusion coefficients of sparingly soluble gases in water. *Journal of Geophysical Research : Oceans*, 92(C10), 10767–10776.
- Jeannin, P.-Y. (1996). *Structure et comportement hydraulique des aquifères karstiques*. Thèse, Université de Neuchâtel, Suisse.
- Jeannin, P.-Y. & Grasso, D. A. (1995). Recharge respective des volumes de roche peu perméable et des conduits karstiques rôle de l'épikarst. *Bulletin d'Hydrogéologie de l'Université de Neuchâtel*, 14, 95–111.
- Jemcov, I. & Petric, M. (2009). Measured precipitation vs. effective infiltration and their influence on the assessment of karst systems based on results of the time series analysis. *Journal of hydrology*, 379(3–4), 304–314.
- Jenkins, G. & Watts, D. (1968). *Spectral Analysis and its Applications*. Holden Day, San Francisco, CA, 525 pages.

- Jukić, D. & Denić-Jukić, V. (2004). A frequency domain approach to groundwater recharge estimation in karst. *Journal of hydrology*, 289(1–4), 95–110.
- Jukić, D. & Denić-Jukić, V. (2009). Groundwater balance estimation in karst by using a conceptual rainfall–runoff model. *Journal of hydrology*, 373(3–4), 302–315.
- Jukić, D. & Denić-Jukić, V. (2011). Partial spectral analysis of hydrological time series. *Journal of hydrology*, 400(1–2), 223–233.
- 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 Techniques and Methods Report*, 4-F3, 60p.
- Katz, B., Böhlke, J., & Hornsby, H. (2001). Timescales for nitrate contamination of spring waters, northern Florida, USA. *Chemical Geology*, 179(1–4), 167–186.
- King, D. & Saltzman, E. (1995). Measurement of the diffusion coefficient of sulfur hexafluoride in water. *J Geophys Res*, 100((C4)), 7083–8.
- Kiraly, L. (1975). Rapport sur l'état actuel des connaissances dans le domaine des caractères physiques des roches karstiques. *International Union Geological Sciences, Hydrogeology of karstic terrains*, 3, 53–67.
- Kiraly, L. (1998). Modelling karst aquifers by the combined discrete channel and continuum approach. *Bulletin d'Hydrogéologie de l'Université de Neuchâtel*, 16, 77–98.
- Klimchouk, A. (2004). Towards defining, delimiting and classifying epikarst : Its origin, processes and variants of geomorphic evolution. *Speleogenesis and Evolution of Karst Aquifers*, 2(1).
- Kloppmann, W., Négrel, P., Casanova, J., Klinge, H., Schelkes, K., & Guerrot, C. (2001). Halite dissolution derived brines in the vicinity of a Permian salt dome (N German Basin). Evidence from boron, strontium, oxygen, and hydrogen isotopes. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 65(22), 4087–4101.
- Kogovsek, J. & Petric, M. (2003). Tracing test as a tool for the estimation of possible impacts of human activities on karst water-examples from Slovenia. *Materials and Geoenvironment*, 50(1), 161–164.
- Kovács, A. & Perrochet, P. (2008). A quantitative approach to spring hydrograph decomposition. *Journal of hydrology*, 352(1–2), 16–29.
- Käss, W. (1998). *Tracing Technique in Geohydrology*. Balkema, Rotterdam, 600 pages.

- Labat, D., Ababou, R., & Mangin, A. (2000). Rainfall–runoff relations for karstic springs. Part II : continuous wavelet and discrete orthogonal multiresolution analyses. *Journal of hydrology*, 238(3–4), 149–178.
- Ladouche, B., Probst, A., Viville, D., Idir, S., Baqué, D., Loubet, M., Probst, J. L., & Barriac, T. (2001). Hydrograph separation using isotopic, chemical and hydrological approaches (Strengbach catchment, France). *Journal of hydrology*, 242(3–4), 255–274.
- Laignel, B. (1997). *Les altérites à silex de l'Ouest du Bassin de Paris : caractérisation lithologique, genèse et utilisation potentielle comme granulats*. Thèse de doctorat, Université de Rouen.
- Langmuir, D. (1997). *Aqueous environmental geochemistry*. Prentice-Hall Inc., 602 pages.
- Larocque, M. (1997). *Intégration d'approches quantitatives de caractérisation et de simulation des aquifères calcaires fissurés - application à l'aquifère karstique de la Rochefoucauld (Charentes, France)*. Thèse de doctorat, Université de Poitiers.
- Larocque, M., Banton, O., & Razack, M. (2000). Transient-state history matching of a karst aquifer ground water flow model. *Groundwater*, 38(6), 939–946.
- Larocque, M., Mangin, A., Razack, M., & Banton, O. (1998). Contribution of correlation and spectral analyses to the regional study of a large karst aquifer (Charente, France). *Journal of Hydrology*, 205, 217–231.
- Lassus, M. & Loisy, C. (2006). *Géométrie et genèse du réseau karstique et de fracture dans les carbonates bajocien-bathonien de Bourgogne. Percolation d'une solution acide dans un calcaire : modélisation analogique et lois de comportement*. Rapport d'étude.
- Lee, E. & Krothe, N. (2001). A four-component mixing model for water in a karst terrain in south-central Indiana, USA. Using solute concentration and stable isotopes as tracers. *Chemical Geology*, 179(1–4), 129–143.
- Lee, L. J. E., Lawrence, D. S. L., & Price, M. (2006). Analysis of water-level response to rainfall and implications for recharge pathways in the Chalk aquifer, SE England. *Journal of hydrology*, 330(3–4), 604–620.
- Long, A. & Putnam, L. (2004). Linear model describing three components of flow in karst aquifers using  $^{18}\text{O}$  data. *Journal of hydrology*, 296(1–4), 254–270.
- Long, A. & Putnam, L. (2006). Translating CFC-based piston ages into probability density functions of ground-water age in karst. *Journal of hydrology*, 330(3–4), 735–747.
- Loosli, H. H. (1983). A dating method with  $^{39}\text{Ar}$ . *Earth and Planetary Science Letters*, 63, 51–62.

- Maillet, E. (1905). *Essai d'hydraulique souterraine et fluviale*.
- Maiss, M. & Brenninkmeijer, C. (1998). Atmospheric sf6 trends, sources, and prospects. *Environmental Science Technology*, 32(20), 3077–3086.
- Mangin, A. (1970). Contribution à l'étude des aquifères karstiques à partir de l'analyse des courbes de décrue et tarissement. *Ann. de Spéléo*, 25, 581–610.
- Mangin, A. (1975). *Contribution à l'étude hydrodynamique des aquifères karstiques*. Thèse de doctorat d'état, université de dijon.
- Mangin, A. (1984). Pour une meilleure connaissance des systèmes hydrologiques à partir des analyses corrélatoire et spectrale. *Journal of hydrology*, 67(1–4), 25–43.
- Mangin, A. (1994). *Karst hydrogeology*. Stanford J, Gibert J, Danielopol D (eds) Academic Press In : Groundwater ecology.
- Marlin, C., Dever, L., Vachier, P., & Courty, M.-A. (1993). Variations chimiques et isotopiques de l'eau du sol lors de la reprise en gel d'une couche active sur pergélisol continu (Presqu'île de Brogger, Svalbard). *Can. J. Earth Sci.*, 30, 806–813.
- Marsaud, B. (1996). *Structure et fonctionnement de la zone noyée des karsts à partir des résultats expérimentaux*. Thèse, Université de Paris XI, 303 pages.
- Massei, N., Dupont, J. P., Mahler, B. J., Laignel, B., Fournier, M., Valdes, D., & Ogier, S. (2006). Investigating transport properties and turbidity dynamics of a karst aquifer using correlation, spectral, and wavelet analyses. *Journal of hydrology*, 329(1–2), 244–257.
- Massei, N., Mahler, B., Bakalowicz, M., Fournier, M., & Dupont, J. (2007). Quantitative interpretation of specific conductance frequency distributions in karst. *Ground Water*, 45(3), 288–293.
- Mathevet, T., Lepiller, M., & Mangin, A. (2004). Application of time-series analyses to the hydrological functioning of an Alpine karstic system : the case of Bange-L'Eau-Morte. *Hydrology and Earth System Sciences*, 8(6), 1051–1064.
- McConnell, C. (1993). Double porosity well testing in the fractured carbonate rocks of the Ozarks. *Groundwater*, 31 (1), 75–83.
- Milanovic, P. (1981). Karst Hydrogeology. *Water Resources Pubs, Colorado*, (pp. 434 pp).
- Molina, M. & Rowland, F. (1974). Stratospheric sink for chlorofluoromethanes : chlorine atom-catalysed destruction of ozone. *Nature*, 249, 810–812.

- Moral, F., Cruz-Sanjulián, J. J., & Olías, M. (2008). Geochemical evolution of groundwater in the carbonate aquifers of Sierra de Segura (Betic Cordillera, southern Spain). *Journal of hydrology*, 360(1–4), 281–296.
- Mudarra, M., Andreo, B., & Baker, A. (2011). Characterisation of dissolved organic matter in karst spring waters using intrinsic fluorescence : Relationship with infiltration processes. *Science of the Total Environment*, 409(18), 3448–3462.
- Mudry, J. (1990). Les courbes flux chimique-debit et le fonctionnement des aquiferes karstiques. *Journal of hydrology*, 120(1–4), 283–294.
- Padilla, A. & Pulido-Bosh, A. (1995). Study of hydrographs of karstic aquifers by means of correlation and cross-spectral analysis. *Journal of Hydrology*, 168, 73–89.
- Panagopoulos, G. & Lambrakis, N. (2006). The contribution of time series analysis to the study of the hydrodynamic characteristics of the karst systems : Application on two typical karst aquifers of Greece (Trifilia, Almyros Crete). *Journal of Hydrology*, 329, 368–376.
- Perrin, J., Jeannin, P.-Y., & Zwahlen, F. (2003). Epikarst storage in a karst aquifer : a conceptual model based on isotopic data, Milandre test site, Switzerland. *Journal of hydrology*, 279(1–4), 106–124.
- Philip, J. (1957). The theorie of infiltration : E. sorptivity and algebraic infiltration equations. *Soil Sci. Soc.*, (119), 466–467.
- Plagnes, V. (1997). *Structure et fonctionnement des aquifères karstiques*. PhD thesis, Université de Montpellier II.
- Plagnes, V. & Bakalowicz, M. (2002). The protection of a karst water resource from the example of the Larzac karst plateau (south of France) : a matter of regulations or a matter of process knowledge? *Engineering Geology*, 65(2–3), 107–116.
- Plummer, L., Busenberg, E., Böhlke, J., Nelms, D., Michel, R., & Schlosser, P. (2001). Groundwater residence times in shenandoah national park, blue ridge mountains, virginia, usa : a multi-tracer approach. *Chemical Geology*, 179(1–4), 93 – 111.
- Pradel, J. & Billard, F. (1958). Le thoron et les risques associés dans la manipulation des composés du thorium. *Health Phys.*, 1(*Progress in Nuclear Energy Ser. XIII*), (pp. 239–261).
- Puech, V. & Jeannin, P.-Y. (1997). Contribution à la compréhension du fonctionnement hydraulique de l'épikarst ; expériences d'arrosage sur le site de Bure (Jura, Suisse). *Proceedings of the 12th International Congress of Speleology*, 1.

- Pulido-Bosch, A., Padilla, A., Dimitrov, D., & Machkova, M. (1995). The discharge variability of some karst springs in Bulgaria studied by time series analysis. *Hydrological Sciences Journal*, 40(4), 517–532.
- Rahnemaei, M., Zare, M., Nematollahi, A. R., & Sedghi, H. (2005). Application of spectral analysis of daily water level and spring discharge hydrographs data for comparing physical characteristics of karstic aquifers. *Journal of hydrology*, 311(1–4), 106–116.
- Rat, P. (2006). *Guide géologique Bourgogne Morvan*. Guide Géologique Régionaux, Dunod, 216 pages, 2nd edition.
- Reynolds, W., Elrick, D., & Young, E. (2002). Ring or cylinder infiltrometers (vadose zone). In *in Methods of Soil Analysis : Part 4. Physical Methods*, Soil, Sciences Society of America, Inc., Madison, W.I. (pp. 818–828).
- Richon, P. (2011). *Le radon-222 traceur de la dynamique des systèmes géologiques. Méthodologie et traitement du signal, interprétation du comportement du radon-222 en milieux géologiques actifs*. Thèse, IPGP.
- Roques, H. (1964). Contribution a l'étude statique et cinétique des systèmes gaz carbonique-eau-carbonate. *Ann. de Spéléo*, 19, 255–484.
- Roques, H. & Ek, C. (1973). Etude expérimentale de la dissolution des calcaires par des eaux chargées de CO<sub>2</sub>. *Ann. de Spéléo*, 28, 549–573.
- Savoy, L., Surbeck, H., & Hunkeler, D. (2011). Radon and CO<sub>2</sub> as natural tracers to investigate the recharge dynamics of karst aquifers. *Journal of hydrology*, 406(3–4), 148–157.
- Scanlon, B., Mace, R., Barrett, M., & Smith, B. (2003). Can we simulate regional groundwater flow in a karst system using equivalent porous media models? Case study, Barton Springs Edwards aquifer, USA. *Journal of hydrology*, 276(1–4), 137–158.
- Schoeller, H. (1965). Hydrodynamique dans le karst (Ecoulement et emmagasinement). *Colloque sur l'hydrologie des roches fissurées*.
- Shevenell, L. (1996). Analysis of well hydrographs in a karst aquifer : estimates of specific yields and continuum transmissivities. *Journal of hydrology*, 174(3–4), 331–355.
- Smart, C. C. (1988). Artificial Tracer Techniques for the Determination of the Structure of Conduit Aquifers. *Ground Water*, 26(4), 445–453.
- Sow, S. (2009). Caractérisation hydrodynamique des sols de Valduc à partir des mesures de rétention en eau et de la conductivité électrique in situ et application d'un modèle hydrodynamique.

- Spizzico, M. (2005). Radium and radon content in the carbonate-rock aquifer of the southern Italian region of Apulia. *Hydrogeology Journal*, 13(3), 493–505.
- Stumm, W. & Morgan, J. (1996). *Aquatic Chemistry, Chemical Equilibria and Rates in Natural Waters*,. John Wiley & Sons, Inc., New York.
- Sultenfub, J., Purtschert, R., & Fuhrboter, J. (2010). Age structure and recharge conditions of a coastal aquifer (northern Germany) investigated with  $^{39}\text{Ar}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^3\text{H}$ , He isotopes and Ne. *Hydrogeology Journal*, 32(12), 1485 – 1497.
- Thraillkill, J. (1988). Drawdown interval analysis : A method of determining the parameters of shallow conduit flow carbonate aquifers from pumping tests. *Water Resources Research*, 24(8), 1423–1428.
- Trček, B. (2007). How can the epikarst zone influence the karst aquifer hydraulic behaviour ? *Environmental Geology*, 51(5), 761–765.
- Tritz, S., Guinot, V., & Jourde, H. (2011). Modelling the behaviour of a karst system catchment using non-linear hysteretic conceptual model. *Journal of hydrology*, 397(3–4), 250–262.
- Valdes, D. (2005). *Variabilité spatiale du fonctionnement hydrologique de l'aquifère karstique de la craie (Département de l'Eure, France)*. PhD thesis, Université de Rouen, 287 pages.
- Valdes, D., Dupont, J.-P., Massei, N., Laignel, B., & Rodet, J. (2006). Investigation of karst hydrodynamics and organization using autocorrelations and T–C curves. *Journal of hydrology*, 329(3–4), 432–443.
- Vogel, J., Lerman, J., & Mook, W. (1975). Natural isotopes in surface and groundwater from Argentina. *Hydrol. Sciences Bull.*, XX (2), 203–221.
- Walliser, B. (1977). *Systèmes et modèles*. Seuil, Paris, France.
- Warner, M. & Weiss, R. (1985). Solubilities of chlorofluorocarbons 11 and 12 in water and seawater. *Deep Sea Research Part A. Oceanographic Research Papers*, 32(12), 1485 – 1497.
- Weiss, W., Sartorius, H., & Stockburger, H. (1989). Global distribution of atmospheric (super 85) Kr ; a database for the verification of transport and mixing models. *Isotopes of noble gases as tracers in environmental studies*, (pp. 29–92).
- White, W. (2002). Karst hydrology : recent developments and open questions. *Engineering Geology*, 65, 85–105.
- White, W. B. (1969). Conceptual Models for Carbonate Aquifers. *Ground Water*, 7(3), 15–21.



- Widory, D., Kloppmann, W., Chery, L., Bonnin, J., Rochdi, H., & Guinamant, J.-L. (2004). Nitrate in groundwater : an isotopic multi-tracer approach. *Journal of Contaminant Hydrology*, 72(1-4), 165-188.
- Williams, P. (2008). The role of the epikarst in karst and cave hydrogeology : a review. *International Journal of Speleology*, 37(1), 1-10.
- Winger, K., Feichter, J., Kalinowski, M. B., Sartorius, H., & Schlosser, C. (2005). A new compilation of the atmospheric <sup>85</sup>krypton inventories from 1945 to 2000 and its evaluation in a global transport model. *Journal of Environmental Radioactivity*, 80(2), 183-215.
- Winslow, S., Pepich, B., Bassett, M., Wendelken, S., Munch, D., & Sinclair, J. (2001). Microbial Inhibitors for U.S. EPA Drinking Water Methods for the Determination of Organic Compounds. *Environmental Science & Technology*, 35(20), 4103-4110.

# Annexes

## Annexe 1 : Méthodes de mesure des paramètres pétro-physiques des roches

### Perméabilité à l'air

#### *Perméabilité à l'air*

La méthode consiste à placer un échantillon dans une enceinte (figure 5.2). Seules les faces planes du cylindre sont en contact avec l'air. La structure de l'enceinte est faite de telle façon que seule la circulation d'air dans l'échantillon permet la chute du niveau de l'eau dans le dispositif exposé. La mesure consiste à chronométrer le temps nécessaire pour que le niveau de l'eau parcourt la distance entre deux niveaux repères ( $t_1$  et  $t_2$  sur la figure 5.2). Le fabricant fournit une loi basée sur la loi de Darcy, permettant de calculer la perméabilité intrinsèque. Il faut renseigner le volume de l'échantillon (cylindre de diamètre et longueur connue). Cette perméabilité est orientée dans un plan horizontal par rapport à l'axe des altitudes.

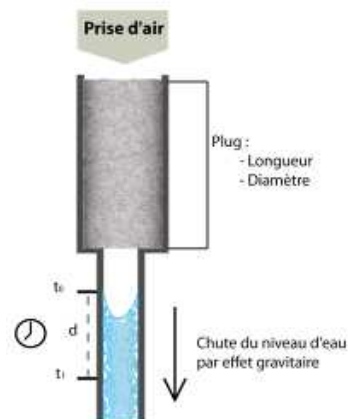


FIGURE 5.2: Schéma de fonctionnement des essais de perméabilité à l'air

#### *Porosimétrie mercure*

Le principe de cette méthode de mesure de la porosité consiste à introduire un fluide non mouillant, le mercure, par différence de pression dans un échantillon de roche. Le fluide non mouillant évite les interactions avec la roche, induisant un contrôle de la circulation de mercure par la pression appliquée à l'échantillon. La figure 5.3 est un exemple de résultat obtenu. La différence de pression est initiée par une mise sous vide de l'échantillon. L'intrusion de mercure se fait dans un premier temps à pression atmosphérique, les pores de plus grandes tailles se remplissent de mercure. Une fois la pression atmosphérique atteinte, le mercure est introduit par surpression, les pores de plus petite taille sont sollicités. Des mesures du volume de mercure introduit sont effectuées à différents paliers (croix rouge sur la courbe rouge, figure 5.3). Au retour à la pression atmosphérique, une certaine quantité de mercure est extrudée, elle correspond aux volumes des pores efficaces (courbe verte). Les résultats obtenus relatent le volume introduit à différents paliers de pression. Une relation existe entre la pression appliquée et la taille des pores.

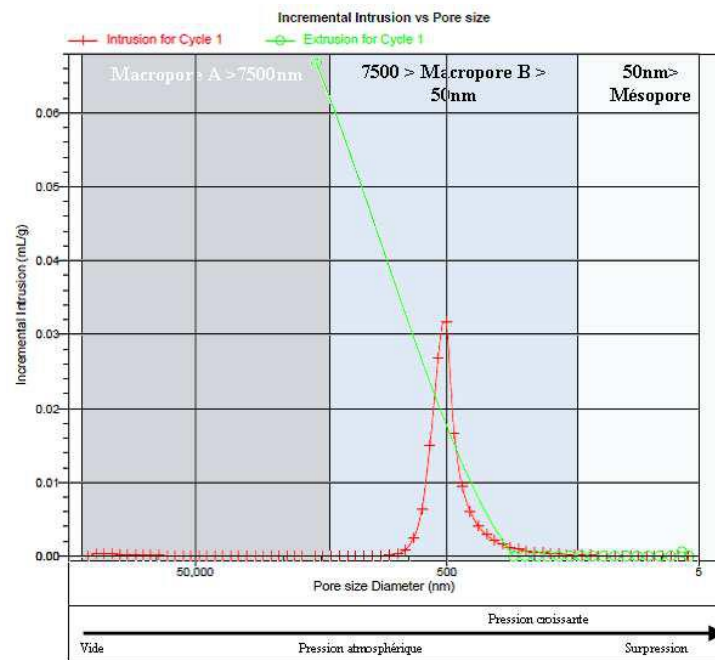


FIGURE 5.3: Analyses de porosimétrie mercure

Plusieurs paramètres sont mesurés grâce à cette relation :

- la porosité totale (%) : elle traduit une relation volumique entre le volume de mercure introduit et le volume total de l'échantillon
- la porosité efficace (%) : elle traduit la proportion de volume extrudé par l'abaissement de la pression par rapport au volume total de l'échantillon
- la surface spécifique ( $\text{m}^2/\text{g}$ ) : elle relate la surface mise en contact avec le fluide pour un gramme d'échantillon
- La densité ( $\text{g}/\text{ml}$ ) : elle s'apparente à la masse volumique
- La macroporosité A, B et méso-porosité : cette classification (figure 5.3) de la porosité permet d'établir des rapports de proportion entre la porosité au dessus de 7500nm (macro-pores A), entre 7500 et 50nm (macro-pores B) et inférieure à 50nm (méso-pores).

## Annexe 2 : Echantillonnage des forages peu productifs : résultats des tests préliminaires

Ces tests ont été effectués sur 4 forages de productivités différentes, B4, C2, B3, A4D avec des pompes à débit variable. Une pompe SQ2 à fort débit pour le forage très productif B4, deux pompes MP1 pour les forages B3 et A4D et une pompe hydrolift pour le forage C2. Ces deux derniers forages sont caractérisés par une très faible productivité. Pour chaque piézomètre, 3 échantillons d'eau ont été prélevés : le premier au début du pompage (après vidange du volume "mort" du tuyau), un second à la fin du pompage (quand les paramètres sont stabilisés pour B4, quand le forage est presque "vide" pour les forages C2, B3 et A4D et un dernier échantillon lorsque le niveau d'eau est remonté et permet un nouveau pompage. Pour chaque échantillon, des mesures de tritium, de majeurs et de radon ont été réalisées (tableau 5.1).

TABLEAU 5.1: Résultats des tests d'échantillonnage des forages peu productifs

Forage	Echantillonnage	Ca <sup>2+</sup> mmol/l	Mg <sup>2+</sup> mmol/l	Cl <sup>-</sup> mmol/l	Na <sup>+</sup> mmol/l	Radon Bq/l	Tritium UA
C2	1	2,02	0,10	0,31	0,30	1,01	0,11
	2	2,05	0,08	0,59	0,41	7,89	0,09
	3	2,04	0,16	0,74	0,48	6,75	0,09
B4	1	2,76	0,10	0,46	0,55	2,22	0,63
	2	2,68	0,06	0,48	0,55	2,86	0,62
	3	2,67	0,05	0,49	0,56	2,75	0,61
A4D	1	1,66	0,37	0,06	0,27	1,93	0,33
	2	2,04	0,14	0,06	0,23	6,96	1,02
	3	2,03	0,15	0,06	0,23	9,58	1,00
B3	1	2,55	0,42	0,14	0,32	2,57	0,10
	2	2,58	0,27	0,17	0,32	7,40	0,10
	3	2,62	0,19	0,21	0,32	7,78	0,10

Echantillonnage 1 : Au début du pompage après vidange du volume mort

Echantillonnage 2 : Forage B4, lorsque les paramètres physico-chimiques sont stabilisés. Forages C2, B3 et A4D lorsque la colonne d'eau du forage est entièrement rabattue

Echantillonnage 3 : Lorsque le niveau d'eau est suffisamment remonté pour permettre un échantillonnage.

### Annexe 3 : Caractéristiques des forages et sources étudiés

TABLEAU 5.2: Caractéristiques des forages de la nappe supérieure

Forage	Type d'environnement	Altitude (m NGF)	Epaisseur de la zone non saturée (m)	Epaisseur de la zone saturée (m)	Diamètre intérieur du tubage (mm)	Remontée de nappe (Réaction au pompage)
S3	Sur le centre	500,8	34	54	40	6 jours
B4	Forêt	459,6	70	15	104	
A1	Sur le centre	496,1	70	6	40	
B3*	Forêt	481,2	60	4	40 puis 140	Pas de rabattement
A3	Sur le centre/forêt	493,6	58		80	13h
C1	Plaine/proche route	497,2	52	6	40-32	4 jours
D13	Forêt/aval bassin	441,9	26	17	80	7 jours
D35	Forêt/aval bassin	428,9	31	8	80	18h
F7	Forêt/aval route	468,6	52		80	15h
D1	Forêt/aval bassin	366,9	5	2	40	Pas de rabattement
C2	Forêt/proche route	471,15	37	17	40	
C4	Anthropisé	464,70			52	
S5	Anthropisé	442,7	26	8	80	plusieurs mois
B5D	Forêt	407			64	
A4D	Forêt	432			64	,
B1	Forêt/aval route	466,4	50	6	40-32	2 jours
C3	Forêt	474,6	41	13	32	plusieurs mois
A2	Forêt	440,7	8		40	6 jours
B2	Anthropisé	487,3			40	plusieurs mois

\*Forage surforré en décembre 2011

TABLEAU 5.3: Caractéristiques des sources étudiées durant la thèse. Pour l'altitude, en italique, les mesures proviennent de l'IGN MNT, les autres données proviennent d'un nivellement au GPS différentiel.

Sources	Débit en avril 2005 (L.s <sup>-1</sup> ) *	Altitude (m NGF)
R06	2,440	404
R24	5,560	416
R08	1,000	388
R04	4,680	404
R14***	4,090	<i>374,8</i>
R15***	0,850	<i>367,6</i>
R13***	2,000	<i>373,9</i>
R03	0,330	<i>432,9</i>
R23	2,690	<i>418,8</i>
R25	3,220	<i>420,9</i>
R56a	4,400	<i>434,7</i>
R29	2,921	<i>351,2</i>
R30		<i>401,8</i>
R09	0,050	428
R05	0,310	402
R21		<i>413,0</i>
R20	0,060	409
R19		<i>416,5</i>
R17	0,018	<i>403,8</i>
R16	0,200	<i>412,6</i>
R02	0,160	429
R01	0,250	423
RI**	84,64	366
RIII**	135,90	341

\* le débit est mesuré en avril 2005. \*\*Source de la nappe inférieure. \*\*\*Source située en aval de la station d'épuration

## Annexe 4 : Composition géochimique des eaux souterraines au niveau des sources R04, R08 et R24

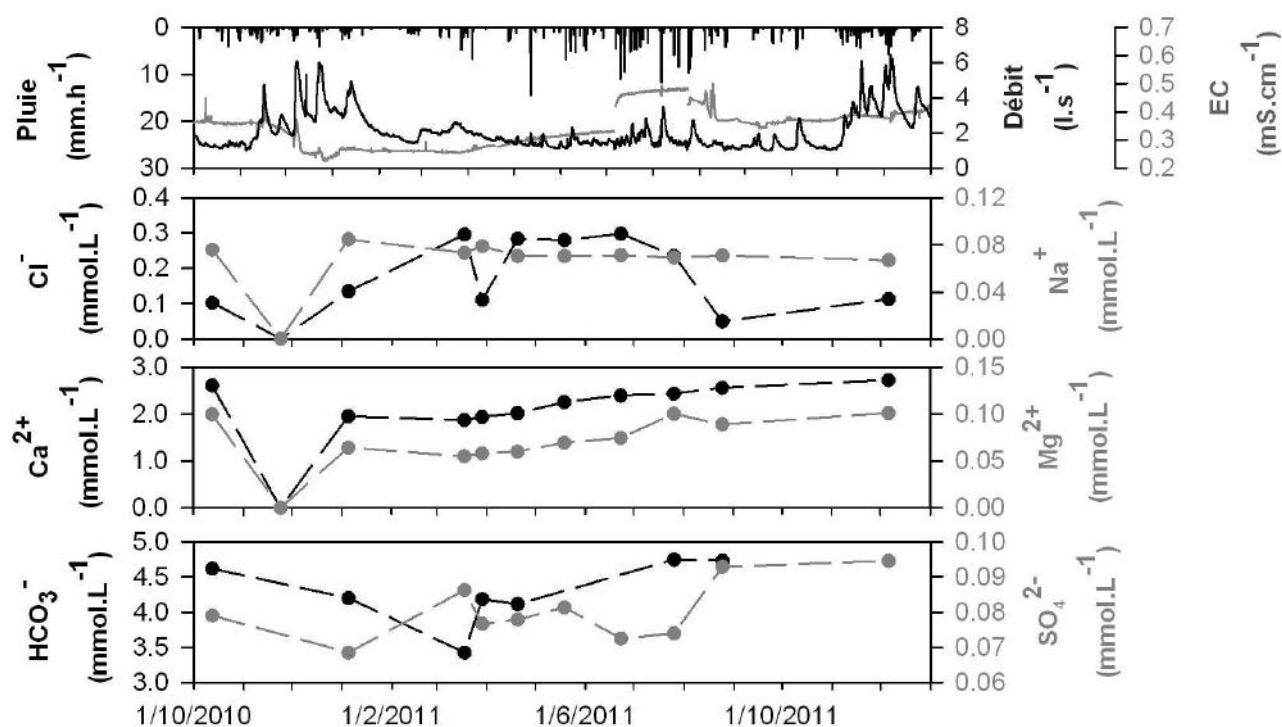


FIGURE 5.4: Précipitations, débits et composition géochimique des eaux souterraines au niveau de la source R08 (pas mensuel, octobre 2010-février 2012)



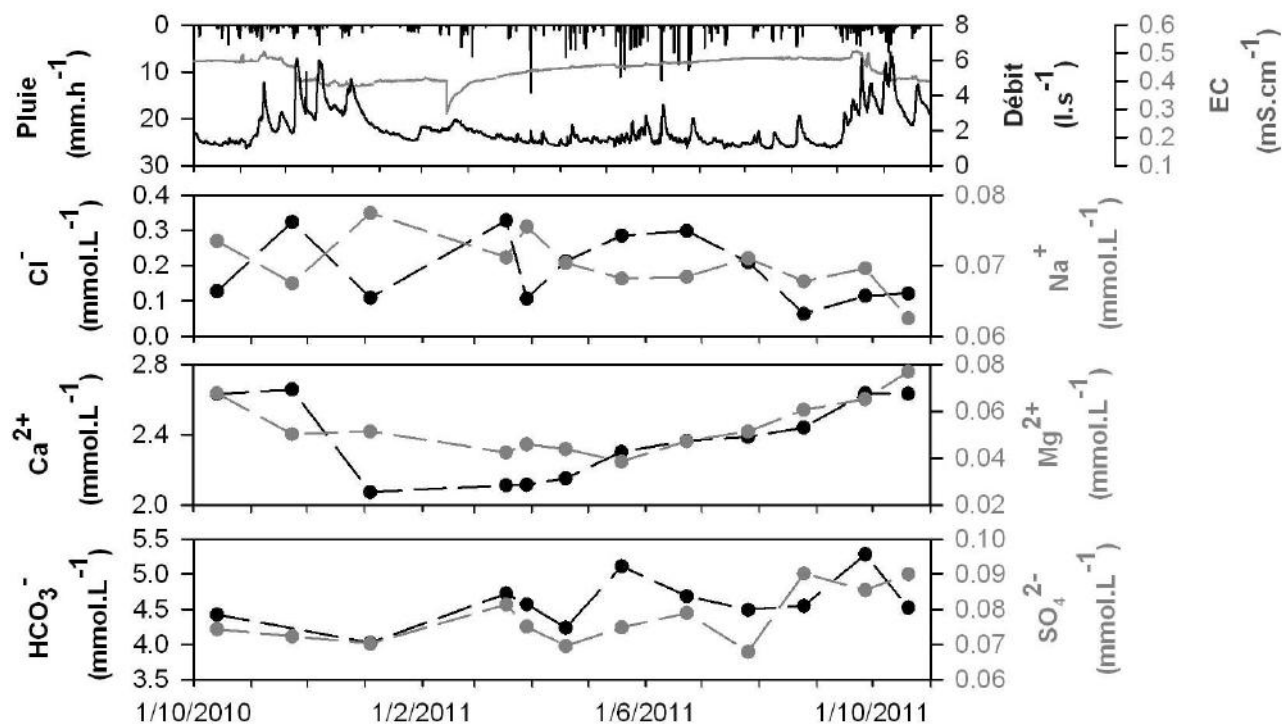


FIGURE 5.5: Précipitations, débits et composition géochimique des eaux souterraines au niveau de la source R04 (pas mensuel, octobre 2010-février 2012)

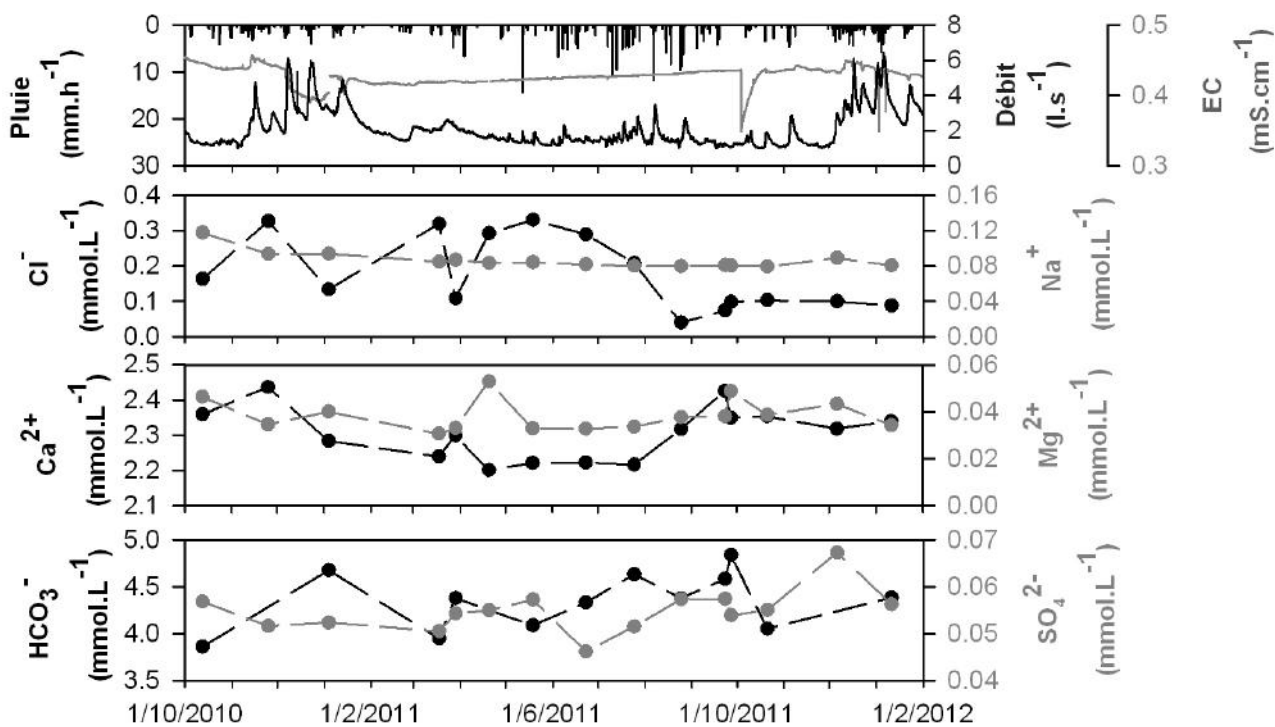


FIGURE 5.6: Précipitations, débits et composition des eaux souterraines au niveau de la source R24 (pas mensuel, octobre 2010-février 2012)