

THÈME 4 / TOPIC 4

Vulnérabilité et protection contre les pollutions
Vulnerability and protection against pollutions



SOMMAIRE

Vulnérabilité et protection contre les pollutions Vulnerability and protection against pollutions

References	Abstract	Authors	Organizations
ORAL COMMUNICATIONS			
DARCY-10	Fluid/mineral equilibrium calculations and chemical geothermometry of Monção thermal waters (NW-Portugal): a tool to estimate the deep thermal water composition	Carreira P.M., Marques J.M.; Carvalho M.R.; Monteiro Santos F. A.; Matias H.; Luzio R.; Nunes D.	Instituto Tecnológico e Nuclear, Sacavém, Portugal
DARCY-24	Aquifer protection: a combined study of microstructure and transport properties in clay-sand mixtures	Macini P., Mésini E. Viola R.	University of Bologna - Italy
DARCY-70	Variable Water Saturation Impact on Sorption/Desorption Characteristics of Multi-Species Heavy Metals from Gold Mining	Aksara P., Srileert C.	Department of Water Resources Engineering, Chulalongkorn University, Bangkok 10330, Thailand.
DARCY-97	Etude hydrogéologique de la partie ouest du Causse de Sauveterre (France)	Bernard Blavoux, Stéphane Brusset, Laurent Bruxelles, Laurent Danneville, Michel Lepiller, Alain Mangin, Pierre Marchet	Laboratoire d'hydrogéologie, Univ Avignon ; Parc National des Grands Causses, Millau ; Univ Orléans.
DARCY-112	Cartographie de la vulnérabilité simplifiée des eaux souterraines du Bassin Seine-Normandie. Application aux sites BASOL	Vincent Mardhel, Annabel Gravier, Jean Yorick Koch-Mathian	BRGM, Orléans
POSTERS			
DARCY-22	Urban hydrogeological mapping of the Porto urban area (NW Portugal): a geoenvironmental perspective	Afonso M.J., Marques J.M., Costa I., Seabra C., Guimarães L., Guilhermino L., Teixeira, J. & Chaminé H.I.	Dep. Engenharia Geotécnica, ISEP, Porto, Portugal. Centro de Minerais Industriais e Argilas, Univ. Aveiro, Portugal. Dep. Engenharia de Minas e Georrecursos, Lisboa, Portugal, CIIMAR - Centro Interdisciplinar de Investigação Marinha e Ambiental, Lab. Ecotoxicologia, Porto, Portugal. ICBAS, Dep. Estudos de Populações, Lab. Ecotoxicologia, Univ. Porto, Portugal.
DARCY-67	Study of the nitrate migration in the unsaturated-saturated soil zone: Impacts on the ground water quality.	Serhal H., Bastin-Lacherez S., Bernard D., El Khattabi J.	Polytech-Lille, UMR CNRS 8107 (LML), Université des Sciences et Technologie de Lille, Cité scientifique, Villeneuve d'Ascq cedex, France.
DARCY-80	Modelling of the aquifer salinity below and downstream the Potash Basin (Alsace)	Noyer M. L., Elsass P.	BRGM service EAU, ORLEANS, BRGM Alsace, France
DARCY-93	La préservation de la qualité des eaux souterraines comme enjeu central de la politique nationale en matière de sites et sols pollués	Joindot T., Gilbert D., Darmendrail D., Mossmann J.-R., Chartier R., D. Fauconnier	MEDD/SEI – DPPR/BPSPR, Paris, BRGM, Orléans, France
DARCY-94	Détermination des zones de vulnérabilité à la pollution par différentes méthodes: application à la nappe alluviale de Tébessa (Algérie).	L. Djabri, A.Hani, Ch.Lamouroux	11, Rue Asla Hocine, Annaba 23000, Algérie. Laboratoire des basins sédimentaires. Villeneuve d'ascq Lille, France
DARCY-95	A new susceptibility index to assess the aquifer vulnerability in regions with intensive and extensive agricultural activities	Ribeiro L.	CVRM – Instituto Superior Técnico Av. Rovisco Pais 1049-001 Lisbon, Portugal
DARCY-131	Vulnerability study of Union Brewery water body	Trcek B., Juren A	Geological Survey of Slovenia, Ljubljana, Slovenia ; Geosi d.o.o. Geological Institute, Ljubljana, Slovenia

Communications orales

Oral Communications

DARCY 10

Fluid/mineral equilibrium calculations and chemical geothermometry of Monção thermal waters (NW-Portugal): a tool to estimate the deep thermal water composition

CARREIRA Paula M.¹, MARQUES José M.², CARVALHO M. Rosário¹, MONTEIRO SANTOS Fernando A.³, MATIAS Hugo³, LUZIO Rafael³, NUNES Dina¹

¹ Instituto Tecnológico e Nuclear, Departamento de Química,
Estrada Nacional nº 10, 2686-953 Sacavém, Portugal.

² Instituto Superior Técnico, Centro de Petrologia e Geoquímica. Av. Rovisco Pais,
1049-001 Lisboa, Portugal.

³ Centro de Geofísica da Universidade de Lisboa, Campo Grande,
Edifício C, Piso 6, 1749-016 Lisboa, Portugal

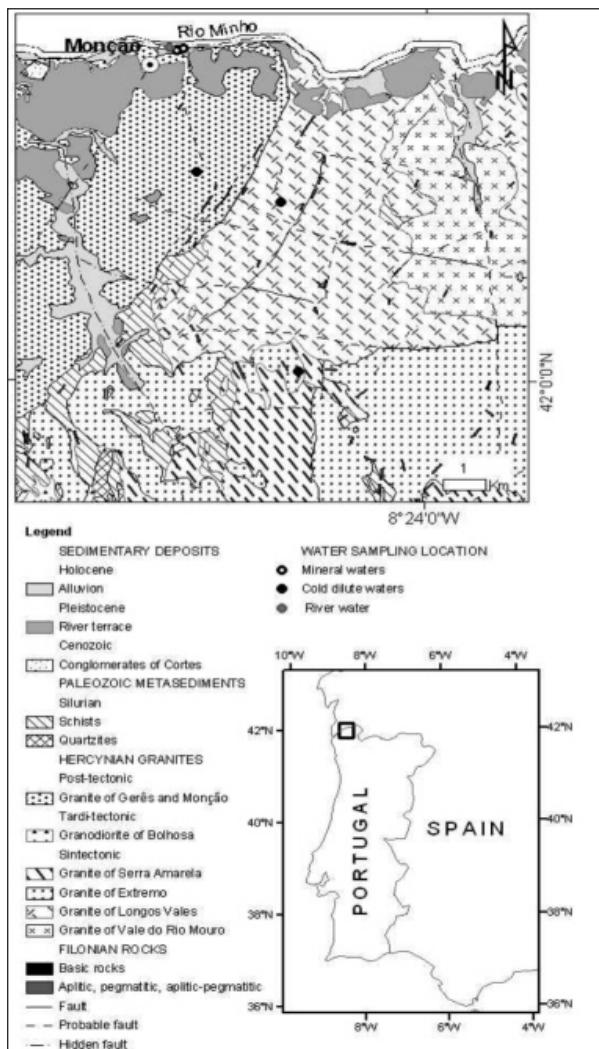
Abstract

Geophysical, geochemical and isotopic ($\delta^2\text{H}$, $\delta^{18}\text{O}$, $\delta^{13}\text{C}$, ${}^3\text{H}$, ${}^{14}\text{C}$) data from thermal and cold waters (boreholes and springs) demonstrate the role of combined hydrogeological tools to improve knowledge on conceptual circulation models of fractured-rock thermal aquifers. Geophysical studies have been performed near Caldas de Monção in order to detected low resistivity zones ascribed to the thermal waters circulation. Aquifer temperatures of Monção thermal waters have been estimated from the chemical composition of the discharge fluids, considering simultaneously temperature dependent equilibria between mineral phases and the solution. The results indicate that i) the aquifer temperatures range from 105 to 130° C and ii) they are non-equilibrated waters due to high concentration in total dissolved CO_2 (300 – 400 mg/L) or mixing with shallow waters. Considering a mean geothermal gradient of 30 °C/km at Monção region, we can estimate that the thermal aquifer is layering between 3.4 and 3.7 km at depth.

Introduction and Geological Setting

One of the main objectives of groundwater modeling is to determine the properly working models in order to adequately explain the hydrogeological observations. With this goal, some integrated studies (hydrogeochemical, isotopic and geophysical) were performed in Monção region, north of Portugal. The integrated interpretation of the results obtained was applied to update the knowledge on Caldas de Monção low-temperature geothermal system. Special emphasis was dedicated to the characterization of : i) aquifer temperatures of the Monção thermal waters from the chemical composition of the discharge fluids; ii) low resistivity zones to identify thermal waters flow paths; iii) mixing processes between shallow and deep ground-water systems and, iv) altitude of the recharge areas of the thermal waters.

In Figure 1 a schematic geological map of the studied region is presented. Three types of granitic rocks were identified based on their geometric relationships and internal deformations. According to Ribeiro and Moreira (1986) and Moreira and Simões (1988) this group of rocks can be divided into: i) sin-tectonic granites: with minute flakes of muscovite and biotite, presenting metamorphic minerals, and strongly correlated with migmatitic rocks; ii) tardi-tectonic granites (frequently associated with the granodiorites): with a large presence of biotite (mus-



covite is a secondary mineral). The degree of deformation observed points out to an origin associated with the last Hercynian deformation phase (F3); iii) post-tectonic granites: usually characterized by the presence of mega crystals of potassium feldspar and biotite. The lack of metamorphic minerals in these granites points to an age younger than the last Hercynian deformation phase. Fluvial deposits, sandstones and conglomerates of Quaternary age (sometimes with clay layers) constitute the most recent formations in the region, well displayed in the surroundings of Caldas de Monção spas and along the Minho River margins.

The main fracture systems in the region are represented by structural lineaments (strike-slip faults), with directions ENE-WSW, WNW-ESE, NNE-SSW and NNW-SSE, of late Hercynian age, and still active during the Meso-Cenozoic. The geological studies carried out in Monção region have pointed out to that the fracture system ENE-WSW (left strike-slip fault) is responsible for the morphology of the Minho River valley. The thermal borehole waters and springs are located along the ENE-WSW structures, indicating that ascending path is controlled by this fracture system, issuing these waters when found appropriated conditions.

2. Sampling and Methods

Two fieldwork campaigns were carried out in Monção region, the first during February 2002 and the second one on February 2003. Groundwater samples were collected from boreholes (thermal system) and springs (located at different altitude sites) representing the shallow cold dilute systems (local circulation). Isotopic determinations (d^2H , $d^{13}C$ - $d^{18}O$, 3H and ^{14}C) and chemical analysis (major and minor species) were performed in these groundwater samples. During these campaigns two water samples were collected from Minho River for isotopic and chemical analysis.

The environmental isotopes (2H , ^{13}C , ^{18}O , 3H and ^{14}C) were measured at Instituto Tecnológico e Nuclear (Portugal). The ^{18}O and 2H determinations were carried out using a mass spectrometer SIRA 10 VG-ISOGAS. Epstein and Mayeda (1953) and Friedman (1953) have described the analytical methods used in the determinations of oxygen-18 and deuterium respectively. The results are reported in d notation in ‰ reported to V-SMOW with the accuracy of the measurements are 1 ‰ for 2H and 0.1 ‰ for ^{18}O .

The 3H was carried out in all water samples using an electrolytic enrichment method and after measured by liquid scintillation counting method (PACKARD TRI-CARB 2000 CA/LL). The detection limit of this equipment is 0.5 TU. The associated error to the measurements varies with the tritium concentration in the samples, although usually is around 0.6 TU. The analytical method is describe in I.A.E.A. (1976).

The ¹⁴C measurements were carried out on the Total Dissolved Inorganic Carbon (TDIC) extracted in the field as BaCO₃ in a pH environment higher than 9.0 (I.A.E.A. 1981). The barium carbonate obtained in situ is, in laboratory, transformed into benzene and the counting rates of the ¹⁴C are obtained using a liquid scintillation counter (PACKARD TRI-CARB 4530). The errors associated to this method vary with the amount of carbon available in each sample, increasing with the lowest content in ¹⁴C. Environmental carbon-14 content in the sample and are expressed as a percentage of modern carbon (pmC).

During the benzene synthesis a CO₂ gas sample is collected for $\delta^{13}\text{C}$ determinations (by mass spectrometer). The isotopic composition is reported to V-PDB in ‰. The associated error to this measurement is 0.1 ‰.

Temperature, electrical conductivity and pH were measured in situ. The water samples collected for chemical analysis were stored in two polyethylene bottles (1 L), one acidified with HCl for analyses of the major cations (Ca, Mg, Na and K), and the other was reserved unacidified for the major anions determinations (Cl, SO₄, NO₃). The chemical parameters were determined at Laboratório de Mineralogia e Petrologia of Instituto Superior Técnico (Portugal), using the following methods: atomic absorption spectrometry for Ca and Mg; emission spectrometry for Na, K and Li; colorimetric methods for F and SiO₂; ion chromatography for SO₄, NO₃ and Cl; potentiometry for alkalinity, here referred to as HCO₃.

Geophysical studies have been performed near Caldas de Monção Spas. Resistivity surveys were carried out with the main goal to detect low resistivity zones that can be connected to the circulation of the thermal system. These investigations were developed by the Instituto de Ciências da Terra e do Espaço (Portugal).

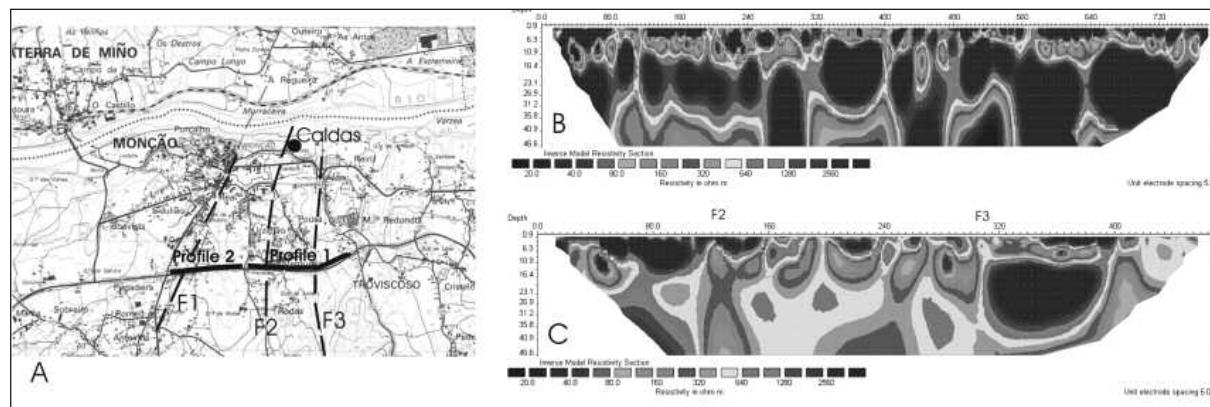
3. Geophysical Approach

Resistivity surveys have been performed near Caldas de Monção Spas with the main goal to detect low resistivity zones that are predictably connected to the thermal waters circulation. The survey comprised two dipole-dipole lines that have been designed to cross the main fault system, tentatively associated to the Monção hydrogeological system (Figure 2A). Figure 2B shows the field apparent resistivity pseudo-section corresponding to the dipole-dipole line #2, carried out southwards of Caldas de Monção (dipole length of 10 m). The total length of this profile is 480 m. The field data was inverted using the RES2DINV code (Loke and Barker, 1996). The obtained resistivity model is presented in Figure 2. The main characteristics of this model are i) an overburden with a thickness ranging from 6 to 20 m and resistivity ranging from 200 to 3000 ohm-m; ii) a more homogeneous resistivity distribution (600 ohm-m in average) at depths greater than 20 m; and iii) the presence of three relatively low-resistivity (100 to 300 ohm-m) anomalous zones crossing all the section at 100 m, 260-300 m and 400 m coordinates. Previous geological studies that have performed in the region call the attention to the importance of the strike slip regional faults NNE-SSW and NW-SE to E-W, which basically control all the important hydrogeological systems in Northern part of Portugal (Pedrosa 1999).

The high resistivity zones, in the overburden, are related to non-altered granite, which shows a few of fracture zones that appear as conductors on the profile. The low-resistivity zone in the western part of the profile (coordinate 100 m) is well correlated with a mapped fault (Figure 2A) that runs NNE-SSW in the Monção village direction. Taking into account the resistivity contrast (from 600 to 60-100 ohm-m) this fractured zone is filled with high conductivity material, probably clay and mineralized water. Therefore, the low-conductivity zones, at coordinates 260-300 m and 400 m, have been also interpreted as due to the presence of fracture zones filled with clay and mineralized water. The same criteria was applied to the resistivity model obtained from line #1, which reveals low resistivity zones well correlated with faults

marked F2 and F3 in (Figure 2A). These fault systems cross the area in direction of the Caldas de Monção Spas. The obtained models suggest that those fault systems should go deep into the granite massive as predicted by geological studies.

Figure 2 – (A) Location of the two dipole-dipole lines plotted on the topographic map of Caldas de Monção area (1:25000). (B) - Field apparent resistivity pseudo-section corresponding to the dipole-dipole line #2, carried out southwards of Caldas de Monção (dipole length of 10 m); (C) - Field apparent resistivity pseudo-section corresponding to the dipole-dipole line #1, carried out southwards of Caldas de Monção.



3. Isotopic Approach of Caldas de Monção Groundwater Systems

3.1. Stable isotopes features

In general the distribution of ($\delta^{18}\text{O}$ and $\delta^2\text{H}$) mimics the topography of the continents; mountains chains are marked by more negative values. This feature is called “altitude effect” (Dansgaard 1964; Rozanski et al., 1982; 1992; 1993). The lowering of temperature with increasing elevation in mountains regions usually leads to enhanced condensation and therefore to a progressive depletion in heavy isotopes of precipitation with altitude. This “altitude effect” has been used in numerous hydrological studies to identify the recharge areas and to investigate the origin and interconnection of water bodies. The vertical isotope gradient varies between -0.15 and -0.50 ‰ per 100 m⁻¹ for oxygen-18 and about -1 to -4 ‰ per 100 m⁻¹ for deuterium (Araguás-Araguás et al., 2000; Gonfiantini et al., 2001).

Using the isotopic composition of the shallow cold groundwater samples we have estimated the equation of the Local Meteoric Water line (Figure 3A): $\delta\text{D} = 10.17 \delta^{18}\text{O} + 20.19$. In the same diagram is also plotted the isotopic composition of Minho River and the Global Meteoric Water Line (GMWL). The isotopic gap found between the two river samples should be attributed to the different sampling period (end of summer season - October/99 and middle of wet season - February/03). At Caldas de Monção area the isotopic gradient obtained for $\delta^{18}\text{O}$ (“altitude effect”) was -0.18 ‰ per 100 m of altitude (Figure 3B). This isotopic gradient was estimated using the discharge altitude of the springs (cold dilute groundwater systems) and not the infiltration altitude, in view of the fact that these are local circulation systems, with small circulation paths.

Based on the isotopic gradient of the region and the isotopic signatures of the thermal waters samples, the recharge altitude of Caldas de Monção thermal system was estimated. The values obtained range between 300 m and 600 m with a mean altitude around 400 m a.s.l. (at the South of Caldas de Monção). The recharge altitude values obtained at Caldas de Monção low-temperature geothermal system are in agreement to those proposed by Lima (2001), on the basis of the precipitation record.

One of the main objectives of this study was the identification of possible mixture between Minho river waters with the thermal water system. The isotopic composition can be consid-

red as a fingerprint of each system, reflecting the characteristics of the regions. Minho river depleted isotopic composition indicates that most of the flow contributions proceed from high elevations. According to Loureiro and Machado (1986), the source of Minho river is located about 750 m a.s.l. on Meira mountain (NW-Spain) receiving an important recharge contribution of the Sil river also in NW Spain (Jistreda mountain - Cantábric Mountain Range) about 1500 m a.s.l.. The Minho River geographical and topographical features are well marked in the isotopic composition variation, a depletion of about 1.5 ‰ in oxygen-18. This isotopic finger print in Minho river waters allows us to consider that the contribution of this superficial water body to the Caldas de Monçao thermal system should be extremely small or even non-existent.

Figure 3 - (A) $\delta^2\text{H}$ vs $\delta^{18}\text{O}$ for groundwater samples from Caldas de Monçao area; (B) Relation of $\delta^{18}\text{O}$ values as a function of the altitude of sampling sites. The different symbols stand for: (d) thermal borehole waters; (o) shallow cold dilute waters; (d) Minho river waters.

3.2. Dating Caldas de Monçao Thermomineral Groundwater System

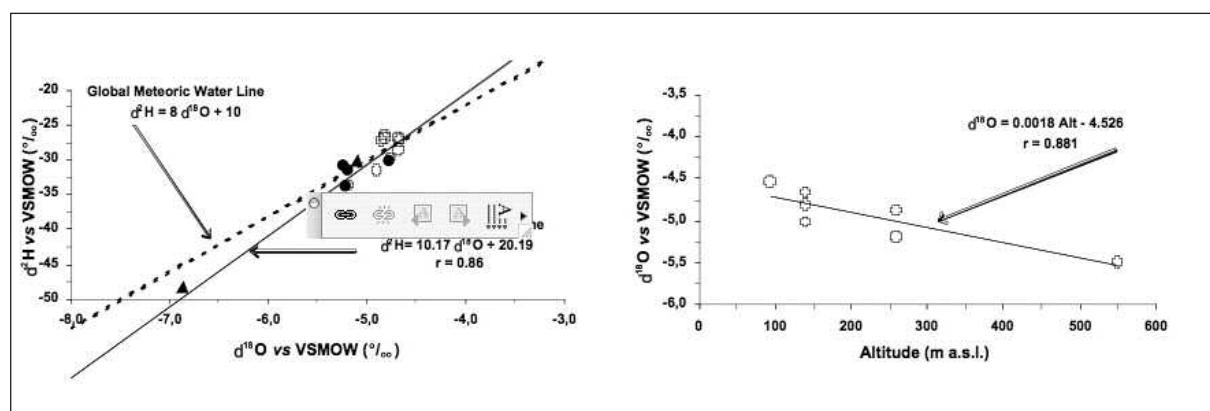


Figure 3 - (A) $\delta^2\text{H}$ vs $\delta^{18}\text{O}$ for groundwater samples from Caldas de Monçao area; (B) Relation of $\delta^{18}\text{O}$ values as a function of the altitude of sampling sites. The different symbols stand for: (—) thermal borehole waters; (o) shallow cold dilute waters; (d) Minho river waters.

Within the environmental radioisotopes, tritium cannot be detected in waters with more than approximately 50 - 60 years due to the short half-life (${}^3\text{H}$: $t = 12.32$ years: in Lucas and Unterwager, 2000). Among the radioactive isotopes with a half-life higher than 103 years, carbon-14 ($t = 5730$ years: in Mook, 2000) represents the most important tool in groundwater dating.

Tritium concentrations were measured in all water samples (Table 1 and Table 2), as a qualitative indicator of age since it is important to mention that the tritium being an environmental radioactive isotope originated in the high levels of atmosphere has also an anthropogenic origin associated to the release to the atmosphere during the test phase for hydrogen bombs. The very low natural levels were overwhelmed by the concentrations several orders of magnitude higher. Tritium in precipitation has been monitored by IAEA/WMO since the bomb tests in late 1952 (Gonfiantini et al. 1990; Rozanski et al. 1991), these data enable the establishment of timescales for transport of water through different compartments of the Hydrological Cycle. For example, groundwater, which does not contain tritium, must have infiltrated as rain before 1952, since the natural concentrations have already decayed below the detection limit.

Samples	Sampling date	Altitude (m)	Temp. (°C)	Elec. Cond. (mS/cm)	$\delta^{18}\text{O}$ (‰)	$\delta^2\text{H}$ (‰)	${}^3\text{H}$ (TU)
NS1	10/1999*	140	16.0	162	-5.01	-27.7	5.2 ± 1.0
	02/2002		14.4	114	-4.66	-27.3	3.2 ± 0.6
	02/2003		12.8	123	-4.81	-26.5	2.6 ± 0.6
NS2	10/1999*	260	13.3	62	-4.88	-31.5	4.8 ± 1.1
	02/2003		11.7	80	-5.19	-33.6	2.1 ± 0.6
NS3	02/2003	550	13.1	39	-5.50	-36.8	2.4 ± 0.5
River Minho	10/1999*		17.5	114	-5.10	-30.0	4.5 ± 0.9
	02/2003		10.4	112	-6.87	-48.2	2.3 ± 0.6

Note: * Data from Nascimento (2000).

Table 1 - Shallow cold dilute groundwater samples from Caldas de Monção area - isotopic composition, discharge altitude and issue temperature.

Considering the isotope precipitation record of the Portuguese Network Isotopes in Precipitation set up by Instituto Tecnológico e Nuclear (Portugal), we found tritium concentrations in precipitation over Portugal from 4.5 up to 5.3 TU respectively in coastal areas (Porto meteorological station) and in continental regions (Portalegre meteorological station). These values represent the mean arithmetic of the weighted means of tritium in modern precipitation from 1988-1997 (Carreira et al. 2003). These data enable the establishment of timescales: for example, groundwater which does not contain tritium must have been infiltrated as rain before 1960 because of the natural concentrations have already decayed below the detection limits. The tritium concentrations measured in Monção shallow cold dilute groundwaters systems indicate a local recharge and a rather short residence time (Table 1). When these groundwater content are compared with the precipitation tritium record measured at Porto meteorological station (Serra do Pilar, approximately 100km south from Caldas de Monção), similar values are observed. The precipitation data present a mean arithmetic value of 4.5 TU (monthly record from 1988 to 2000 (ITN data base in Carreira et al. 2003). Furthermore, it is important to notice, that the isotopic records of the Portuguese Network Isotopes in Precipitation reported (monthly arithmetic average of the weighted means of tritium in modern precipitation over Portugal from 1988-2000) have found tritium concentrations varying between 4.5 TU and 5.3 TU in coastal and in continental regions, respectively (Carreira et al., 2003).

The ${}^3\text{H}$ content found in the shallow cold dilute groundwater systems range between 2.1 TU and 5.2 TU, pointing out to a local recharge and a rather short residence time. On the other hand, the absence of ${}^3\text{H}$ in the thermal borehole waters indicates a relatively long residence time, at least higher than 40 years (Table 2), if one considers the tritium input to be in the same order of magnitude as found in Porto meteorological station (4.5 TU – mean arithmetic weight value).

Sample s	Samplin g date	Temp. (°C)	Elec. Cond. (mS/cm)	$\delta^{18}\text{O}$ (‰)	$\delta^2\text{H}$ (‰)	^3H (TU)	$\delta^{13}\text{C}$ (‰)	^{14}C (pmC)
AC1	10/1999*	48.1	633	-6.54	-45.2	4.1 ± 0.6		
	02/2002	52.0	670	-5.19	-31.6	0 ± 0.6		
	02/2003	47.8	619	-4.77	-33.9	0 ± 0.6	-7.06	7.43 ± 0.34
AC2	10/1999*	45.0	693	-5.20	-35.2	0 ± 1.0		
	02/2002	46.5	741	-5.25	-30.9	0 ± 0.6		
	02/2003	42.2	793	-5.22	-30.0	0 ± 0.6	-6.25	4.82 ± 1.00

Note: * Data from Nascimento (2000).

Table 2 - Caldas de Monção Spas – isotopic composition and issue temperature of thermal waters from boreholes AC1 and AC2.

In the appraisal of Figure 4 we can observe a rather similar isotopic composition ($\delta^{18}\text{O}$ and tritium) in the thermal waters collected from boreholes AC1 and AC2. In a first approach, the isotopic deviation in tritium content and depletion in oxygen-18 (AC1/ Oct. 99) could represent mixing with other water bodies (e.g. Minho River waters), more depleted and younger than the waters from the thermal system. However, this mixing hypothesis is not enhanced in the diagrams of Figure 4.

Carbon-14 determinations were carried out on the thermal waters from boreholes AC1 and AC2. It is important to mention that this radioisotope is present in the atmosphere, soil, aquifer matrix, etc. In fact, radiocarbon dating groundwater in the simplest form assumes that: the ^{14}C moves with the water molecules along the flow path with a hydraulic gradient and the only mechanism able to change the carbon-14 content within the groundwater systems is radioactive decay [A = $A_0 e^{-\lambda t}$; where A stands for the measured activity of ^{14}C in the sample; A_0 initial ^{14}C activity; λ the decay constant for ^{14}C and t stands for time]. The time can be rearranged to provide an estimation of the groundwater “age” [$t = -\lambda^{-1} \ln(A/A_0)$]. Following up these ideas, in order to apply the above equations, it is important to estimate the initial concentration of ^{14}C (A_0) at the time when the recharge occurs. In practice 100 % of modern carbon (pre-industrial content) is in now-a-days a high value considering the atmosphere dilution as consequence from the use of fossil fuel (industrial revolution). Usually the radiocarbon content in the atmosphere, is therefore, often thought to be smaller than 100 pmC. Problems can arise

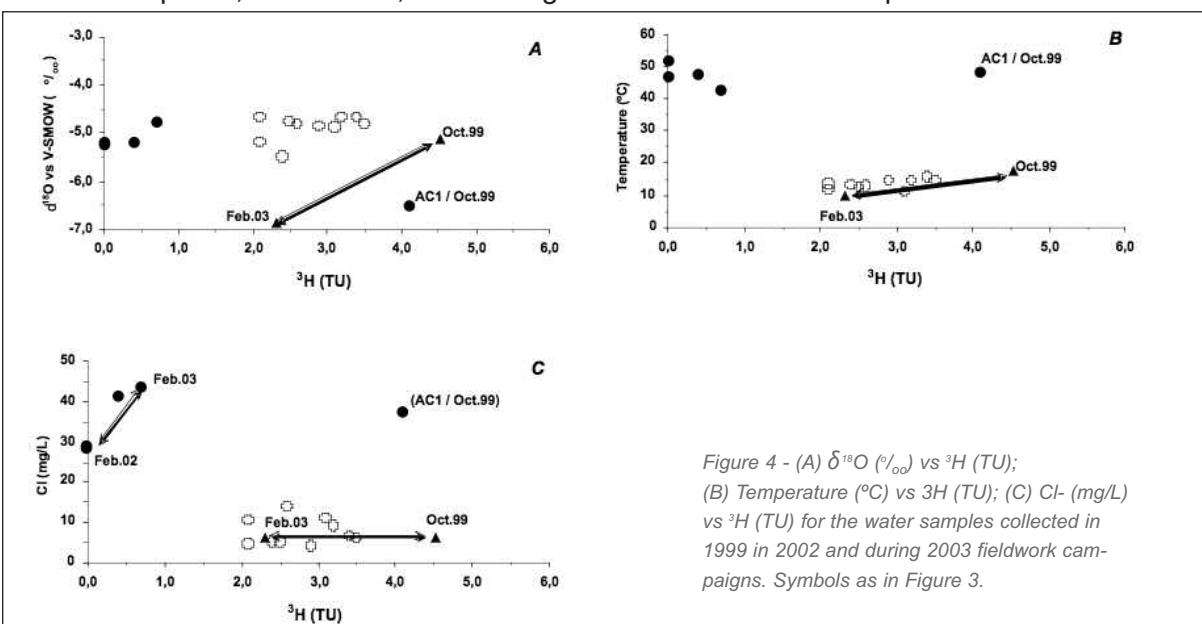


Figure 4 - (A) $\delta^{18}\text{O}$ (‰) vs ^3H (TU);
 (B) Temperature (°C) vs ^3H (TU); (C) Cl- (mg/L) vs ^3H (TU) for the water samples collected in 1999 in 2002 and during 2003 fieldwork campaigns. Symbols as in Figure 3.

when the measurements are performed in the Total Dissolved Inorganic Carbon (TDIC) as a

consequence of the different incomes of carbon to the water system since the dissolved inorganic carbon in the surface is not conservative and potentially interacts with soil and aquifer carbonate matrix and organic matter, leading to a dilution of the initial ^{14}C content, resulting in an overestimation of the groundwater age.

At Caldas de Monção Spas the low ^{14}C content, determined in the Total Dissolved Inorganic Carbon (TDIC) in AC1 ($4.82 \pm 1.00 \text{ pmC}$) and in AC2 ($7.43 \pm 0.34 \text{ pmC}$) borehole waters, together with the absence of tritium support the hypothesis of a long residence time for the thermal waters. A close system model was used (Salem et al., 1980) to calculate the apparent carbon-14 age of the thermal waters. The carbon-14 age calculations was based upon the assumption that the initial activity of the dating material is 100 % modern CO_2 activity (100 pmC); the $\delta^{13}\text{C}$ of the aquifer matrix is $1 \pm 1 \text{ ‰}$; the $\delta^{13}\text{C}$ for the CO_2 in the soil zone is $-25 \pm 2 \text{ ‰}$; the fractionation factor $\varepsilon_{\text{HCO}_3}$ is $8 \pm 0.5 \text{ ‰}$, and the error associated to the measurements of the TDIC is 0.5 o/oo. The mathematical model chosen includes therefore mixture of soil CO_2 and carbonates dissolution in the soil with isotopic differences. The apparent groundwater age obtained using this model is $14.11 \pm 1.69 \text{ ka BP}$ for AC2 and $18.56 \pm 2.32 \text{ ka BP}$ for AC1 borehole waters.

The radiometric age of the groundwater is that of the dissolved carbon, which may not be that of the water. Nevertheless, the origin of the carbon in the aqueous system has to be discussed and therefore focus our attention into the carbon-13 values. The $\delta^{13}\text{C}$ determinations at Caldas de Monção thermal water system, give values in the range of -7.06 o/oo in AC1 borehole waters and -6.25 o/oo in AC2 borehole waters, indicating an origin for the CO_2 in this waters that can be related with mixture between atmospheric CO_2 , decay of organic matter, dissolution of limestones, a deep-seated (upper mantle) CO_2 or metamorphism of carbonates producing CO_2 with slightly positive $\delta^{13}\text{C}$ values (Truesdell and Hulston 1980; Bergfeld et al. 2001).

4. Water Chemistry Approach

An important aspect in the low-temperature geothermal systems is the maintenance of the chemical quality of the water, for the reason that Spas are very much dependent on both constant temperature and water quality. Therefore the effects of mixing between the thermal water system and the shallow cold dilute waters (or even with Minho River waters) should to be investigated.

With this aim groundwater samples were collected from the two boreholes (AC1 and AC2) ascribed to the Caldas de Monção Spas, from the shallow cold dilute groundwater systems and from Minho River. The mean temperature of Caldas de Monção thermal waters (at the wellhead) is around 48°C , while the shallow cold dilute groundwater systems present issue temperatures around 14°C .

An enormous gap in the mineralization content is observed between these two water systems. The thermal waters are characterized by dry residuum between 420 to 470 mg/L, while the shallow cold groundwater systems present dry residuum values varying between 24 up to 120 mg/L. Both hydrogeological systems present the same $\text{HCO}_3\text{-Na}$ facies. The Human impact in the shallow cold groundwater systems is enhanced by the increase in NO_3^- , Cl^- and SO_4^{2-} concentrations. By contrary, the thermal water samples originate a define cluster of data points. Chloride is a conservative element often used to identify mixing processes in thermal fluids (Marini and Susangkyono, 1999; Marques et al., 2003). Therefore, geochemical data (sodium, calcium, potassium, nitrate and sulphate) were plotted against chloride content (Figure 5).

Two clusters of water samples can be observed, one representing the thermal waters and another representing the shallow cold dilute groundwaters and Minho River waters. In the dia-

gram SO_4^{2-} versus Cl^- the dispersion of the water samples from the shallow cold dilute system is well marked. The highest NO_3^{2-} and SO_4^{2-} concentrations should be associated to the

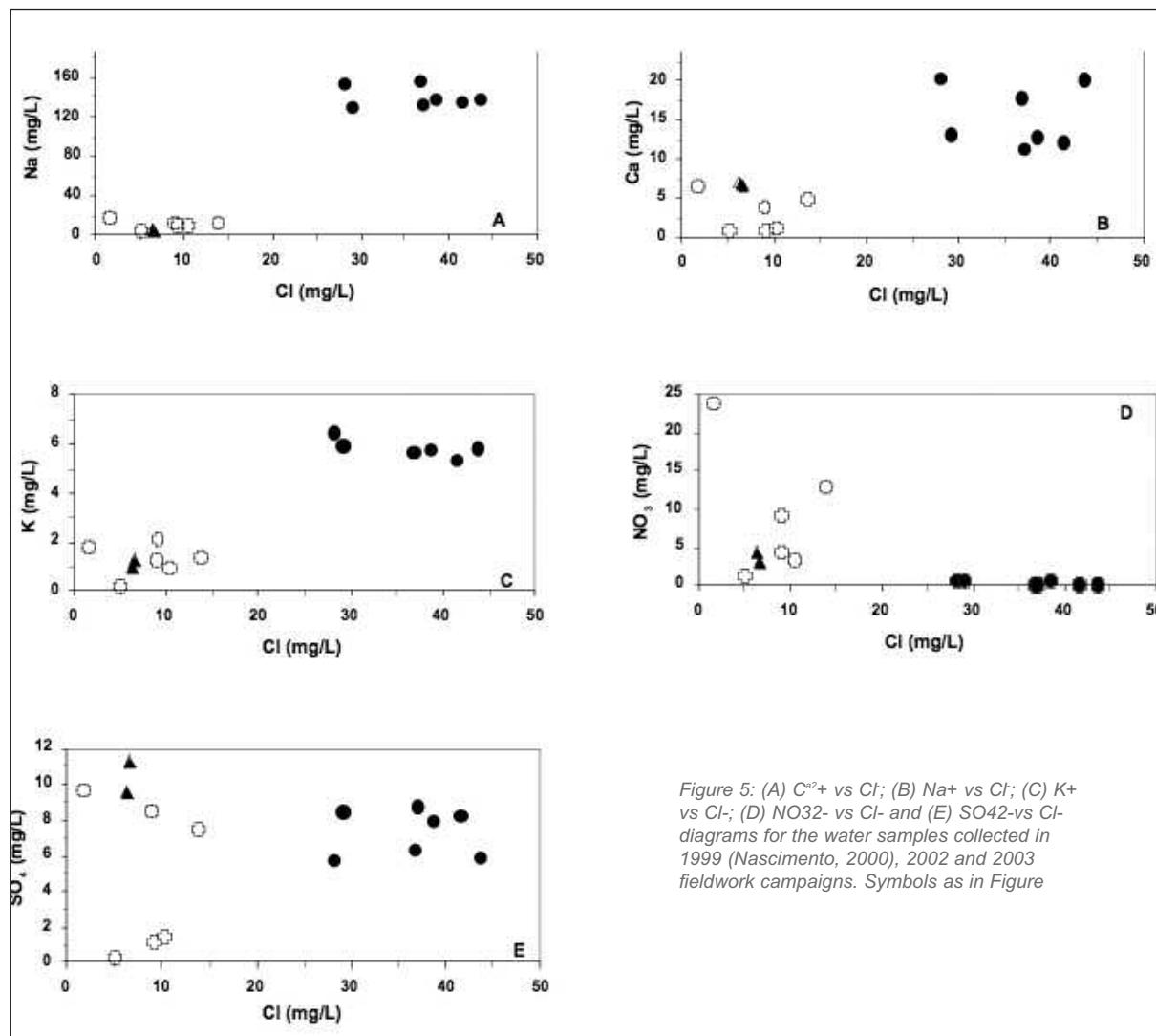


Figure 5: (A) Ca^{2+} vs Cl^- ; (B) Na^+ vs Cl^- ; (C) K^+ vs Cl^- ; (D) NO_3^- vs Cl^- and (E) SO_4^{2-} vs Cl^- -diagrams for the water samples collected in 1999 (Nascimento, 2000), 2002 and 2003 fieldwork campaigns. Symbols as in Figure

geographic location of "Bica dos Milagres" spring. This spring is located at low altitude down hill within an area of intensive land use for agriculture purposes; however it is important to emphasize that these two parameters (NO_3^{2-} and SO_4^{2-}) are below the recommended maximum values in drinking waters for Human use and no mixing process seems to occur between these two water groups.

4.1. Geothermometric Approach

The aquifer temperatures of Caldas de Monçao thermal waters have been estimated with the application of aqueous geothermometers (Table 3). These geothermometers are all based on the assumption that specific temperature dependent mineral/solute equilibrium is attained in the reservoir. The deep temperatures estimated range from a minimum of 76 °C (Na/Li geothermometer from Fouillac and Michard, 1981) to a maximum of 305 °C (Na/Li geothermometer from Kharaka and Mariner, 1989). The quartz geothermometers give values between 118 and 135 °C, while Na/K equilibria show temperatures on the range 90-126 °C. These different values may be due to lack of equilibration between the respective solutes and hydrother-

mal minerals as result of deep CO₂ gas input or mixing with cold water in the upflow zone.

Table 3 – Summary of results of aqueous geothermometry calculations. Geothermometers used are from: (1) Fournier (1977); (2) Fournier and Truesdell (1973); (3) Arnórsson et al.

Reed and Spycher (1984) have proposed that the best estimate of reservoir temperature can

Aqueous Geothermometers										
Well/Spring	Date	Calcedony	Calcedony	Quartz-H=0	Quartz-S=0	Na/K	Na/K	Mg/Li	Na/Li	Na/Li
		(1)	(1)	(1)	(1)	(2)	(3)	(4)	(4)	(5)
Monção-AC1	Oct-99	108	106	131	135	102	121	110	218	80
Monção-AC1	Fev/02	97	97	122	125	107	126	109	216	81
Monção-AC1	Fev/03	103	102	127	131	97	116	139	287	151
Monção-AC2	Oct-99	104	103	128	131	90	110	109	220	78
Monção-AC2	Fev/02	91	91	118	120	102	121	108	222	77
Monção-AC2	Fev/03	97	97	123	125	101	121	138	305	135
Sra ^a Saúde	Oct-99	107	106	130	134	100	120	109	215	76

be attained by considering simultaneously the state of equilibrium between specific water and many hydrothermal minerals as a function of temperature. Waters that are far from equilibrium with hydrothermal minerals will not show convergence of mineral equilibrium at any specific temperature. Reed and Spycher (1984) consider their procedure a valuable tool to distinguish between equilibrated geothermal waters and waters that have departed from equilibrium due to boiling or mixing with shallow colder waters.

The reservoir temperature was predicted on the basis of the simultaneously temperature dependent equilibrium between many mineral phases and the water. The WATCH program version 2.0 (Arnórsson and Bjarnason, 1994) was used to calculate the deep-water composition of Monção thermal aquifer and the state of equilibrium between the water and many minerals as a function of temperature (Figure 6). The range of possible intersection temperatures is enormous if all minerals for which thermodynamic data are available in the program are considered. Therefore, we only have considered probable minerals present in the aquifer. For the greatest number of minerals, the deep equilibrium temperatures range from 105 °C to 130 °C (Figure 6). Nevertheless, the estimated temperature for the deep water of the Sra^a Saúde thermal spring is lower (Figure 6(C)) because the lack of aqueous aluminium data and, probably, due to silica minerals reequilibration during upflow.

The mineral/solute equilibrium and the geothermometric results indicate that the Monção thermal waters are non-equilibrated waters due to the high value of dissolved CO₂ or mixing with cold waters. As the geothermometer temperatures based on the silica minerals equilibrium are strongly dependent on the fluid pH, the estimated deep temperatures from the application of the conventional Na-K geothermometers are more acceptable for these water types.

The deep water composition of the Monção thermal aquifer was calculated using the WATCH program and considering: i) 120 °C as deep temperature; ii) conductive cooling in the upflow; iii) that the total CO₂ analysed is already present in reservoir water (not updated during upflow). The Monção hydrothermal water supplying the AC1 and AC2 wells has pH around 6.70-6.85, with PCO₂ of 0.209-0.402 bar-abs and enthalpy close to 500 kJ/kg. The deep pH obtained for the spring water is higher (pH of 7.63) because seems it has lost CO₂(g) during upflow.

In the aquifer, at 120 °C, the water is slight oversaturated in calcite, fluorite, Mg-montmorillonite, Ca-montmorillonite, muscovite, quartz, and talc (Figure 7) which means an excess of Ca, K, and Mg for the used reference equilibrium temperatures. The waters are undersaturated in albite, chalcedony, Na-montmorillonite and amorphous silica. This can be explaining by ionic

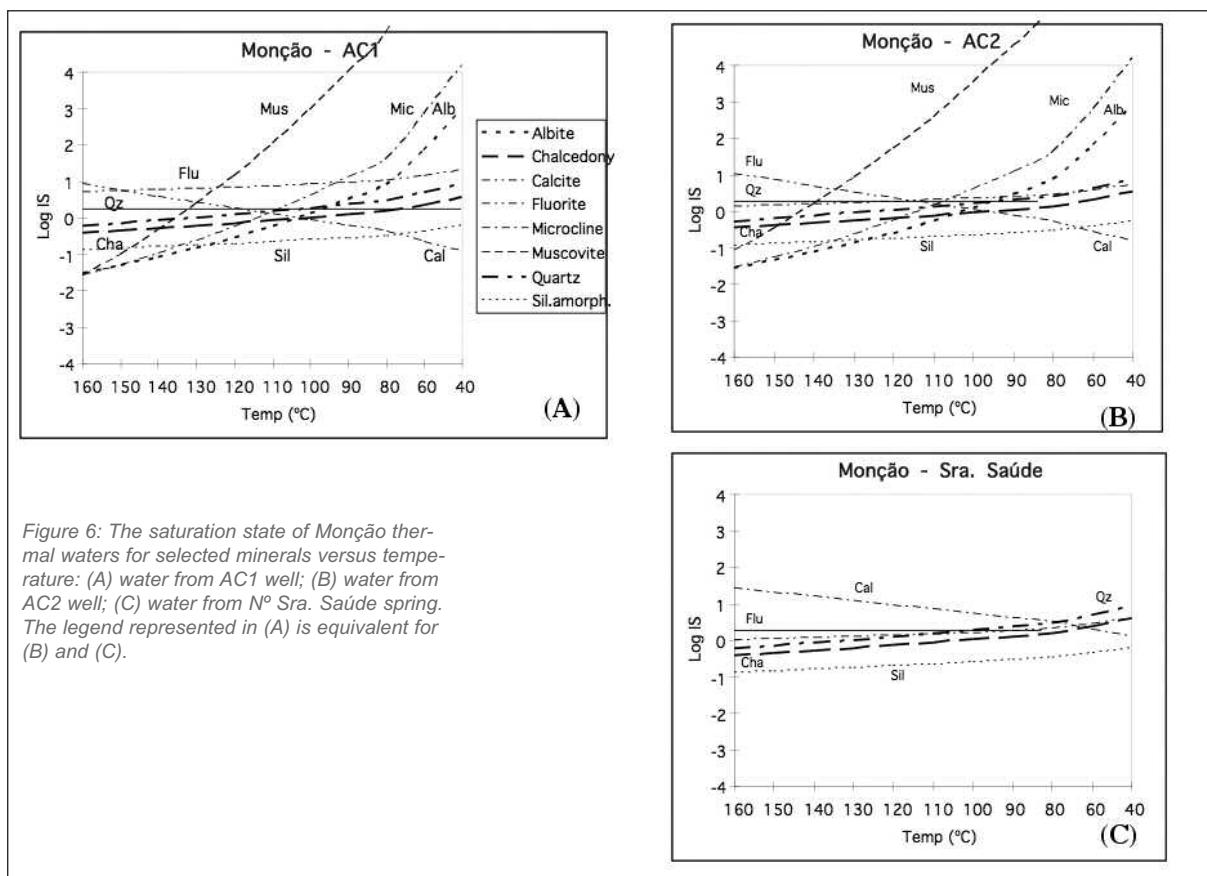


Figure 6: The saturation state of Monção thermal waters for selected minerals versus temperature: (A) water from AC1 well; (B) water from AC2 well; (C) water from N° Sra. Saúde spring. The legend represented in (A) is equivalent for (B) and (C).

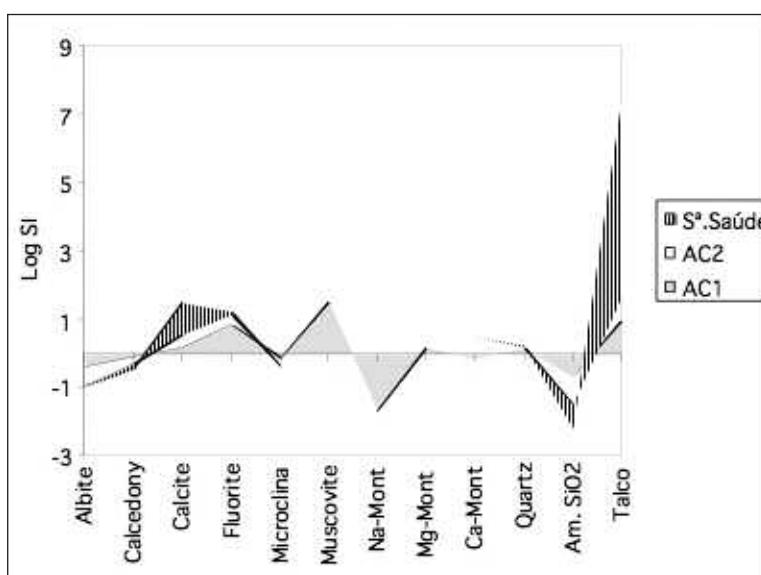


Figure 7 - Waters saturation sates for some minerals at the reservoir temperature of 120 °C.

exchange reactions or mixing of waters with different geochemical signatures.

Assuming the aquifer temperature of 120 °C and a mean geothermal gradient of 30 °C/km at Monção region (Duque et al., 1998), one can estimate that the Caldas de Monção thermal aquifer is layering between 3.4 and 3.7 km at depth.

5. Concluding remarks

The regional geomorphology of the region seems to favour a conceptual circulation model for Caldas de Monção thermal system where the recharge area is located at south of Caldas de Monção, up hill between 300 and 600 m a.s.l (based on $\delta^{18}\text{O}$ values). The underground flow paths are associated with the

NNE-SSW fault systems and their NW-SE associated systems, issuing these waters when appropriate conditions are found. The geophysical models suggest that those tectonic systems may be deep and filled with mineralized water. The low ^{14}C (TDIC) content (between 4.82 ± 1.00 pmc and 7.43 ± 0.34 pmc) of Caldas de Monção thermal waters together with the absence of ^3H support the hypothesis of a long circulation path through the subsurface rocks. This hypothesis is corroborated by the minimum depth reached by the Caldas de Monção thermal water system (3.4-3.7 km) estimated by the geothermometric approach, considering that the thermal aquifer temperature is at 120°C . The $d^{13}\text{C}$ determinations give values in the range of -7 to -6 ‰, indicating a "complex" origin for the CO_2 in these waters (mixture between atmospheric CO_2 , decay of organic matter, dissolution of limestones and upper mantle CO_2). Geophysical, isotopic and geochemical studies performed at Caldas de Monção region have increased knowledge on the interaction between local shallow cold groundwater systems and the low-temperature geothermal waters.

Acknowledgements

This work is being funded by Fundação para a Ciência e Tecnologia under the Project POCTI/CTA/45159/2000 "DISGAS – Dissolved gases in subsurface hydrology – CO₂-rich thermomineral waters (N-Portugal).

References

- Araguás-Araguás L, Froehlich K, Rozanski K (2000) Deuterium and oxygen-18 isotope composition of precipitation and atmospheric moisture. *Hydrological Processes*, 14: 1341-1355.
- Arnórsson S, Gunnlaugsson E, Svavarson, H (1983) The chemistry of geothermal waters in Iceland. III. Chemical geothermometry in geothermal investigations. *Geochim Cosmochim Acta*, 47: 567-577.
- Arnórsson, S, Bjarnason JO (1994) WATCH. Version 2.1. Icelandic Water Chemistry Group, Iceland, 7p.
- Bergfeld D, Goff F, Janik CJ (2001) Carbon isotope systematics and CO₂ sources in the Geysers-Clear Lake region, northern California, USA. *Geothermics* 30: 303-331.
- Carreira PM, Barbosa T, Valério P, Araújo MF (2003) Teores em tritio nas águas de precipitação em Portugal continental: variabilidade e factores condicionantes. Resumos do IV Congresso Ibérico de Geoquímica. XIII Semana de Geoquímica, 353-355.
- Duque R, Monteiro Santos FA, Mendes-Victor LA (1998) Heat flow and deep temperatures in the Chaves Geothermal system, northern Portugal. *Geothermics* 27 (1): 75-87.
- Dansgaard W (1964) Stable isotopes in precipitation. *Tellus XVI*, 4: 436-468.
- Epstein S, Mayeda T (1953) Variations of ^{18}O content of waters from natural sources. *Geochimica Cosmochimica Acta*, 4: 213-224.
- Fouillac C, Michard G (1981) Sodium/lithium ratios in water applied to geothermometry of geothermal reservoirs. *Geothermics*, 10: 55-70.
- Fournier RO (1977) Chemical geothermometers and mixing models for geothermal systems. *Geothermics*, 5: 41-50.
- Fournier RO, Truesdell AH (1973) An empirical Na-K-Ca geothermometer for natural waters. *Geochim Cosmochim Acta*, 37: 1255-1275.
- Friedman I (1953) Deuterium content of natural waters and other substances. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 4: 89-103.
- Gonfiantini R, Araguás-Araguás L, Rozanski K (1990) Tritium in precipitation: comparison between the years of high tritium (1963-67) and recent years. *Bulletin of Radiation Protection*, 13: 1-6.
- Gonfiantini R, Roche MA, Olivry JC, Fontes JCh, Zuppi GM (2001) The altitude effect on the isotopic composition of tropical rains. *Chemical Geology*, 181: 147-167.
- I.A.E.A. (1976). Procedure and technique critique for tritium enrichment by electrolysis at IAEA laboratory. Technical Procedure n°19, International Atomic Energy Agency, Vienna.

DARCY 24

Aquifer protection: a combined study of microstructure and transport properties in clay-sand mixtures

MACINI Paolo¹, MESINI Ezio², VIOLA Rossella³

¹ University of Bologna, DICMA, Viale del Risorgimento 2, Bologna, Italy, paolo.macini@unibo.it

² University of Bologna, DICMA, Viale del Risorgimento 2, Bologna, Italy, ezio.mesini@unibo.it

³ University of Bologna, DICMA, Viale del Risorgimento 2, Bologna, Italy,
rossella.viola@guest.ing.unibo.it

Abstract

The study focuses on the analysis of the effects of swell-shrinkage potentials on the microstructure of bentonite-sand mixtures, to gain insights on changes with varying hydration state, performed by field emission scanning electron microscopy (FESEM) and Nuclear Magnetic Resonance (NMR). Also, permeability experiments on similar artificial soils have been undertaken in oedometric conditions, by means of a constant head permeameter, to validate the suitability of the soil for the construction of liner in landfills, with the purpose of aquifer protection. FESEM observations indicate microstructural changes with dehydration that involve reorientation of the tactoids and closure of micropores. As for permeability test on the mixtures, the results showed that the addition of very small percentages of clay induces variations of more than 3 orders of magnitude. Following the results, a final discussion will highlight the suitability of Revil and Cathles (1999) model, using NMR and permeability test.

Introduction

Clay-sand mixtures are receiving greater and greater attention as technical buffer material in the construction of hydraulic caps and barriers because of their low permeability. Engineered barriers are constructed containment systems, used to isolate hazardous sites from their surroundings and protect aquifer. These barriers include subsurface barriers (denoted as vertical barriers) and caps. Subsurface barriers are vertical cutoffs, that prevent the horizontal migration of the groundwater across the barriers. Vertical barriers typically used to control sources of hazardous waste are soil-clay, soil-cement-clay, cement-clay, sheet pile (steel or high density polyethylene), and clay barriers. Impervious caps prevent the downward migration of surface runoff and rain. They are built of clay or geosynthetic materials. Initially, subsurface engineered barriers were the major component of passive containment systems to prevent migration of contaminated groundwater from hazardous waste sites. Caps often were added to completely isolate such sites. This paper will deal with the feasibility of clay-sand mixtures for the requirements of low hydraulic transport. Moreover, it is worth of note that quite recently engineers began to be concerned not only about the hydraulic transport of contaminants, but also about the diffusion of contaminants through vertical barriers. This issue is crucial for the long term, i.e. for the integrity of vertical barriers. New technologies are emerging to increase the sorption capacity of vertical barriers, primarily through the use of additives in the backfill materials (EPA 1998).

As far as clay-sand mixtures are concerned, clay fabric content, microstructure, and grain size distribution determine the porosity and the permeability of porous media, as well as the evo-

lution of mesopore space forming between sand grains at low clay content and at low hydration state. The spatial organization of the clay particles that consists of colloid-size stacks of clay platelets (tactoids) and the spacing between individual platelets are functions of hydration state. Clay platelets are organized in a complex fashion resulting in a hierarchy of structures and pores that affect retention of water and volume changes. Large changes in volume and in pore space, with changes in hydration state of the soil, make it difficult to predict and model hydraulic functions (Tuller and Or 2003).

Lamellar swelling alone cannot explain observed volume changes and the amount of water retained in clay fabric. Evidence from Scanning Electron Microscope (SEM) observations clearly show that clay fabric can arrange itself in an open micropore structure due to face-to-edge bonds of tactoids (Tessier 1990). So when dealing with pure clay, it is important to consider both spaces between platelets and micropores. Considering other textural components like sand or silt grains another important pore space feature has to be incorporated, the so-called mesopores. Mesopores are voids that form between sand or silt grains, they are larger than either interlamellar spaces or typical micropore size in a network of tactoids. These mesopores form the backbone of the so-called textural pore size of soils. Effects of different clay contents on mixture porosity and permeability have to be taken into account in clay soils. At high sand contents grains commonly form a primary skeleton with distinct mesopore space between individual grains.

Data from geophysical surveys for the petroleum industry (Revil and Cathles 1999) show a clear trend of reduction in porosity of the clay-sand mixture towards a critical clay content where the void space formed by the coarse texture is completely filled by the clay fabric. Subsequent increase in the clay content increases the distance between adjacent sand grains that "float" in the clay matrix. Measurements obtained for shale-sand mixtures reveal a critical clay content of about 35 ÷ 40% by volume at which the clay-sand skeletal porosity is completely filled with clay matrix.

Clay-sand microstructure can be characterised by techniques such as field emission scanning electron microscopy (FESEM) and, recently, Environmental SEM (ESEM). In order to visualize pore space geometry and spatial phase arrangement in clay-sand mixtures as a function of hydration state, microscopy studies with samples varying in clay content have been performed by means of FESEM and ESEM. FESEM observations clearly indicate dramatic microstructural changes with dehydration that involve reorientation of the tactoids, and closure of micropores. In a previous paper (Viola et al. 2005) formation of mesopores between sand grains and clay fabric have been revealed by ESEM.

Along with SEM, NMR Relaxometry (MRR) of water ¹H nuclei has been introduced in this study, as it is a powerful tool for the investigation of the pore space structure in high Surface-to-Volume ratio (S/V) systems. In addition, permeability experiments on similar artificial soils have been undertaken in oedometric conditions, by means of a constant head permeameter, to validate the suitability of the soil for the construction of liner in landfills, with the purpose of aquifer protection (Macini and Brighenti 1993, 1994). Following the results, a final discussion will highlight the suitability of Revil and Cathles (1999) model, using NMR and permeability test.

Theory

The clay fabric is an assembly of colloid-size platelets (tactoids) characterized by large surface area associated with the lamellar nature of clay particles, and by a negative lattice charge balanced by exchangeable cations on their surfaces (Quirk 1986). Additionally, Tessier (1990) and Quirk (1986) have shown that tactoid orientation and other micro structural features of active clays vary with the type of clay and exchangeable cations. In addition to the effects of drying (or wetting), electrolyte type and concentration are key components in determining the

extension of the diffuse double layer and thus affecting the clay fabric microstructure. The spacing between the platelets increases with increasing chemical potential (less negative) due to the interaction of charged surfaces and associated diffuse double layers (Low 1980; Warkentin et al. 1957).

Changes in interlamellar spacing, chemical potential, electrolyte concentration, charge density, etc. cause the shrink-swell phenomenon to occur (Figure 1). The theoretical basis for modeling interactions between charged surfaces in the presence of electrolyte is provided by the DLVO theory (Derjaguin and Landau 1941; Verwey and Overbeek 1948) using the disjoining pressure as the basic thermodynamic property (or changes in free energy per unit surface area per film thickness, see Appendix).

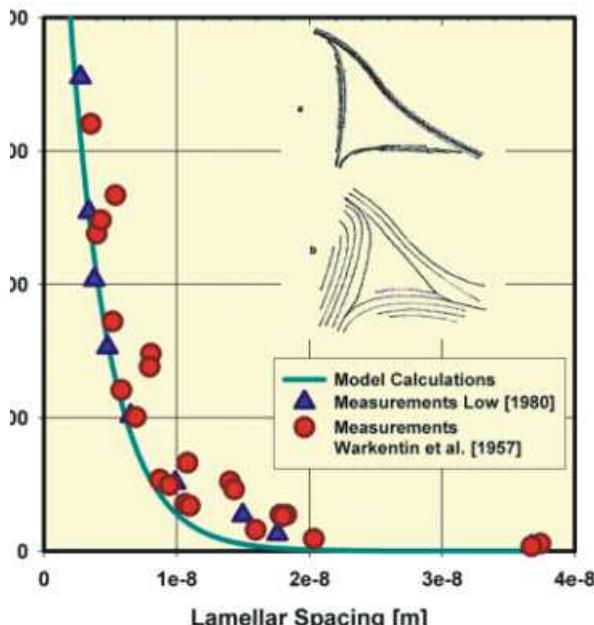


Figure 1: Chemical potential vs lamellar spacing. The spacing between the platelet increases with increasing chemical potential (Low 1980; Warkentin et al. 1957).

ation times of confined water may be many orders of magnitude shorter than the times in bulk water, and distributions of relaxation times may be many decades wide. These effects can be related to properties of the porous medium such as local S/V ratio distributions. The relaxation

rates and pore characteristics are related by the simple relationship $1/T_{1,2} = \rho_{1,2} S/V + 1/T_{1,2-\text{gulk}}$, where $1/T_1$ and $1/T_2$ are the longitudinal and transverse relaxation rates (the reciprocals of the relaxation times), respectively, and ρ is the so-called surface relaxivity. In real porous media pores are not isolated, and NMR relaxation data are sums of exponentially decaying components, reflecting local S/V ratios, combined with some unavoidable measurement noise. Experimental data may be turned into "pore-size" distributions (Borgia et al. 1998) by the so-called inversion of the decay data. Traditional SEM is a well recognized tool for structural characterization of materials. Bombarding sample surfaces with electron beams and detecting those that are emitted or backscattered yield maximum resolutions of about 1 nm and allow visualization of intricate details of the material's structure. To minimize attenuation of the electron beam due to water or gas molecules observations are carried out under high vacuum. This creates difficulties for observation of hydrated media such as partially saturated soils or plant tissue due to alteration of their natural structures. To overcome this problem a number of techniques such as freeze-drying (Smart and Tovey 1982), critical point drying (Crang 1988), resin impregnation (Kim et al. 1995), or cryofixation (Chenu and Tessier 1995) have been applied to preserve sample structure at a given hydration state. In this paper, the freeze-drying technique has been employed.

Materials and methods

As for FESEM analysis, the samples analyzed in this study were obtained by mixing Wyoming Na-bentonite and Ottawa foundry sand in different amounts. Each sample was manually mixed for 30 minutes to ensure that clay particles were evenly distributed. The mixture was then poured into a cylinder with filter paper glued to the bottom, and placed on top of a porous stone contained in a vessel. Following saturation by imbibition, the samples were removed from the vessel and stored in a refrigerator at 10°C. The gravimetric water content of the saturated sample was determined for a small sub-sample by oven-drying. To obtain a set of samples with varying water content for the FESEM observations we divided the saturated sample into sub-samples and slowly dried them to the desired water contents.

For FESEM it is required to dry the samples prior to observation, while maintaining the sample (micro-) structure associated with a specific hydration state. Two different approaches, i.e. freeze- and critical point drying, to preserve sample structure, have been used.

During the freeze-drying process solid water (ice) is directly transferred to the vapor phase. Sub-samples were sealed in small plastic containers and submerged in a vessel containing isopentane, surrounded by liquid N₂ in an outer container. If immersed directly in liquid N₂, samples will be surrounded by a gas layer that has an insulating effect, thereby decreasing the freezing rate. Slow freezing rates might lead to ice crystal growth and potential structural damage. To avoid crystal growth samples must be rapidly frozen at temperatures below -130°C. After freezing, samples are immediately transferred to a vacuum oven, where the temperature is slowly increased above 0°C while a vacuum below 6 kPa is maintained. This allows ice to thaw, but since there isn't enough pressure for a liquid to form, ice is directly transferred into the vapor phase.

Concerning MRR experiments, specimens of natural dry bentonite were tested in vials of 6 mm height and 7 mm diameter. A few drops of brine (deionized water and NaCl 2% by weight) were poured in the vial tube, and MRR measurements have been performed after 24 h.

MRR exploits the interaction of the nuclei of a sample with magnetic fields. A strong magnetic field is applied to polarize the nuclear magnetic moments; time-dependent radio-frequency (rf) irradiations are used to stimulate the spectroscopic response. After rf irradiation, the decay of the nuclear magnetization of the ¹H nuclei can be acquired and visualized on the screen of a computer. The frequency ω_L with which the atomic nuclei respond is called the Larmor frequency. It is related to the strength of the magnetic field, B_0 , at the site of the nucleus by the fundamental equation $\omega_L = \gamma B_0$, where γ is the gyromagnetic ratio of the observed nucleus. ¹H longitudinal and transverse relaxation curves were obtained at 25°C and 20 MHz.

Permeability tests have been carried out on artificial samples, prepared by mixing natural sand and bentonite. An alluvial sand and an industrial bentonite have been used. In particular, bentonite-sand mixtures with concentrations of 0, 2, 4, 6, 8, 10 % bentonite (by weight) have been utilized.

Permeability has been measured by means of a high precision cylindrical permeameter in oedometric conditions. Dry samples have been placed inside the sealed sample-holder (diameter 50 mm and height about 30 mm), deareated for 3 hours and then saturated with deionized water. After saturation, a load cycle from 0 to 2 MPa and back has been repeated for five times on each sample in order to have the same standard of compaction. All measurements have been carried out with a constant vertical stress of 2 MPa at room temperature. Two systematic set of measurements were run. The first one concerned samples with 0, 2, 4, 6, 8, 10% of bentonite by weight and saturated. These samples were then flushed with NaCl brine (about 3 pore volume) having an increasing NaCl concentration of 50,000, 100,000, 200,000 ppm (5%, 10%, 20% by weight) respectively. For each concentration, included fresh water, the permeability of the sample was measured. The second set of measurements concerned samples with 6,8 and 10% bentonite, saturated with a solution of 200,000 ppm

NaCl (20% NaCl by weight). These samples were then flushed with saline solution having a decreasing NaCl concentration of 100,000, 50,000 and 0 ppm (10%, 5% and 0%) by weight, respectively.

Results

Figure 2 depicts a sequence of FESEM micrographs showing the bentonite fabric of a bentonite-sand mixture (60% bentonite, 40% sand by weight) at different gravimetric water contents (2.68 kg/kg, 1.37 kg/kg, 0.84 kg/kg from (a) to (c)). At a magnification of 10000x we can clearly identify the arrangement of clay tactoids (stacks of individual lamellae). In the saturated stage (Figure 2a) tactoids form an open micropore structure with face-to-edge bonding of clay lamellae. As the degree of saturation decreases (Figures 2b and 2c) we observe micropore closures and a more directional alignment of tactoids in a face-to-face orientation.

Figure 3 shows the pore size distributions obtained by NMR for natural dry bentonite satura-

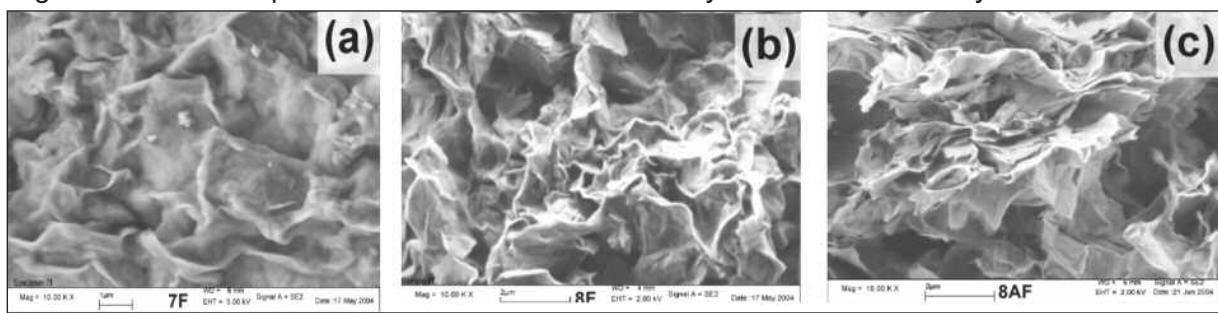


Figure 2: FESEM micrographs (magnification = 10000x) depicting orientation and spatial arrangement of clay tactoids at different hydration states. (a) Open micropore structure with face-to-edge bonding of tactoids at saturation; (b) and (c) micropore closure and unidirectional alignment of tactoids with decreasing water content (Viola et al. 2005).

ted with both deionized water and NaCl brine. It can be observed that, although the curves cover the same range, from 5 to 20 ms, the peak is shifted to shorter times with fresh water, indicating that the swelling effect with deionized water turns into the existence of larger local V/S ratios experienced by the ¹H molecules. This means that water uptake inside clay lamellae is in fast exchange with water outside, so that the average diffusion cell becomes wider.

As for permeability tests, the first set of experiments confirmed that in all samples, for a fixed bentonite percentage, permeability increases with the increase of water salinity (Figure 4). Figure 5 shows permeability vs. bentonite content (at constant water salinity). Several measurements with different water

salinity have been performed. The observed trend indicates that the addition of very small percentages of clay induces variations of more than 3 orders of magnitude.

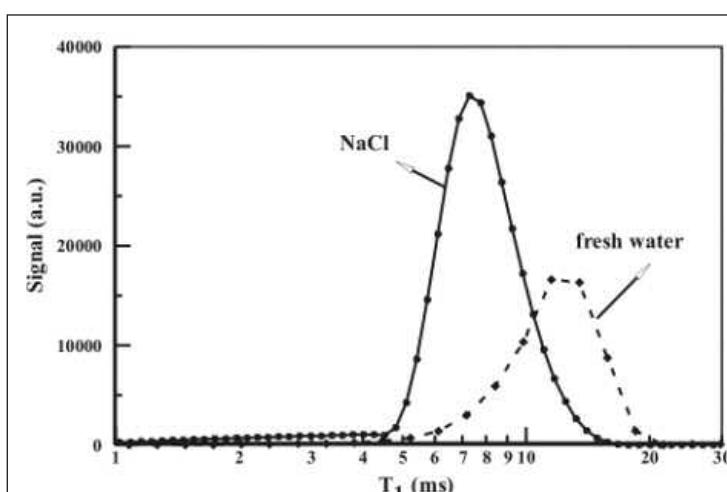


Figure 3: Pore size distributions of 100% clay with fresh water and NaCl. (Viola, 2005).

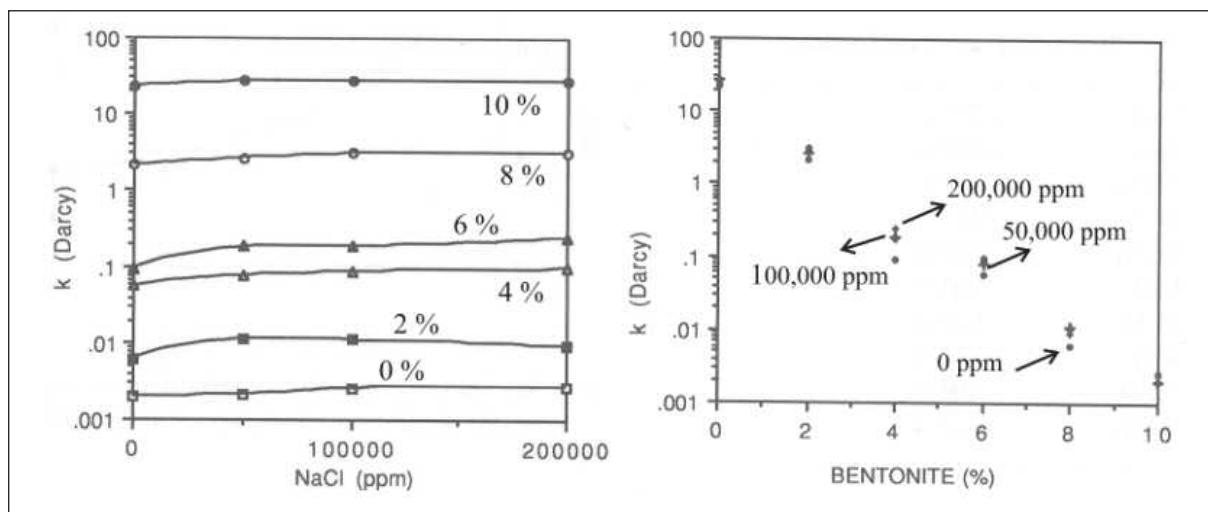


Figure 4 (left): Permeability vs water salinity: 0%, 2%, 4%, 6%, 8%, 10% bentonite from bottom to top.

Figure 5 (right): Permeability vs bentonite content: 0 ppm NaCl, 50,000 ppm NaCl, 100,000 ppm NaCl, 200,000 ppm NaCl.

During the experiments it was also examined the evolution of permeability vs. time of contact with the saline solution. In most of the cases, a reasonable equilibrium was attained within 10 ÷ 15 hours. For example, figure 6 reports the behaviour of the 8% bentonite sample flushed with brine 50,000 ppm NaCl.

The second set of measurements showed initially a slow decrease of permeability with the decrease of brine concentration, and then a fast decrease in correspondence of fresh water flow. This suggests that the micro-texture of the sample, i.e. the spatial arrangement of clay particles, varies more quickly in correspondence of little variations of water salinity towards fresh water (Figure 7).

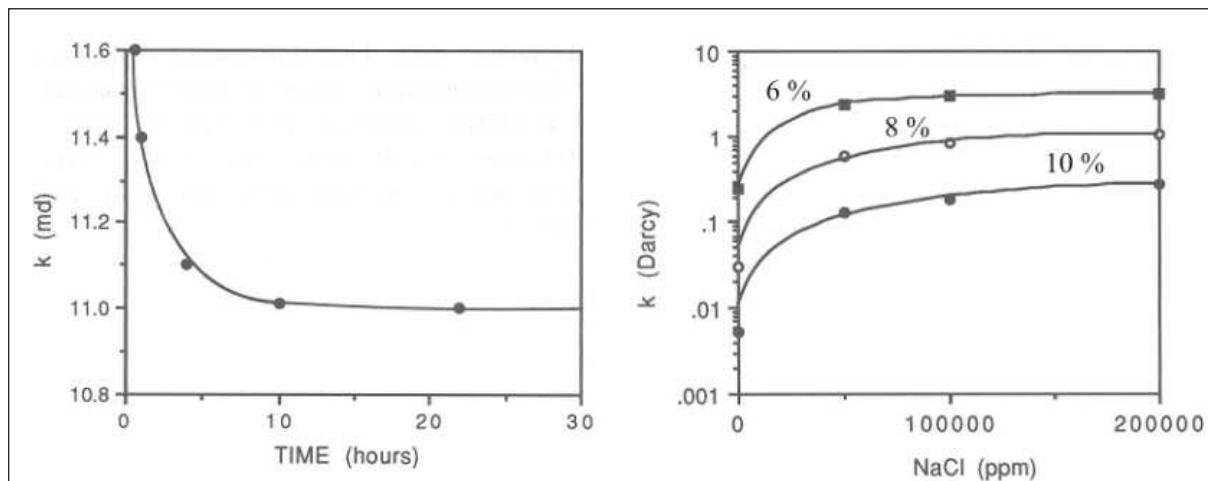


Figure 6 (left): Permeability vs. time in the 8% bentonite sample flushed with brine 100,000 ppm NaCl.

Figure 7 (right): Permeability vs water salinity in samples initially saturated with saline solution (200,000 ppm NaCl): 6%, 8%, 10% bentonite.

Discussion

The results here presented may be explained in the frame of Revil's model (Revil and Cathles 1999), adding the influence of fresh water on clay and clay-sand mixtures. By means of FESEM analysis, we have given rise to the fact that fresh water has the effect of enhancing an open structure in clay fabric, in terms of edge-to-face arrangement of tactoids. The DLVO

theory and the hydration force explain the swell-shrink phenomenon with particular emphasis on the separation of clay surfaces.

NMR experiments have distinguished two different microstructures that arise when clay surface contact either fresh water or NaCl brine, i.e. pore sizes seem to be larger in case of fresh water than in case of NaCl brine. It is worth stressing that the relationship between local S/V values and pore dimensions depends on pore structure, which can be very complex. However, it is important for us to bear in mind that in relaxation measurements the "size" tends to correspond to pore dimensions, thus not including pore throats.

Only if assuming that the bigger the pores the higher the permeability, one might expect higher values of permeability in clay in association with fresh water. On the contrary, it is well known that fresh water destabilizes clay minerals, and the permeability measured with fresh water is underestimated (Moore et al. 1982). Indeed, it is likely that clay particles, not being blocked in the Stern layer, float into the pore space, plug the pore throats, and block the flow. On the other hand, at high salinities, cations from the electrolyte are directly adsorbed in the Stern layer, and this adsorption stabilizes the clay mineral surface (Rowlands et al. 1997). Thus, the apparent contradiction may be explained by exploiting the fact that NMR reflects the pore dimensions, whereas transport properties are controlled by the throats. Thus, for 100% clay, it is likely to have a situation in which, although fresh water is responsible for bigger pores than with NaCl, throats are blocked and therefore permeability is lower (Figure 8).

Finally, permeability tests on clay-sand mixtures confirm that little variations of water salinity

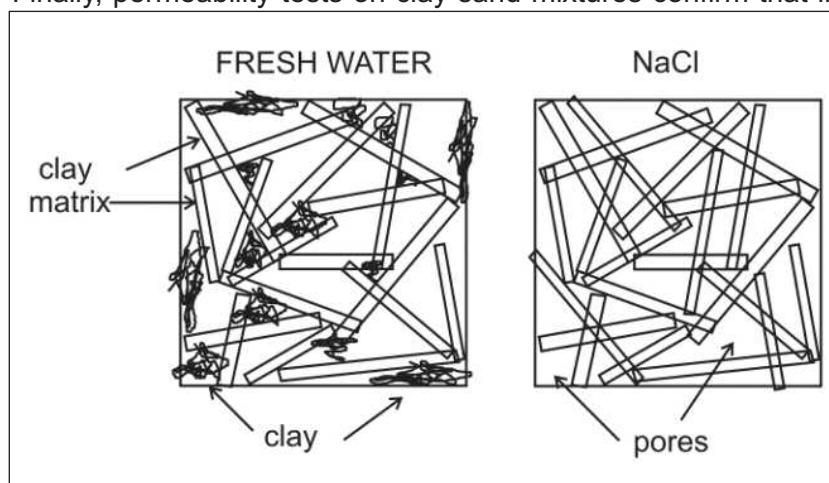


Figure 8: Modellized effects of fresh water (left) and NaCl (right) on the microstructure of 100 % clay.

do not determine a significant permeability reduction as the one observed when moving from brine to fresh water. For sake of clarity, at the beginning it has been shown how permeability decreases moving from 2% to 10% bentonite content in the mixtures, both flushed with fresh water and NaCl brine. This trend correlates with the first part of the curve depicted in the model drawn by Revil and Cathles, valid for

brine (Figure 9). The latter model further state that when the clay content is more than that which can be accommodated within the voids of the coarser fraction, permeability is primarily controlled by clay content alone.

A deeper analysis of the experimental results, in terms of porous structures in the mixture, allow to explain, at each step of bentonite percentage, the higher values of permeability related to NaCl with respect to fresh water. When adding other textural components like sand grains, mesopores form between them. Mesopores are larger than either interlamellar spaces or micropores in clay fabric. Thus, since clay swelling is less evident with brine than with fresh water (NMR and clay model), more space is available and permeability is higher.

References

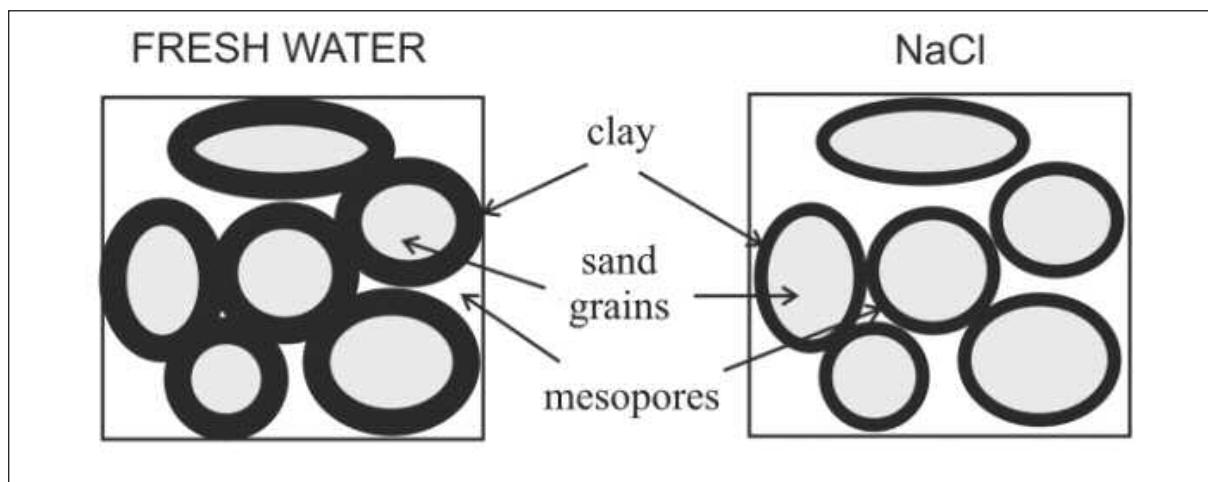


Figure 9: Modellized effects of fresh water (left) and NaCl (right) on a clay-sand mixture up to 10% of clay.

- Borgia GC, Brown RJS, Fantazzini P (1998) Uniform-Penalty Inversion of Multiexponential Decay Data. *J. Magn. Reson.*, 132, 65-77.
- Brightenti G, Macini P (1993) Permeability of clayey soils to liquid pollutants. In: *Geology and Confinement of Toxic Wastes* (ed. by M. Barrés, B. Come and M. Arnould) (proc. *Geoconfine '93*, Symposium, Montpellier, June 1993) vol.1, 15-20. Balkema, Rotterdam.
- Brightenti G, Macini P (1994) Effectiveness of clayey layers as protective barriers for aquifers against pollution. In: *Future Groundwater Resources at risk* (proc. Helsinki Conference, June 1994) IAHS Publ. no. 222, 409-416.
- Chenu C, Tessier D (1995) Low temperature scanning electron microscopy of clay and organic constituents and their relevance to soil microstructures. *Scanning Microscopy* 9(4): 989-1010.
- Churaev NV, Sobolev VD (1995) Prediction of wetting conditions on the basis of disjoining pressure isotherm. *Computations Colloid. J.* 57 (6), 843-850.
- Crang RFE (1988) Artifacts in specimen preparation for scanning electron microscopy. In: *Artifacts in biological microscopy* (ed. by R.F.E Crang and K.L.K Klomparens) New York, Plenum Press.
- Derjaguin BV, Churaev NV, Muller VM (1987). *Surface Forces*. Plenum, New York.
- Derjaguin BV, Landau L (1941) *Acta Physicochim. URSS* 14, 633-662.
- EPA United States Protection Agency (1998) Evaluation of Subsurface Engineered Barriers at Waste Sites. EPA Report 542-R-98-005: www.clu-in.com.
- Israelachvili JN (1992) *Intermolecular and Surface Forces*, 2nd ed. Academic, San Diego.
- Kim JW, Peacor DR, Tessier D, and Elsass F (1995) A technique for maintaining texture and permanent expansion of smectite interlayers for TEM observations. *Clays and Clay Minerals* 43(1): 51-57.
- Low PF (1980) The swelling of clay. II. Montmorillonites. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 44 (4), 667-676.
- Moore DE, Morrow CA and Byerlee JD (1982) Use of swelling clays to reduce permeability and its potential application to nuclear waste repository sealing, *Geophys. Res. Lett.*, 9, 1009-1012.
- Murray RS, Quirk JP (1990) Interparticle forces in relation to the stability of soil aggregates. In: *Soil Colloids and their Associations in Aggregates*, (ed. by De Boodt, M.F., Hayes, M.H.B., Herbillon, A.), Plenum Press, New York.
- Paunov VN, Dimova RI, Kralchevsky PA, Broze G, Mehreteab A (1996). The hydration repulsion between charged surfaces as an interplay of volume exclusion and dielectric saturation effects. *J. Colloid Interf. Sci.* 182, 239-248.
- Quirk JP (1986) Soil permeability in relation to sodicity and salinity. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A* 316:297-317.
- Revil A, Cathles LM III (1999) Permeability of shaly sand. *Water Resour. Res.* 35 (3), 651-662.
- Rowlands WN, O'Brien RW, Hunter PJ and Patrick V (1997) Surface properties of aluminium hydroxide at high salt concentration, *J. Colloid Interface Sci.*, 188, 325-335.
- Smart P and Tovey NK (1982) *Electron microscopy of soils and sediments: techniques*. Oxford, Clarendon Press.

- Tessier D (1990) Behaviour and microstructure of clay minerals. In: Soil colloids and their associations in aggregates; (ed. by De Boodt, M.F., Hayes, M.H.B., A. Herbillon), New York, Plenum Press.
- Tuller M, Or D (2003) Hydraulic functions for swelling soils: pore scale considerations. Journal of Hydrology 272: 50-71.
- Verwey EJW, Overbeek JTG (1948) Theory of the stability of Lyophobic Colloids: the Interactions of Soil Particles having an Electric Double Layer, Elsevier, New York.
- Viola R (2005) A critical analysis of pore space structure and transport properties in consolidated and unconsolidated porous media by NMR relaxometry. PhD thesis, University of Bologna, Italy.
- Viola R, Tuller M, Or D, Drasdis J (2005) Microstructure of clay-sand mixture at different hydration states. In: Advanced Experimental Unsaturated Soil Mechanics (ed. by Tarantino, A., Romero, E., Cui Y.J.) (Proc. Experus 2005, Trento, June 2005). 437-442. Balkema, Rotterdam.
- Warkentin BP, Bolt GH, Miller RD (1957) Swelling pressure of montmorillonite. Soil Sci. Soc. Am. Proc. 21, 495–497.

Appendix . DLVO theory for modeling clay particles interactions

The DLVO theory (Derjaguin and Landau 1941, Verwey and Overbeek 1948) is the classical explanation of the stability of colloids in suspension. It looks at the balance between two opposite forces - electrostatic repulsion and van der Waals attraction - to explain why some colloidal systems agglomerate while others do not. It provides the theoretical basis for modeling interactions between charged surfaces in the presence of electrolyte.

In equilibrium, the chemical potential is composed of three components – the primary source is due to electrostatic repulsion between adjacent DDLs (diffuse double layers), denoted by π_e . There are two other short-range forces, the van der Waals attractive force π_m and the so-called hydration force π_h that prevents collapse of the DDL at short separation distances (a repulsive force). The electrostatic component of the disjoining pressure is originated by the overlap between two adjacent DDLs (Derjaguin et al. 1987). For inter-platelet spacing that is not too thin: $\pi_e(h) = 64n_0kT\gamma^2e^{-kh}$

where h is the platelet separation distance (m), k is the Boltzmann constant ($1.38066 \times 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$), $\gamma = \tanh\left(\frac{-ze\psi_0}{4kT}\right)$, n_0 is the number of counterions per unit

volume of the bulk solution (m^{-3}), and $\psi_0(\text{V})$ is the surface electrostatic potential (Stern layer potential); e is the elementary charge ($1.60218 \times 10^{-19} \text{ C}$). The hydration or structural repulsion force (Churaev et al. 1995; Murray and Quirk 1990) is a supplemental force not contemplated in the DLVO theory which acts at short distances and explains the experimental evidence of separation of clay surfaces in that range where attractive van der Waals forces are expected to dominate. According to experimental results led by Derjaguin et al. (1987), the force originates from strongly hydrogen-bonding groups on the clay surface that modify the structure of the hydrogen bond network in water adjacent to the surface (Israelachvili 1991). More recently, Paunov et al. (1996) have shown that hydration repulsion can be attributed to interplay between finite size of counterions and variable dielectric permittivity across the DDL. Repulsive hydration between hydrophilic clay surfaces is empirically represented as where

$\pi_h(h) = K_h e^{-\frac{h}{x}}$ ($x = 1$ will be used for expansive clay) is a characteristic length, and the

parameter K_h is in the range $3-30 \times 10^6 \text{ J m}^{-3}$.

Finally, the attractive component of the disjoining pressure due to van der Waals interactions is simplified as: $\pi_m(h) = \frac{A_{ssl}}{6\pi h^3}$

where A_{ssl} is the Hamaker constant (≈ -2 to $-5 \times 10^{-20} \text{ J}$).

The components of the disjoining pressure for interlamellar water are $\mu = \frac{1}{\rho}(\pi_m(h) + \pi_e(h) + \pi_h(h))$ in equilibrium with the chemical potential of the bulk water phase (μ_b):

where ρ is the density of water.

DARCY 70

Variable Water Saturation Impact on Sorption/Desorption and Transport Characteristics of Multiple Species Heavy Metals from Gold Mining

PUTTHIVIDHYA Aksara¹, CHOTPANTARAT Srilert²

¹ Department of Water Resources Engineering, Faculty of Engineering, Chulalongkorn University, Building 1 Room 205, Phayathai Road, Pathumwan, Bangkok, Thailand 10330, dr.aksara.putthividhya@gmail.com

² National Research Center for Environmental and Hazardous Waste Management, Institute Building 2, Phayathai Road, Pathumwan, Bangkok, Thailand 10330, lertc77@yahoo.com

Abstract

Gold mine industries have expanded all over the world, producing substantial amount of waste that becomes problematic to the environment. It is important to understand the mechanisms of releasing of metal elements from these mines in order to predict or estimate migration of these contaminants and initiate necessary policy for pollution control and prevention in groundwater aquifer systems. In this study, we focus particularly on exploring the impacts of variable water saturation on migration and adsorption/desorption characteristics of multiple species heavy metals from mining leachate into the groundwater environment. A series of batch and column tests was conducted to evaluate the effects of pH on sorption/desorption characteristics of metals and to estimate the sorption/desorption isotherms of multiple species heavy metals. The parameters obtained from these column experiments were then employed as input parameters in HYDRUS-2D model to simulate the migration of heavy metals through variable saturated porous media. The computer simulations revealed that the migration of the mixed contaminated plume was governed mainly by the mechanisms in unsaturated zone, rather than the hydraulic head gradient in the saturated zone. In addition, decreasing water contents resulted in higher sorption, promoted the late arrival of water fronts, and therefore could extend the contaminants' lifetime in the system. Drier soil retarded transport of metals particularly in shallow unsaturated zone, leading to the possible pathway for the contaminants may get back in the hydrologic cycle via plant root uptake. This study provides a basis for understanding processes governing transport and migration of heavy metals in groundwater, which could lead to the policy planning for contaminant controls and prevention in the future.

Introduction and Background

The presence of heavy metals in the surface and groundwater has been a major concern to communities and municipalities. Concerns over contamination of groundwater and surface water by heavy metals from previously abandoned disposal sites and some currently operating sites, including mining, have generated program to remediate contaminated soils. Metals can cause significant damage to the environment and human health as a result of their mobilities and solubilities. The ubiquitous nature of heavy metals, their toxicity even in trace quantities, their tendency to bioaccumulate in the food chain, and the stricter environmental regulations related to heavy metal discharges make it necessary to develop schemes for the removal of heavy metals from both wastewaters and landfill leachates. The selection of most appropriate soil and sediment remediation method depends on the site characteristics,

concentration, type of pollutants to be removed, fate and transport of metals, and the end use of the contaminant medium.

Metals typically become groundwater problems under the following situations: (1) activities associated with plating industry (Ma et al., 1994), where a wide variety of metals are present at high concentrations in soluble forms; (2) sites with releases of radionuclides, due to unique health risks and the use of chelating and complexing agents, can have significant impact at very low concentrations; and (3) metals and high levels of inorganic Total Dissolved Solids (TDS) are associated with leaks from sanitary, solid and hazardous waste landfill, and mining. Many studies have been conducted on the crystal structure and chemistry of synthetic and mineral apatites (Chen et al., 1997, Wright, 1990, McConnell, 1973) as well as many toxic heavy metals were investigated (Ma et al., 2004; Minamisawa et al., 2004, Um and Papelis, 2004, Schneider and Rubio, 1999). Additionally, many studies have been devoted to study the sorption of metals onto hydroxides, especially iron hydroxides (Hayes and Leckie, 1986, Dzombak and Morel, 1990), aluminium hydroxides (Benyahna and Garnier, 1999, Bowers 1983), silicon hydroxides (Meng and Letterman, 1993), and kaolinite (Dalang et al., 1984). However, research related to studying multiple component toxic heavy metals in unsaturated zone where the variable degree of water saturation is still very rare.

This paper aims to focus particularly on multiple component toxic heavy metals as contaminations in groundwater. Groundwater can be contaminated with metals directly by infiltration of leachate from mine tailings and other mining wastes. A variety of reactions, which influence the speciation and mobility of metal contaminants, can occur. These reactions include, acid/base, precipitation/dissolution, oxidation/reduction, sorption/desorption, and ion exchange. In general, precipitation, sorption, and ion exchange can retard the movement of metals in groundwater. The rate and extent of these reactions depend in factors such as pH, Eh, complexation with other dissolved constituents, sorption and ion exchange capacity of the geological materials, and organic matter content. Soil moisture contents as well as groundwater flow characteristics also significantly influence the transport of metal contaminants. It is important to understand the mechanisms and factors controlling the release of these heavy metals into the environments from mine wastes in order to predict or estimate migration of these toxic contaminants and initiate necessary policy as well as remediation plan for pollution control and prevention.

This paper is mainly focusing on the equilibrium-state chemistry for the possible 4 species of heavy metals released from gold mining leachate: lead (Pb), cadmium (Cd), nickel (Ni), and zinc (Zn). In this study, the impact of groundwater environment on leachate from mine tailing is being investigated at Akara mine. Akara Mining Limited proposed to develop the Chatree Gold Project, which is located 280 km north of Bangkok. This project comprises the mining and processing of gold ore over a period of fourteen year. During the years of mining, waste rocks were extracted and used in the construction of the Tailings storage facility of deposited in three mine waste emplacements. During ore processing, 750,000 dry tons per year of tailings were generated and deposited in the Tailing storage facility. These mine tailing was left in the form of particulate suspension (i.e., fine grained sediment-water slurry) after the valuable metals had been extracted. The shallow municipal wells are mainly located within the nearby villages, where most local people rely on groundwater from these wells. After preliminary investigation, these shallow wells probably intersect the shallow, unconfined, alluvial, clayey sand aquifers at depth between 1.5-7 m beneath land surface, and groundwater table is approximately 6 meters below the surface. Surface soil was preliminarily examined, and found that soil pH was ranged from around 3 to 7, and the soils were classified as acidic to neutral. The metals level was considered to be relatively low for a mineralized area (comparing to other mining sites around Thailand and all over the world). The preliminary results leads to the acidic mine leachate condition.

The primary objective of this study is to investigate the effect of environmental conditions such

as soil moisture contents on migration of multi-species heavy metals from mining leachate in natural subsurface environments. For this purpose, the study was divided into three parts. First, real tailings soil samples from Akara mine were employed in a series of batch and column experiments to investigate the sorption/desorption characteristics of the multi-species metals. Second, a series of batch experiments were undertaken to evaluate the sorption isotherms for each heavy metal under various pH conditions. Finally, the transport and migration of the multi-species under various soil moisture contents was investigated using a 2D numerical model (HYDRUS-2D) by employing the sorption isotherms obtained from previous batch and column experiments as inputs.

Materials and Methods

The amount of heavy metals in Tailing at Akara mine was initially measured by collecting soil samples at TSF (Tailing Storage Facility) at different depths using hand auger and clean plastic containers. The soil samples were collected from TSF at 13 different locations distributed over the area and ranged from the soil surface down to around 2 m deep. The samples were secured separately in clean plastic bags and transported back to the laboratory. Each sample was then air-dried and sieved through sieve number 200 prior to heavy metals and pH conditions analysis.

In order to analyze for total heavy metal contents in the Tailing, EPA method 351 was employed in which the contaminant concentrations are most commonly expressed as total dissolved metals in mass concentrations or in molar concentrations. Our Tailing soil samples were batch tested under three pH conditions (i.e., pH 4, 7, and 10) in order to estimate equilibrium time in each condition. For this, Tailing soil samples were digested in 10 mL concentrated nitric acid for 10 minutes in microwave digesting oven. The sample and acid were then placed in a fluorocarbon (PFA or TFM) microwave vessel. The vessel was capped and heated in the microwave again. After cooling down, the vessel contents were filtered and centrifuged (or allowed to settle). The supernatant was diluted with 50 mL buffer solution, and then shaken at 180 rpm. The slurry was then filtered through GF/C filter paper and the aqueous phase was analyzed via ICP-OES or ICP-AES (Inductively coupled plasma optical emission spectroscopy). Several buffer solutions were tested in order to select the most efficient one that is proper to our system. The results are shown and discussed later in this paper.

To estimate desorption of heavy metals, samples were again tested under 3 pH conditions (i.e., at pH 4, 7, and 10). Triplicate Tailing samples were adjusted their pH using 50 mL of the appropriate buffer. The samples then were shaken at 180 rpm and time to reach local equilibrium was measured under each condition. After that, the slurry was filtered through GF/C filter paper (Whatmann) before analyzing for metals using ICP-OES or ICP-AES. In order to determine metal sorption isotherm parameters of the soil laterite aquifer materials found at the site, the samples were collected, transported back to the laboratory, and kept at 4°C prior to use. Table 1 below represents the main soil characteristics of the porous medium from the laterite layer.

Zn and Pb were selected as the representatives of the multi-species heavy metals found in the leachate

pH-H ₂ O	5.4
Organic matter (%)	0.13
Clay fraction (%)	50.2
Sand fraction (%)	30.8
Silt fraction (%)	19.0
CEC (cmol _c /kg)	8.2
Bulk density(g/cm ³)	1.10

Table 1 : Soil characteristics of the latente layer.

because of their relatively high concentrations found at the site and because of their toxicity to human and the environments. A series of sorption batch experiments were conducted under 2 different pH conditions (i.e., pH 4 and 7). For this, 5 ppm of Zn and Pb each was added as initial aqueous metal concentration in the system and 1 g of laterite sample was followed. The samples were then shaken on a platform shaker for 120 hours or until local equilibrium had been reached. Changes in sorbed metal concentration in the system were measured periodically. The attempt was made at pH higher than 7 but a significant precipitation was observed and therefore the results are not shown herein.

Results

The results of overall regional groundwater analysis in Akara mine area revealed that several elements in the area exceeded standard as shown in Table 2 below. The authors were concerned with the concentrations of metals that may be presented in sediments as a solid phase, instead of dissolved phase. Therefore, several tailing soil samples were collected and analyzed for metal concentrations. The results from multi-element analysis of 36 tailing soil samples collected from TSF are presenting in Table 3 below.

Elements and Location	Concentration (ppm)
Mn	
Piezometer 690	0.51-0.75
Piezometer 692	0.52-0.77
Piezometer 321	0.37-1.74
Piezometer 523	0.27-0.79
Piezometer 701	0.14-0.52
Piezometer 677	0.52-1.43
Piezometer 685	0.32-0.84
Piezometer 686	0.23-7.18
Piezometer 663	0.48-2.13
UD	0.85-26.7
ST5	0.51-0.66
Fe	
Piezometer 681	0.01-6.36
Piezometer 321	0.17-7.70
Piezometer 677	0.01-8.23
Piezometer 679	1.40-9.00
Piezometer 685	0.03-2.90
ST2	0.31-1.90
ST3	0.20-4.50
Cd	
DC	0.02-6.10
UD	0.02-2.35
SO ₄ ²⁻	
UD	235-2120

Table 2 : Regional estimate of groundwater at Akara Mine.

Parameter	Concentration (mg/kg)
Aluminum	10.17
Arsenic	ND
Barium	0.13
Bismuth	0.0024
Boron	0.10
Cadmium	ND
Calcium	34.37
Chromium	ND
Cobalt	ND
Copper	0.07
Iron	19.59
Lead	0.04
Magnesium	4.25
Manganese	2.05
Mercury	0.001
Nickel	0.008
Potassium	2.33
Silver	ND
Sodium	0.41
Strontium	0.03
Zinc	0.16

Note: ND = Not detected

Table 3 Chemical analysis of tailing soil samples at Akara mine

Adsorption and desorption experiments of heavy metals from tailing samples were undertaken under different pH conditions as explained in materials and methods section. Therefore, several buffers were used in order to control the pH to remain consistent throughout the experiments. The efficiency of pH buffers and optimal amount of buffer were tested by measuring pH in the system for a significant period of time. The results are plotted in Figure 1 as shown below.

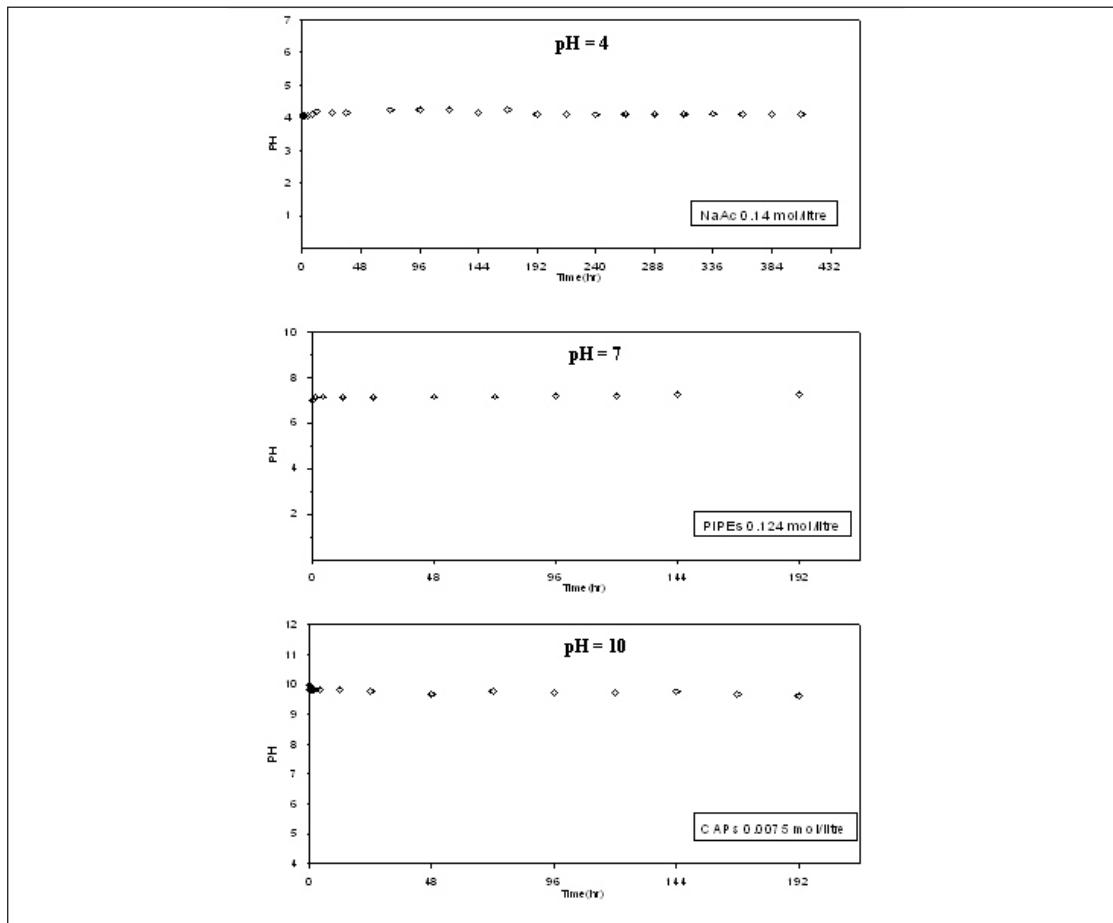


Figure 1: Efficiency and optimal amount of different buffers operating under 3 pH conditions.

The results in Figure 1 indicated that NaAc at 0.14 M was sufficient to control pH of the system to remain at 4 throughout the entire experiment. In addition, the system reached equilibrium condition rather quickly, indicating that there was no sign of mass transfer limitation between solid and aqueous phase. Similarly, PIPES buffer at concentration of 0.124 M or more was sufficient to control pH at 7 with no sign of mass transfer limitation. CAPs buffer at 0.0075 M was used at a higher pH of 10 with no mass transfer limitation. It is probably a better idea to select the proper buffer based on the concentration basis, i.e., the least amount of buffer, the better, because we do not wish to induce any possible metal precipitation or any surface complexation whatsoever. The effects of buffer on metal precipitation and complexation are currently under investigation.

Batch desorption experiments of several heavy metal species from tailing soil were conducted to estimate the amount of heavy metals that could be released from sorbed phase into aqueous phase and potentially contaminated groundwater resources as well as surface water resources in the nearby area. Additionally, the effect of pH was also determined on the

release of heavy metals from tailing soil as a threat to the environment. The results are illustrated in Figure 2 below.

It is quite obvious from Figure 2 that the desorption characteristics of Mn is pH dependent.

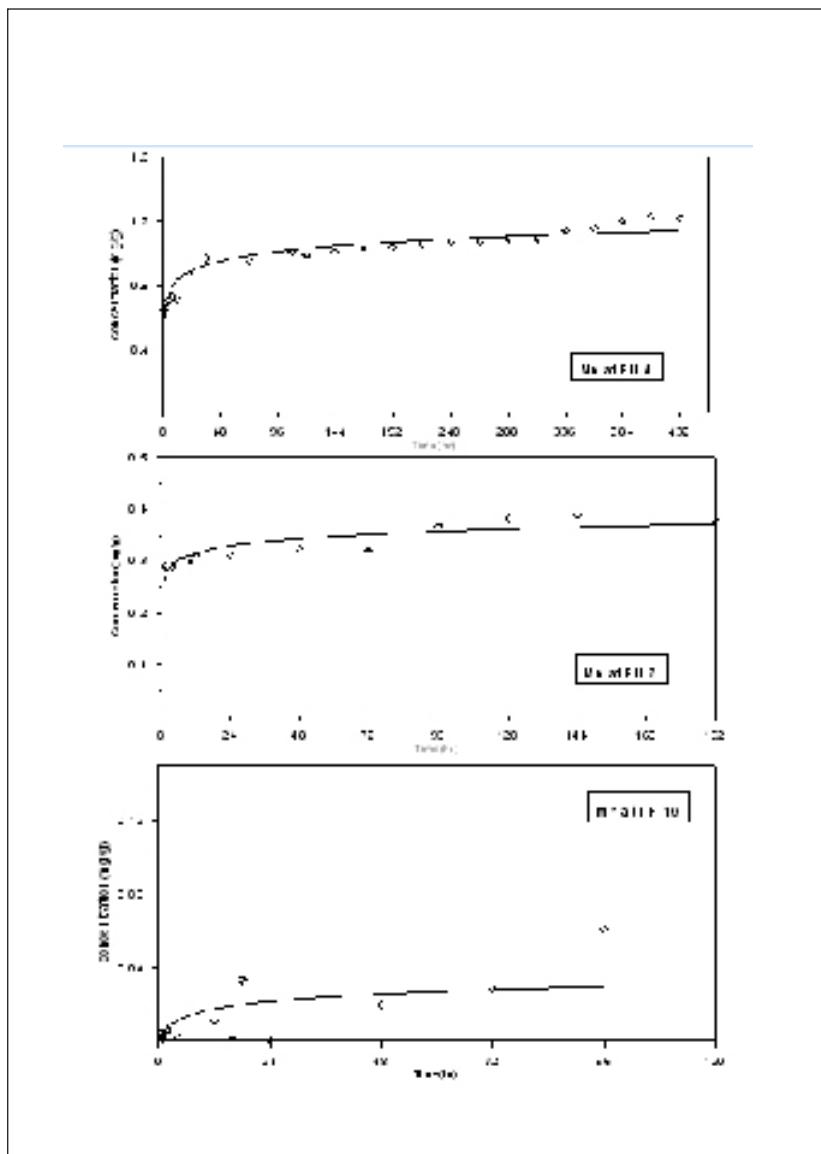


Figure 2: Effects of pH on desorption and time to reach equilibrium of manganese (Mn).

Mn and Fe reached equilibrium at approximately the same time (i.e., 36 hours).

The results from sorption batch experiments of Zn and Pb with laterite soil at pH 4 and pH 7 are presented in Figure 4. The y-axis represents sorbed normalized metal concentration on soil materials, whereas x-axis is sampling time. It is important to note here that we were unsuccessful in the sorption experiment with higher pH in the system with Pb due to the very low solubility of Pb at higher pH, resulting in the substantial precipitation of Pb. Therefore, results for Pb at pH 4 only are shown in the figure. The results in the figure indicates that sorption capacity of Zn onto laterite soil increased with increasing pH from 4 to 7, based on the increased sorbed concentration of Zn observed in the system to around 80% of the initial Zn concentration added. Additionally, under more acidic conditions, Zn sorption capacity seemed to reach its maximum level slower than at higher pH.

Solution pH greatly affected metal desorption mechanism from mine tailing soils in the way that less Mn was discovered in the aqueous phase when pH increased. Additionally, the aqueous metal concentrations (i.e., y-axis) in Figure 2 reached plateau level after 48, 24, and less than 24 hours for pH 4, 7, and 10, respectively, indicating that the system reached local equilibrium conditions faster with increasing pH.

Heavy metal desorption characteristics from tailing soil also are species dependent. Figure 3 below compares the desorption characteristics among Mn, Fe, Cu, and Pb, at an identical pH condition and buffer type. The results suggested that Mn desorption was highest among the 4 metal species tested, while Cu and Pb could desorb relatively less than Fe and Mn. Moreover, Pb took as long as 312 hours to reach equilibrium, which was the longest among the 4 metal species tested, whereas

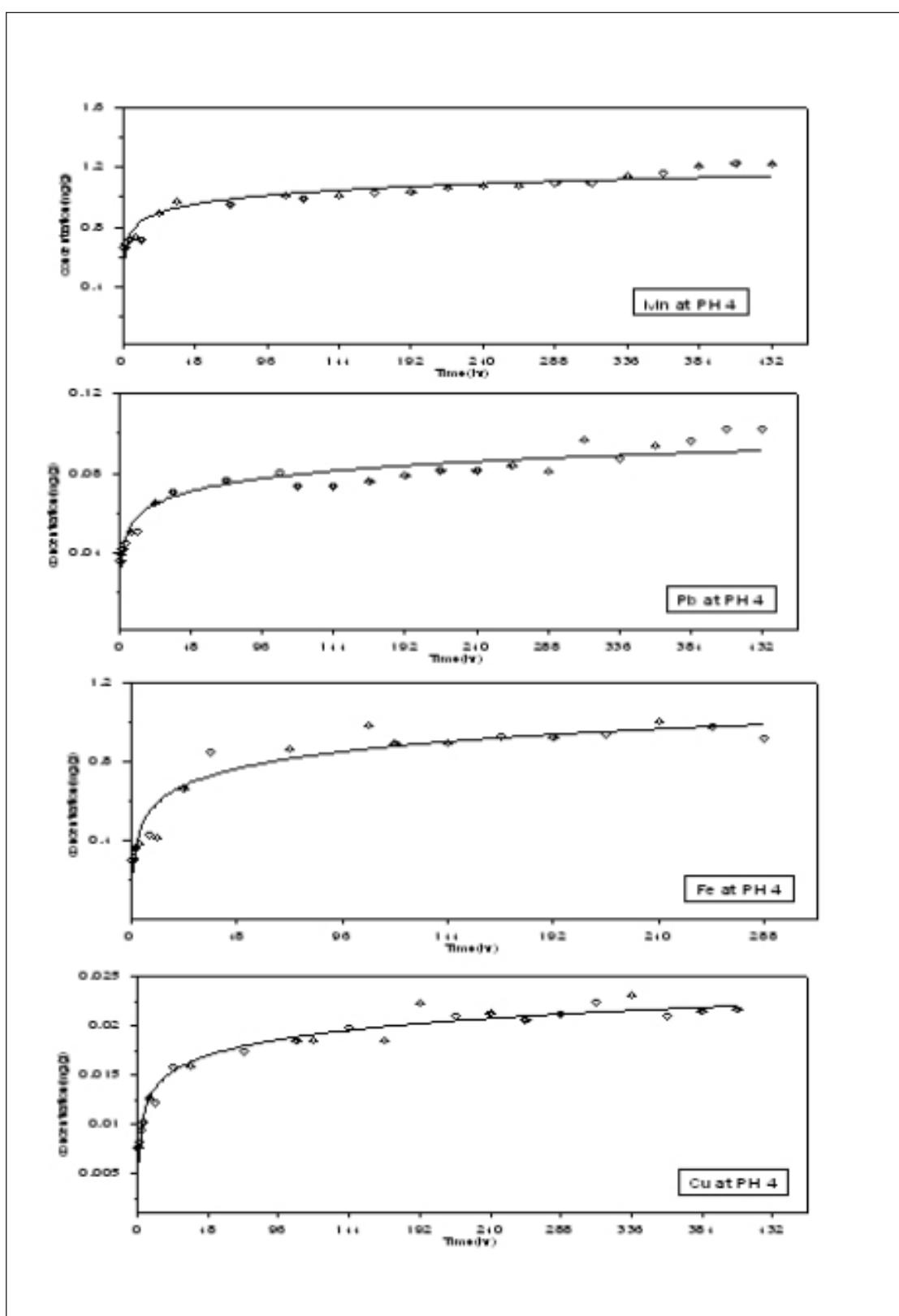


Figure 3: Heavy metal desorption characteristics of Akara mine tailing soil at pH 4.

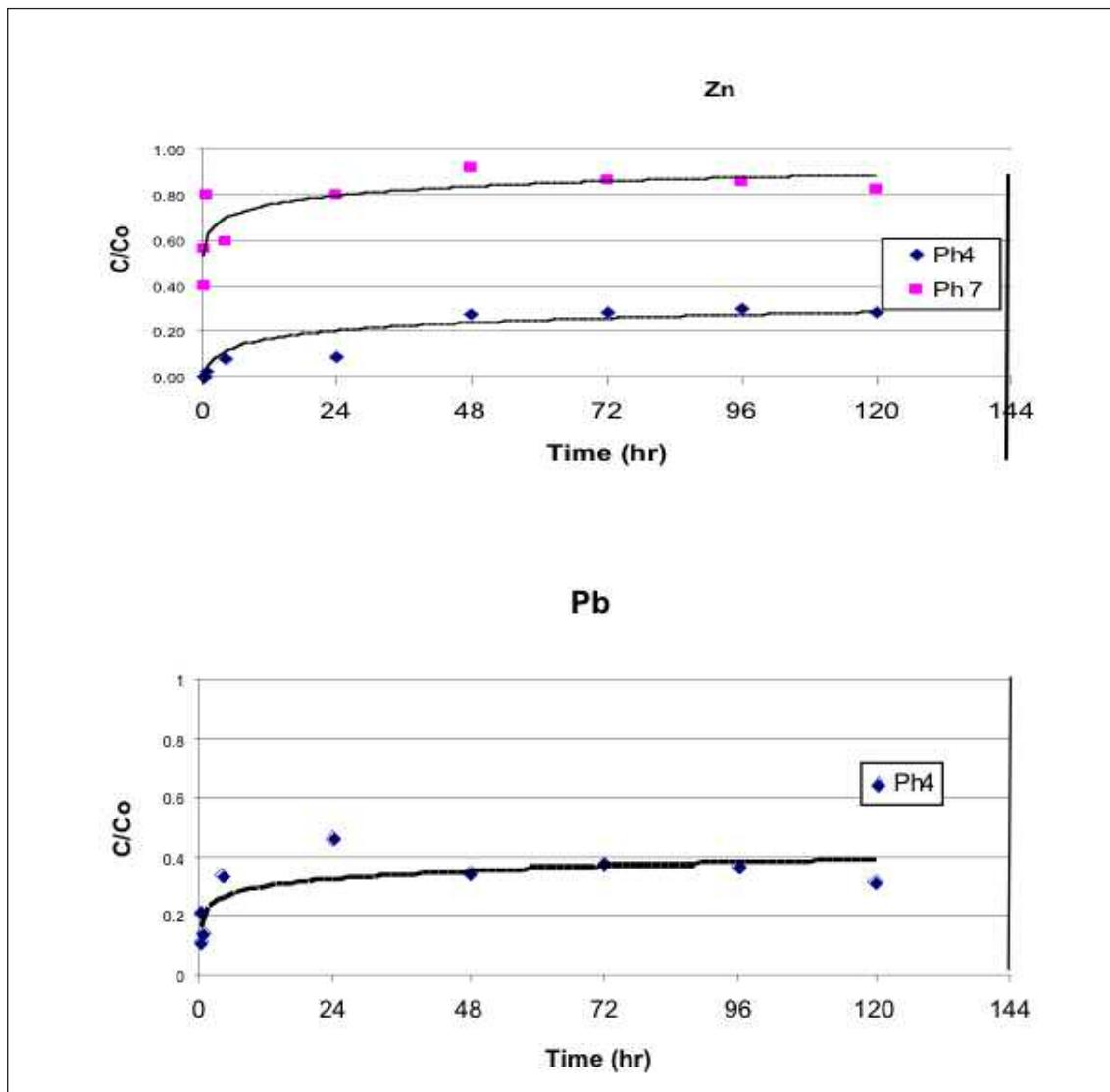


Figure 4: Zn and Pb sorption characteristics at pH 4 and 7

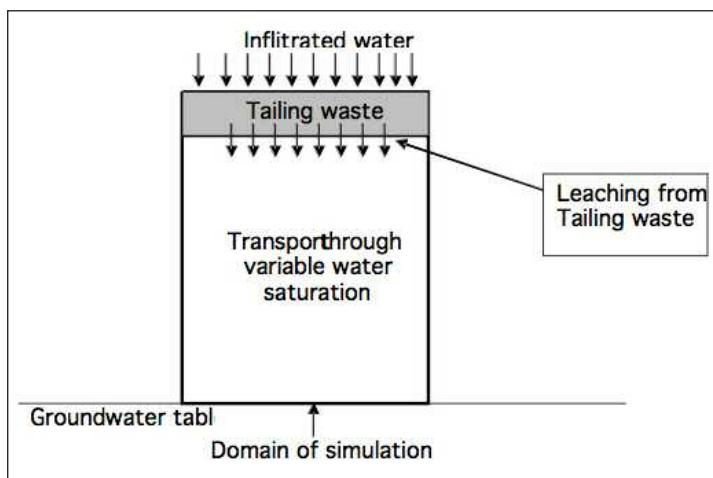
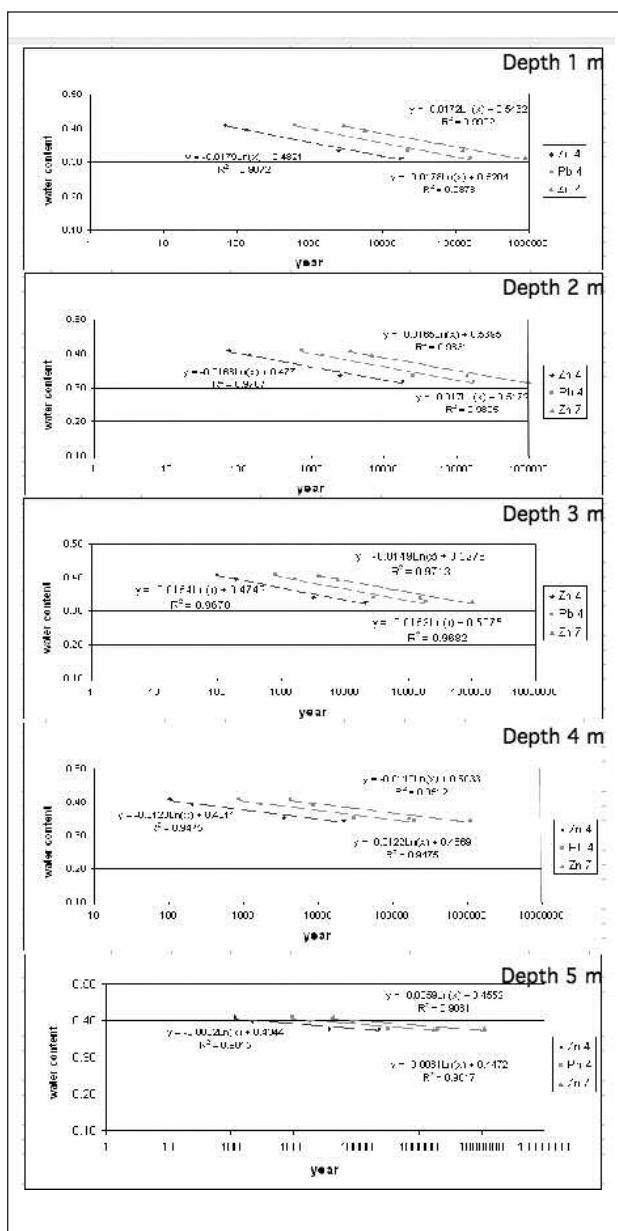


Figure 5 : Conceptual model and domain for numerical simulation.



The sorption characteristics of Zn and Pb under the same pH conditions of 4 can be compared as shown in Figure 4. Firstly, both Zn and Pb sorption characteristics were following the similar trend. Second, the plots indicated that Pb at the same pH conditions sorbed onto laterite soil matrix better than Zn, based on the maximum sorbed Pb concentration of 40% at approximately 96 hours operating time. Moreover, the system composed of Pb ions achieved local equilibrium faster (approximately after 24 hours) than that in the system with Zn in the way that the adsorption of Zn did not further increase after approximately 48 hours.

Adsorption isotherm parameters obtained from batch experiments were employed as an initial input parameters for modeling transport and migration behavior of multiple heavy metal components in unsaturated zone. The conceptual model (shown in Figure 5) was constructed and mainly composed of the several scenarios generate by computer simulations for estimating metal concentration from mine leachate that could contaminate groundwater environment underneath the TSF. For this, we focused on estimating the maximum metal concentration and time for heavy metals travel to groundwater table below under various water saturation conditions. Once heavy metals desorbed from tailing soil, they moved through pores as rainwater infiltrated through the soil. Metals in the tailing soil could dissolve in the percolating water and move vertically to the water table. Metal contaminant fluxes were assumed to be steady and estimated based on 2 year data of pumping rate of seepage wells under the TSF. The final estimated Darcy flux in 2004-2005 was 0.011 mm/day with the maximum of 0.17 mm/day.

Figure 6 Effects of variable soil moisture content on transport and migration of multiple component heavy metal in unsaturated zone.

The computer simulation using HYDRUS-2D revealed the results of variation in water saturation to the migration of multiple component metals in saturated zone as shown in Figure 6 below. The figure is plotting moisture content in soil (y-axis) versus time to reach the required metal concentrations (x-axis) at different depth from surface. Since water table in Akara mine area was approximately 6 meters below the surface as stated earlier, the simulation was done at different depth from ground surface with 1 meter increment (i.e., from 1 m to 5 m below the surface). The results indicated transport and migration of multiple component heavy metals in unsaturated zone depended on soil water content. Take Zn at pH 4 at depth 1 m below the surface for example, with increasing soil water content by 25% (from around 0.3 to more than 0.4), it took two order of magnitude longer for Zn to pass through the soil matrix to reach a certain concentration at a certain depth in the environment.

When comparing between different metal species (i.e., Zn and Pb), the simulation results indicated that Zn travelled faster in laterite soil compared to Pb, leading to a much shorter time required to reach a certain metal concentration at a specific depth in subsurface. This result

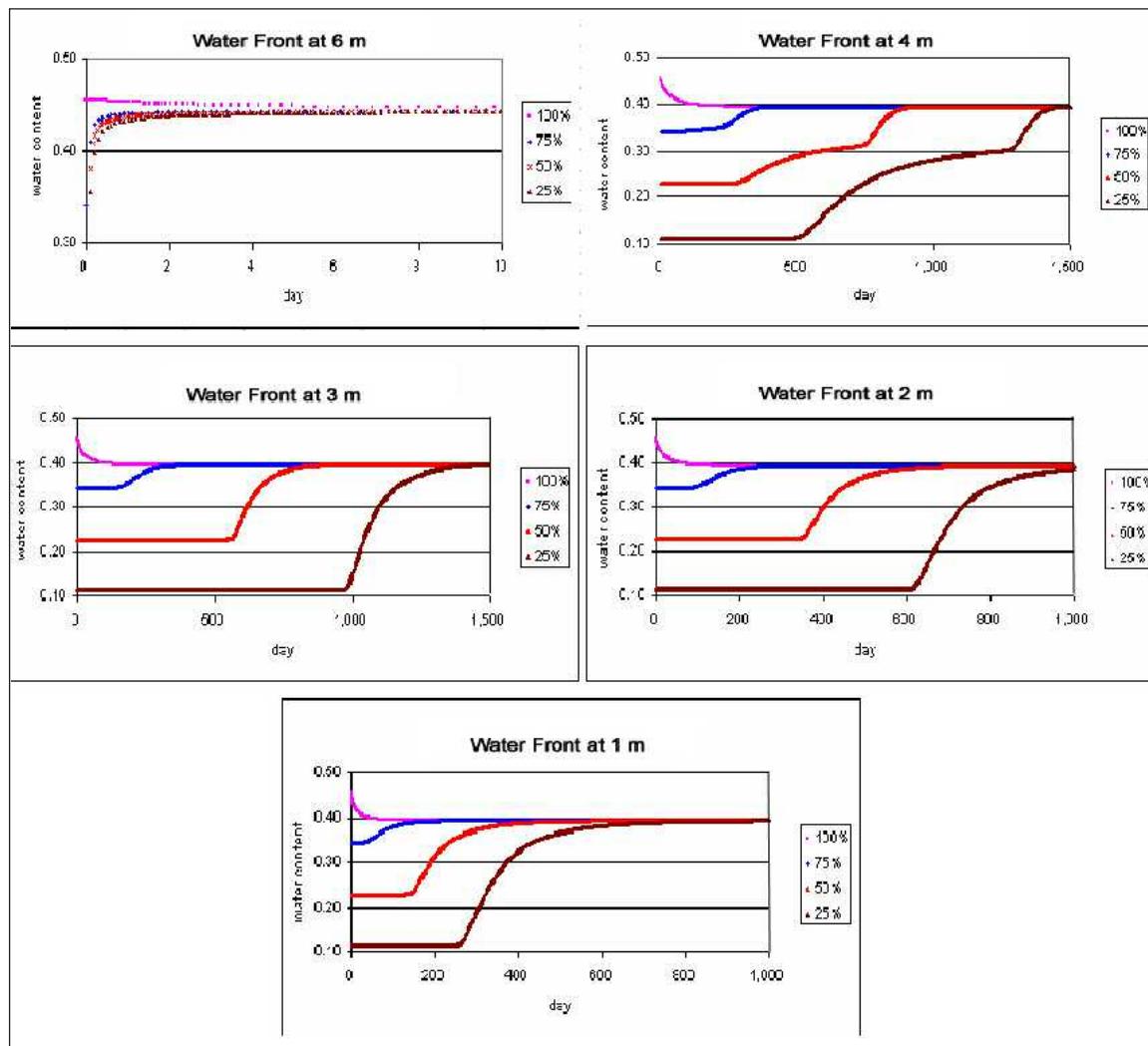


Figure 7: Effects of variable soil moisture content on transport and migration of multiple component heavy metal in unsaturated zone

supported the observation from batch experiments described earlier since the sorption capacity of that of Pb was higher than that of Zn.

Water fronts at each depth under various soil moisture content conditions were plotted in Figure 7. The figure is plotting final water content (y-axis) as a function of time (x-axis) under various initial soil moisture contents. The results in Figure 7 demonstrated that increasing initial soil moisture content led to the early arrival of water front at each depth. Furthermore, at the same initial soil water saturation, the time required to reach a certain final soil moisture content in the unsaturated zone depended mainly on the location in the vertical direction of the domain. Let's take the system with initial soil moisture content of 50% of its maximum value as an example here, the results in Figure 7 demonstrated that it took 600 years and 400 years at depth 4 m and 3 m from the ground surface, respectively, in order for the final water content in soil to get up to the value of 0.3. Moreover, the water front profile at 6 m deep did not really respond to the change in initial water content as can be seen from flat water front profiles simulated by the model.

Discussions and Conclusions

In Akara mining process, the oxidation stage produces acidic water which favors release of heavy metals from the mineralized zone mainly including lead (Pb), copper (Cu), iron (Fe), manganese (Mn), and zinc (Zn). The mechanism for the release is believed to be due to the infiltration of fresh water from surface to the tailing pit creating oxidation environments which causes the release. Once the release occurs, water containing heavy metals can migrate further downward, and eventually can contaminate the groundwater supply underneath. In this paper, an attempt to investigate the effects of soil moisture content on the transport and migration of multiple component heavy metals in unsaturated laterite soil is reported. The evaluation processes started with studying the desorption of heavy metal components from tailing soil collected from Akara mine area due to infiltrating water. For this the effects of pH on desorption of heavy metals were focused. The results in Figure 2 demonstrated that decreasing in pH led to a significantly release of heavy metals into the environment, suggesting that under acidic mine drainage conditions found at Akara mine area could promote more mobility of multi-component heavy metals. This observation may be explained by the competition between metal anions and proton in the aqueous solution at low pH conditions, resulting in smaller fractions of heavy metals can be sorbed onto adsorbent surfaces. In addition, the presence of inorganic anions such as carbonate, phosphate, and sulfide in the soil water can influence the soil's ability to fix metals chemically (Diatta, 2002). These anions can form relatively insoluble complexes with metal ions and cause metals to desorb and/or precipitate in their presence.

Next the adsorption parameters of multiple component heavy metals onto laterite soil were studied. The sorption isotherm is extremely important in assessing the mobility of dissolved and sorbed chemicals, including heavy metals, in soil environments. Analysis of the adsorption data shown in Figure 4 by employing a well-documented adsorption isotherm theory, which states that the pollutant uptake per unit weight of adsorbent (i.e., soil matrix) to the equilibrium adsorbate (i.e., heavy metals) concentration in the bulk phase, demonstrated that sorption isotherms of Zn and Pb fit the Freundlich adsorption model. Let's recall that Freundlich isotherm (Spositos, 1981) can be given by Equation 1 below.

$$Q = K_F C_e^{\frac{1}{n}} \quad [1]$$

Where KF and n are Freundlich constants and commonly employed for modeling adsorption characteristics of adsorbates in the environment.

After applying Freundlich isotherm model in the system with multiple heavy metal components, adsorption parameters K_F and n were calculated under different pH conditions and tabulated in Table 4. For the purpose of comparison between model and data observations, the correlation coefficient R^2 for each case was also listed in the table.

Heavy metals	pH	K_F	n	R^2
Pb	4	20.08	1.22	0.99
Zn	4	1.44	1.91	0.77
Zn	7	140.38	0.91	0.99

Table 4 : Freundlich adsorption isotherm parameters for Zn and Pb under different pH conditions

The relatively high correlation coefficient R^2 values in most cases observed from this study indicated that transport and migration of heavy metals in unsaturated zone was governed mainly by their sorption capacity and/or

other immobilizing mechanisms such as precipitation. The Freundlich isotherm parameters tabulated in Table 3 were the outcome of well-established linear relationships of $\log Q$ versus $\log C_e$ (C_e : equilibrium concentration and Q : amount of sorbed phase concentration).

The analysis of water fronts profile at each depth under various initial soil moisture content conditions (Figures 6 and 7) revealed that the wetter the laterite soil in the environment was the more heavy metal mobility we should expect. The simulation of water fronts at 6 m deep from ground surface did not illustrate the effects of initial soil water contents at all due to the presence of water table that is located around 6 m deep into the ground. The presence of groundwater table would make the system into saturated conditions, and soil moisture contents would reach its saturated condition rather quickly no matter what the initial soil moisture contents were. More importantly, the results in Figure 7 indicated that initial soil moisture content affected the water front profile of the system more significantly at the shallow depths. In addition, the flatter slopes of the plots between final water contents versus time to reach a certain metal concentration with increasing depth also responded to the previous comment that initial soil moisture contents did greatly affect the mobility of multi-species heavy metals in the shallow unsaturated zone. This shallow depth zone is known for the biological and vegetation root uptake activities to take place, therefore may yield a potential for toxic heavy metals to be removed from the subsurface environment via biodegradation and biosorption (Minamisawa et al., 2004). On the other hand, the return of heavy metals to surface via vegetation root uptake may raise an alarm to public health concern regarding the accumulation of heavy metals in agricultural products. This study thus provides a basis for understanding the possible application of bioremediation and phytoremediation to remove multiple component heavy metals in subsurface environment, where there has been interest in the use of natural plants in treating heavy metal polluted effluents during the past two decades (Schneider and Rubio, 1999).

References

- Benyahna L., and J-M Garnier (1999) Effect of Salicylic Acid upon Trace-Metal Sorption (CdII, ZnII, Coll, and MnII) onto Alumina, Silica, and Kaolinite as a Function of pH. Environmental Science and Technology 33: 1398-1407.
- Bowers, AR Adsorption Characteristics of Various Heavy Metals at the Oxide-Solution Interface: Effect of Complex Formation. Ph.D. Thesis, University of Delaware, 1983.
- Chen, X, JV Wright, JL Conca, and LM Peurrung (1997) Effects of pH on Heavy Metal Sorption on Mineral Apatite. Environmental Science and Technology 31: 624-631.
- Dalang, F, J. Buffle, W. Haerdi (1984) Study of the Influence of Fulvic Substances on the Adsorption of Copper (II) Ions at the Kaolinite Surface. Environmental Science and Technology 18: 135-141.
- Diatta JB (2002) Evaluation of adsorption parameters and charge densities of some selected soils:

application to lead. *Journal of Polish Agricultural Universities* 5: 40-50.

- Dzombak, DA, Moel, FMM Surface Complexation Modeling Hydrous Ferric Oxide; Wiley-Interscience: New York, 1990.
- Hayes, KF, and JO Leckie In *Geochemical Processes at Mineral Surfaces*, Davis, JA, Hayes, KF, Eds; ACS Sym. Ser. 323; American Chemical Society: Washington, DC, 1986; pp 114-141.
- Ma, QY, SJ Tralna, TJ Logan, and JA Ryan (2004) Effects of Aqueous Al, Cd, Cu, Fe(II), Ni, and Zn on Pb Immobilization by Hydroxyapatite. *Environmental Science and Technology* 28: 1219-1228.
- McConnell, D. *Apatites: Its Crystal Chemistry, Mineralogy, Utilization, and Geologic and Biologic Occurrences*; Springer-Verlag: Berlin, 1973.
- Meng, X, and RD Letterman (1993) Modeling Ion Adsorption on Aluminum Hydroxide-Modified Silica. *Environmental Science and Technology* 27: 1924-1929.
- Minamisawa M, H Minamisawa, S Yoshida, and N Takai (2004) Adsorption Behavior of Heavy Metals in Biomaterials. *Journal of Agricultural and Food Chemistry* 52: 5606-5611.
- Schneider, IAH, and J Rubio (1999) Sorption of Heavy Metal Ions by the Nonliving Biomass of Freshwater Macrophytes. *Environmental Science and Technology* 33: 2213-2217.
- Spositos, G (1981) *The Thermodynamics of Soil Solutions*. Oxford University Press, Oxford.
- Um, W, and C Papelis (2004) Metal Ion Sorption and Desorption on Zeolitized Tuffs from the Nevada Test Site. *Environmental Science and Technology* 38: 496-502.
- Wright, J. In *Skeletal Biomineralization: Patterns, Processes, and Evolutionary Trends*. Volume I; Carter, J.G., Ed.; Van Nostrand Reinhold: New York, 1990, pp 445-459.

DARCY 97

Etude hydrogéologique de la partie ouest du Causse de Sauveterre (France)

Bernard BLAVOUX ¹, Stéphane BRUSSET ², Laurent BRUXELLES ³,
Laurent DANNEVILLE ⁴, Michel LEPILLER ⁵, Alain MANGIN ⁶, Pierre MARCHET ⁷

1 Université d'Avignon, Laboratoire d'hydrogéologie, Faculté des Sciences,
33 rue Louis Pasteur 84000 Avignon (France) - bernard.blavoux@univ-avignon.fr

2 Laboratoire des Mécanismes et Transferts en Géologie, UMR 5563 UR 154 CNRS
Université Paul-Sabatier IRD, 14, avenue Edouard Belin - 31400 Toulouse (France) -
stephane.brusset@lmtg.obs-mip.fr

3 INRAP et UMR 8555 «Centre d'Anthropologie» - ZA des Champs Pinsons - 13 rue du négoce -
31650 Saint-Orens-de-Gameville (France) - laurent.bruxelles@inrap.fr,

4 Parc Naturel Régional des Grands Causses, 71 Bd de l'Ayrolle, BP 126 12101
Millau Cedex (France) - laurent.danneville@parc-grands-causses.fr

5 Polytech'Orléans - Ecole Polytechnique de l'Université d'Orléans, 8, rue Léonard de Vinci, 45072
Orléans Cedex 2 (France). Institut des Sciences de la Terre d'Orléans, U.M.R. 6113 CNRS -
Université d'Orléans - michel.lepiller@univ-orleans.fr

6 Laboratoire Souterrain du CNRS, 09200 Moulis (France) - mangin@lsm.cnrs.fr

7 Agence de l'Eau Adour-Garonne, 90 rue du Féretra 31078 Toulouse Cedex (France) -
pierre.marchet@eau-adour-garonne.fr

Abstract

A hydrogeological study was carried out on the whole west part of the Causse de Sauveterre (France) by the Parc des Grands Causses.

Geochemistry, geomorphology, tectonics, and of course quantitative hydrogeology brought many results for a comprehensive approach of this territory, in order to allow the implementation of the mandatory protection perimeters for drinking water resources.

Résumé

Dans le cadre de la protection et de la gestion patrimoniale de la ressource en eau, une étude hydrogéologique a été menée, sous l'impulsion du Parc naturel régional des Grands Causses, sur une unité karstique cohérente : le Causse de Sauveterre dans sa partie ouest (Causse de Séverac, Causse du Massegros et ses avant-causses).

Différents spécialistes ont apporté leur contribution à une approche pluridisciplinaire.

La détermination des bassins d'alimentation des sources importantes a ainsi impliqué la géologie (stratigraphie, analyse structurale et micro-structurale : plans de drainage), la géomorphologie (formes karstiques de surface), dont les résultats ont été confrontés avec les éléments fournis par le bilan hydrologique, l'hydrochimie sur la nature du réservoir et les traçages.

les mêmes disciplines ont été mises en oeuvre pour la connaissance de la structure et du fonctionnement des systèmes karstiques et de l'importance de la ressource exploitable au moyen de l'analyse :

- des chroniques de débits (distributions des débits classés fournissant des indices de présence de pertes, de trop pleins et de réserves ; analyses corrélatoires et spectrales et par ondelettes permettant l'évaluation de l'effet mémoire, du temps de régulation et de l'hydrogramme unitaire), des crues, décrues et tarissements (analyse des hydrogrammes fournissant des valeurs de paramètres caractéristiques du fonctionnement de la zone d'infiltration et de l'importance de

la zone noyée), ...

- des données hydrochimiques (amplitude des variations, distribution des fréquences de conductivités et des éléments majeurs marqueurs géologiques et marqueurs anthropiques, analyses en composantes principales, utilisation des concentrations de silice comme indice de remplissage détritique ; temps de séjour de l'eau dans le système...)
- de la géologie (lithologie, variations de faciès, géométrie du réservoir, densité et directions préférentielles de la fracturation, remplissage des cavités karstiques)
- de la géomorphologie
- des traçages et en particulier de l'analyse des caractéristiques du transit des traceurs (quantité de traceur restituée, temps de séjour et vitesse du transit, forme de la distribution des temps de séjour , informations fournies par l'évaluation de la section apparente des drains et des volumes d'eau tracés et écoulés avant le début de la restitution)

L'incidence des activités humaines, évaluée à partir de la détermination des activités polluantes existantes ou potentielles (domestiques, agricoles, industrielles, routières, décharges habilitées ou sauvages...) a été croisée avec l'analyse des données hydrochimiques, celle des formations superficielles et les résultats hydrogéologiques (caractéristiques de la zone d'infiltration, degré de karstification, caractéristiques du transit fournies par les traçages).

Cela a conduit à une carte simplifiée de vulnérabilité constituant un outil d'aide à la décision pour l'aménagement du territoire. Des propositions de zones de protection ont été formulées pour la mise en place des périmètres de protection réglementaires des sources captées pour l'alimentation humaine, contribution qui fera partie du dossier soumis à l'avis de l'hydrogéologue agréé.

Des propositions sont également faites (aménagements, coûts..) afin de diminuer l'impact d'activités polluantes.

Introduction

Dans le cadre de ses missions qui sont notamment la protection, la préservation et la gestion du patrimoine naturel, le Parc naturel régional des Grands Causses s'attache à connaître et préserver la ressource en eau de son territoire. Après le nord-Larzac et le Causse Rouge, il a ainsi lancé cette nouvelle étude hydrogéologique d'envergure sur l'ouest du Causse de Sauveterre, qui s'inscrit dans une continuité visant à terme à la connaissance et la protection de tout son territoire.

L'Agence de l'Eau Adour-Garonne, la Région Midi-Pyrénées et le Ministère de l'Environnement lui ont apporté leur soutien financier pour la réalisation des deux objectifs conjoints de l'étude : la connaissance générale de la ressource, et l'acquisition des informations préalables nécessaires à la délimitation des périmètres de protection réglementaires des points d'eau potable qui captent certaines des sources du territoire étudié.

Pour répondre à ce double objectif, les thèmes abordés ont été :

- la détermination des bassins d'alimentation
- la connaissance du fonctionnement et de la structure des aquifères
- l'évaluation de la ressource en eau souterraine
- l'incidence des activités humaines et les mesures de protection

Les différentes techniques employées ont ainsi pu être avantageusement mises en œuvre à l'échelle d'une unité hydrogéologique cohérente.

Le secteur d'étude

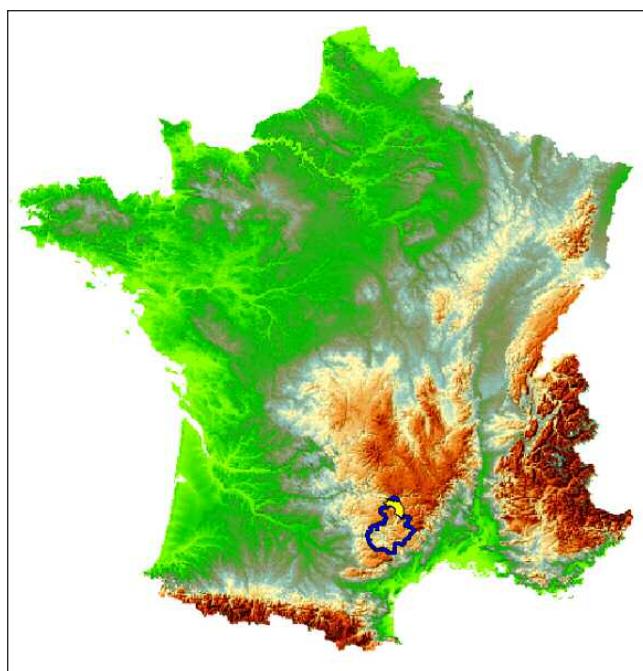


figure 1: Situation du territoire du Parc naturel régional des Grands Causses (bleu) et du secteur d'étude, le Causse de Sauveterre ouest (jaune) - © IGN

(400 km²) est composée du Causse de Séverac, Causse du Massegros et ses « avant-causses » liasiques. Elle intègre 23 communes, dont la plupart sont regroupées en syndicats intercommunaux d'adduction d'eau potable (SIAEP) ou à vocation multiple (SIVOM), tandis que quelques-unes exploitent directement leur captage (régie directe).

L'étude menée de 2003 à 2005 par le Parc des Grands Causses va permettre à ces différentes collectivités de disposer des éléments de connaissance nécessaires à l'hydrogéologue

agréé pour délimiter les périmètres réglementaires de protection des captages concernés. Elles pourront ainsi se mettre en conformité avec les obligations qu'impose le Code de la Santé Publique.

L'étude de la partie Est (hors Parc) est actuellement en cours, à l'initiative du Conseil Général de la Lozère. Le Parc des Grands Causses lui apporte un appui technique et assurera la synthèse des deux études.

Le territoire étudié comprend environ une centaine de sources (fig 4) dont les 18 plus importantes ont été équipées de stations de mesure et d'enregistreurs durant l'étude, les

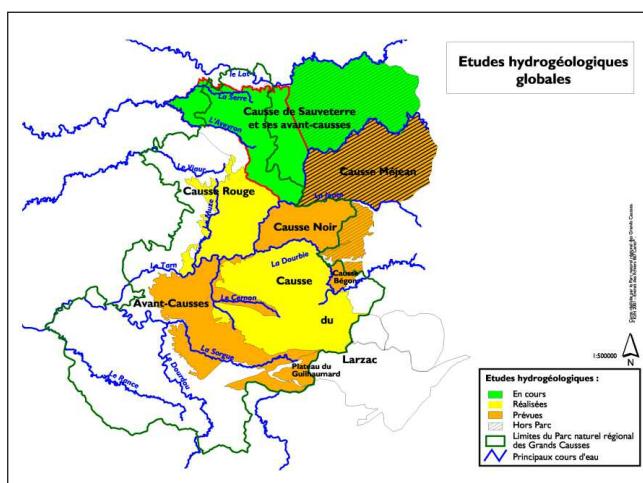


Figure 2 : Les principales unités naturelles des Grands Causses et le territoire du Parc

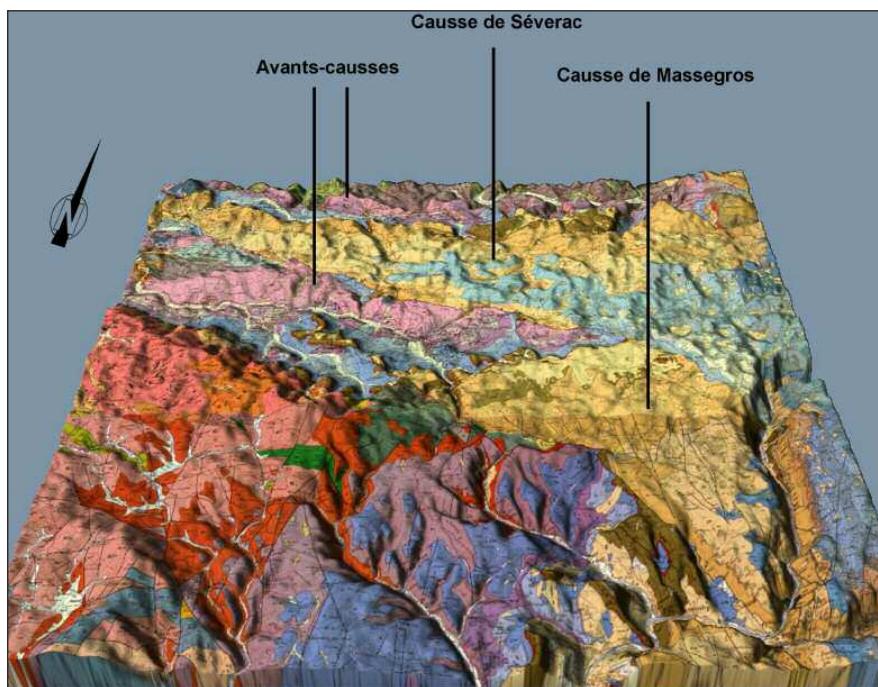


Figure 3 : Contexte géologique et géomorphologique global de la zone étudiée

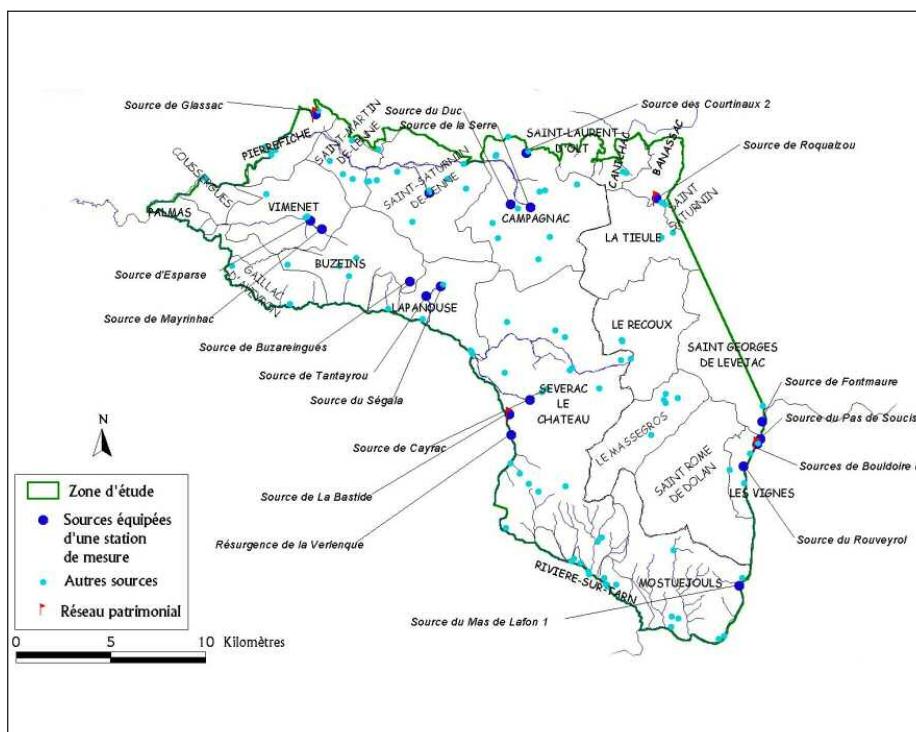


Figure 4 : les sources du Causse de Séverac ouest

gences en bordure de la zone d'étude.

La coupe hydrogéologique (fig. 5) des Grands Causses montre deux séries aquifères, supérieure et inférieure, séparées par les marnes du Lias. L'unité inférieure repose par l'intermédiaire du Trias sur le substratum granitique et schisteux réputé imperméable.

La série aquifère inférieure correspond aux formations calcaires et dolomitiques du Lias

autres ont été jaugées ponctuellement (hautes eaux, basses eaux).

Les aquifères concernés

Ils sont divisés en systèmes karstiques avec des apports directs uniquement par les pluies à la surface des sols (systèmes unaires) et des limites à potentiel (ou niveau de base) représentées par le Lot et le Tarn, où les eaux sont ensuite drainées vers les nombreuses résur-

(Hettangien-Sinémurien). Quatre des sources étudiées sortent de cet aquifère. Le niveau réputé imperméable (marnes supraliasiques), pourrait localement permettre des communications, par amincissement de la série ou à la faveur des failles. L'aquifère supérieur correspond aux formations calcaires et dolomitiques de l'Aalénien au Portlandien. Son drainage est assuré par des émergences localisées au contact des marnes (karst perché) et en bordure des cours d'eau principaux.

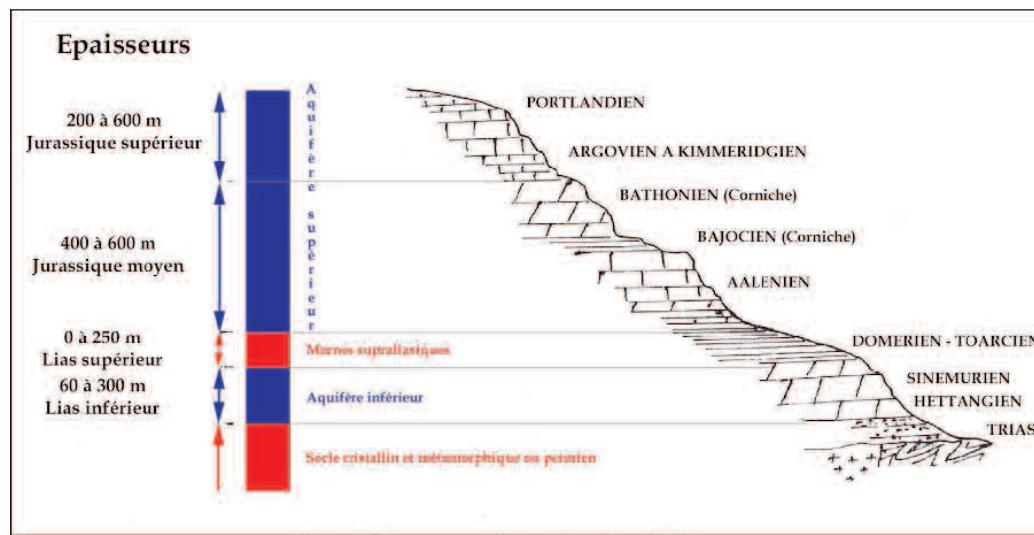


figure 5 : coupe typique des Grands Causses

Détermination des bassins d'alimentation

Dans le karst, les écoulements souterrains actuels ne correspondent pas forcément aux limites topographiques des terrains, reliques d'une morphologie fluviatile ou fluvio-karstique antérieure.

Une première analyse des bassins versants topographiques à partir du Modèle Numérique de Terrain a été comparée aux données issues des débits mesurés aux sources.

Deux campagnes de mesures ont permis de connaître les débits des sources secondaires sur le territoire d'étude. Ces mesures, couplées à celles des 18 stations hydrométriques, permettent de calculer les débits sortants des massifs karstiques (Causse de Sévrac, Causse du Massegros, Avants-Causses) et d'estimer la superficie des bassins hydrogéologiques par zones aquifères principales (lias et dogger), étant donné que toutes les sorties sont, à priori, connues.

Afin d'écartier la part liée à la variation de réserve, un bilan hydrologique a été effectué sur deux cycles hydrologiques (2002-2003 et 2003-2004) pour les stations hydrométriques principales, afin de mieux apprécier les limites des bassins d'alimentation des sources karstiques principales.

Grâce aux débits mesurés sur l'ensemble des sources, une évaluation des superficies a été effectuée.

Deux grands bassins, celui de la Serre et celui de Cayrac ne sont pas en adéquation avec les débits mesurés à la source. Les bassins hydrogéologiques sont nettement moins grands en superficie.

Cette méthode a aussi permis de mettre en évidence d'éventuels apports profonds d'eaux souterraines pour les sources de Tantayrou et Buzareingues. En effet, la superficie des bassins d'alimentation sur la partie liasique ne permet pas non plus d'expliquer les débits à l'exu-

toire. Ces apports profonds peuvent être estimés à 75 % pour Tantayrou et 40 % pour Buzareingues.

Les différences entre les superficies estimées par le bilan aux exutoires et l'analyse du MNT ne permettent pas pour autant de positionner précisément les limites des bassins d'alimentation actuels, élément essentiel de la protection.

Le premier outil pour cela est le résultat des plus de trente traçages réalisés durant l'étude, mais qui laissent, comme on le voit sur l'exemple de la figure 6, des interrogations dans les zones dépourvues de résultats. Pour les traçages, il est en effet toujours difficile de trouver partout des points d'injection, les conditions climatiques ne sont pas forcément favorables, et le temps et les moyens dévolus à une étude sont toujours limités.

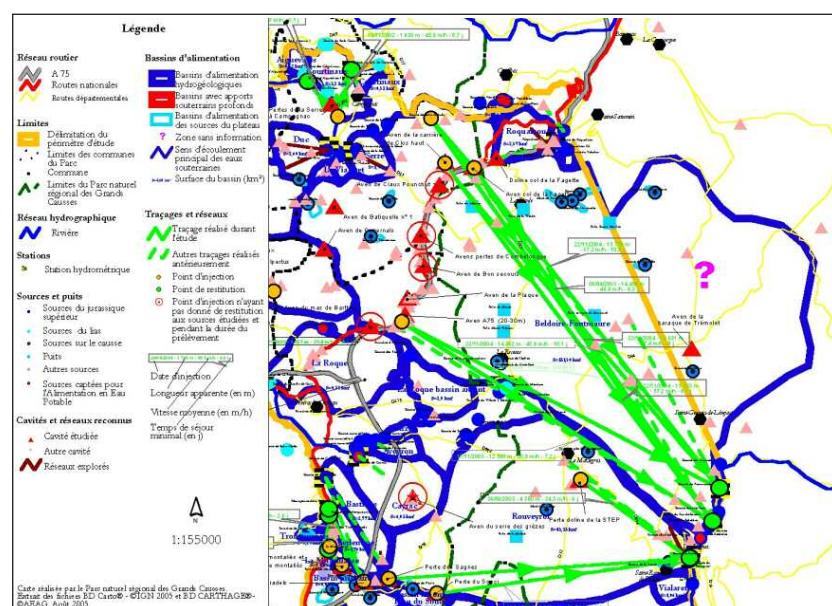


Figure 6 : limite du bassin d'alimentation des sources du Système Beldoire-Fontmaure

queurs chimiques naturels géologiques, et donc de soupçonner, confirmer ou exclure des parties de bassin d'alimentation. Par exemple :

- le rapport molaire Ca/Mg est un bon indicateur du pourcentage des roches dolomiques dans le système karstique. Compris entre 1 et 2 il indique un milieu essentiellement dolomitique, supérieur à 8 un milieu calcaire alors que deux groupements intermédiaires sont observés indiquant la prédominance des calcaires (entre 5 et 7) et un partage entre calcaires et dolomies (entre 2,5 et 4). Les rapports faibles sont typiques des eaux issues des dolomies, qui sont celles du Lias, à quelques rares exceptions (terminaison Sud-Est du Causse de Massegros où affleurent les dolomies du Kimméridgien et bordure du Causse de Sauveterre quand affleurent les dolomies brunes du Bajocien).
- les fortes valeurs relatives en silice dissoute supérieures à 12 mg/l dans un contexte de teneurs faibles comprises entre 3 et 16 mg/l résultent de la présence sur le bassin versant de formations superficielles spécifiques. Ce sont les épandages allochtones en provenance des terrains siliceux ante-triasiques du massif ancien du Lévezou au Sud et à l'Ouest de la zone d'étude ainsi que les accumulations d'argiles à chailles dans les dépressions des calcaires et dolomies du Bajocien-Bathonien.

On peut également citer un résultat intéressant par son aspect démonstratif, issu de l'autre partie du suivi géochimique, le suivi mensuel des 18 sources principales.

Pour apporter la meilleure précision possible, l'ensemble des éléments acquis dans les différentes disciplines ont donc été utilisés. Nous nous limiterons ici à quelques exemples.

Exemples d'apports de la géochimie

Deux campagnes exhaustives d'analyses sur tous les points d'eau (80 à 90 sources) ont été réalisées, à l'étiage en juin 2003 et en moyennes-hautes eaux en mai 2004. Ces analyses ont notamment permis de caractériser les mar-

Pour les deux sources de Tantayrou et de Buzareingues, les résultats issus de la comparaison du bilan hydrologique avec les bassins versants topographiques montraient des anomalies. Le suivi géochimique apporte la confirmation de l'origine des eaux de la source de Tantayrou, dont la température la plus élevée de toutes (12,7 °C en moyenne, supérieure de près de 1,8 °C à celle des sources de même altitude), indique un circuit terminal remontant assez profond. Cette température est très constante. Alors que Buzareingues a une teneur en bicarbonates élevée de 340 mg/l, identique à celles du Lias du rebord Nord de l'Avant-Causse, celle de Tantayrou a une teneur de 281 mg/l seulement, la plus faible des sources du suivi. Elle ressemble beaucoup en cela à la source de Cayrac présentant la même minéralisation principale, mais issue du Dogger.

Ainsi donc, si Buzareingues est bien largement alimentée par les dolomies de l'Hettangien qui affleurent vers l'ouest, la source de Tantayrou en situation captive pourrait être alimentée par des remontées depuis le Dogger affaissé dont les affleurements se situent à l'Est et au Nord sur la bordure du Causse de Sauveterre. Il est important de voir comment les failles du réseau des Vignes présentes au Sud et au Nord du site pourraient engendrer une telle situation.

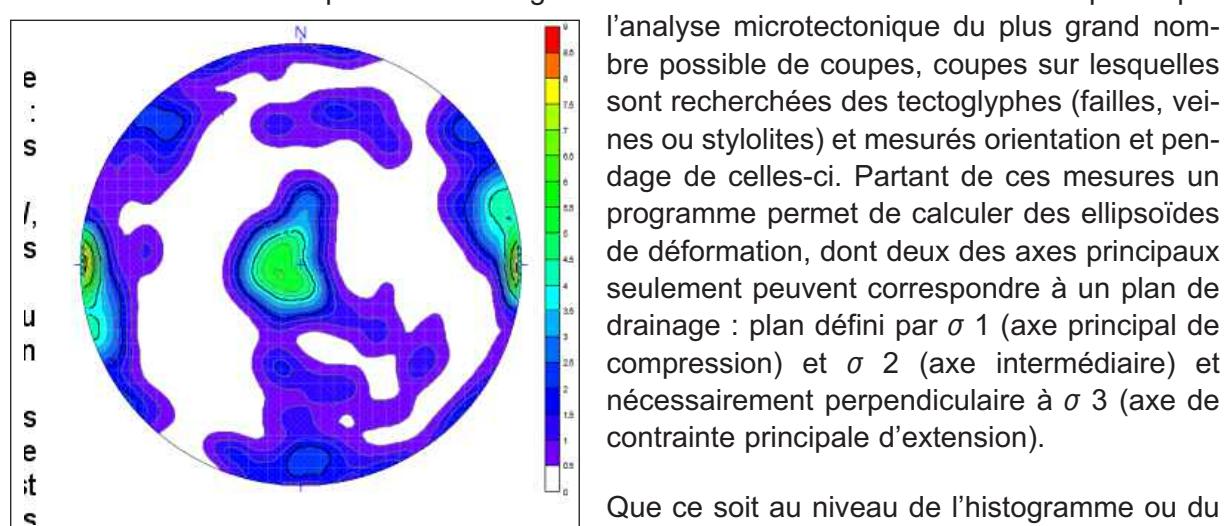
Ces deux sources sont exemptes de pollution anthropique par les chlorures et nitrates et présentent des teneurs en deçà du seuil des teneurs naturelles. Toutefois la source de Buzareingues enregistre une hausse sensible en octobre et novembre, des chlorures et des nitrates et en hautes eaux, d'octobre à janvier, de fortes valeurs relatives en potassium qui est le marqueur du Lias. Ces petits pics sont aussi observés à Tantayrou ce qui fait penser à un mélange des eaux remontant par faille depuis le Dogger avec des eaux du Lias en surface. On confirme ainsi l'anomalie du bilan hydrologique, et son caractère plus marqué dans un cas (apports profonds estimés à 75 % pour Tantayrou et seulement 40 % pour Buzareingues).

Exemples d'apports de la géologie structurale

Les contraintes tectoniques responsables des grands accidents régionaux observés ont aussi induit une fissuration des roches calcaires, dont le comportement est cassant sous la contrainte. Cette fissuration a eu pour conséquence la création de plans de drainage, à l'origine de la perméabilité de ces roches. L'expérience indique que l'organisation spatiale de tels plans et la perméabilité qui en découle sont très généralement anisotropes (existence de directions préférentielles de drainage). Il importe donc de bien caractériser cette organisation si l'on veut comprendre comment peut s'effectuer la circulation des fluides dans les masses calcaires.

La reconnaissance des plans de drainage et la caractérisation de leur orientation passe par l'analyse microtectonique du plus grand nombre possible de coupes, coupes sur lesquelles

sont recherchées des tectoglyphes (failles, veines ou stylolites) et mesurés orientation et pendage de celles-ci. Partant de ces mesures un programme permet de calculer des ellipsoïdes de déformation, dont deux des axes principaux seulement peuvent correspondre à un plan de drainage : plan défini par σ_1 (axe principal de compression) et σ_2 (axe intermédiaire) et nécessairement perpendiculaire à σ_3 (axe de contrainte principale d'extension).



Que ce soit au niveau de l'histogramme ou du stéréogramme on constate l'existence de deux

grandes familles de direction :

- une famille quasi N-S, correspondant à des plans verticaux ;
- une famille d'orientation approximativement E-W, correspondant à des plans verticaux ou beaucoup plus obliques.

Deux directions privilégiées devraient donc se manifester au niveau de la perméabilité : E-W et N-S, ce que la distribution des sources autour du massif confirme pleinement.

Cependant, l'hétérogénéité de la lithologie (calcaires entrecoupés de marnes) pourrait aussi exercer un contrôle sur les écoulements. L'influence de cette hétérogénéité est certainement négligeable pour les écoulements guidés par les fractures verticales, quelle que soit la direction de celles-ci ; mais il pourrait ne pas en être de même pour les fractures obliques, qui ne se trouvent être associées qu'à la direction E-W. Des écoulements latéraux préférentiels selon cette direction sont donc possibles au niveau de certaines discontinuités lithologiques; ceci d'autant plus que le creusement des gorges du Tarn à l'Est du plateau n'a pu que favoriser le phénomène.

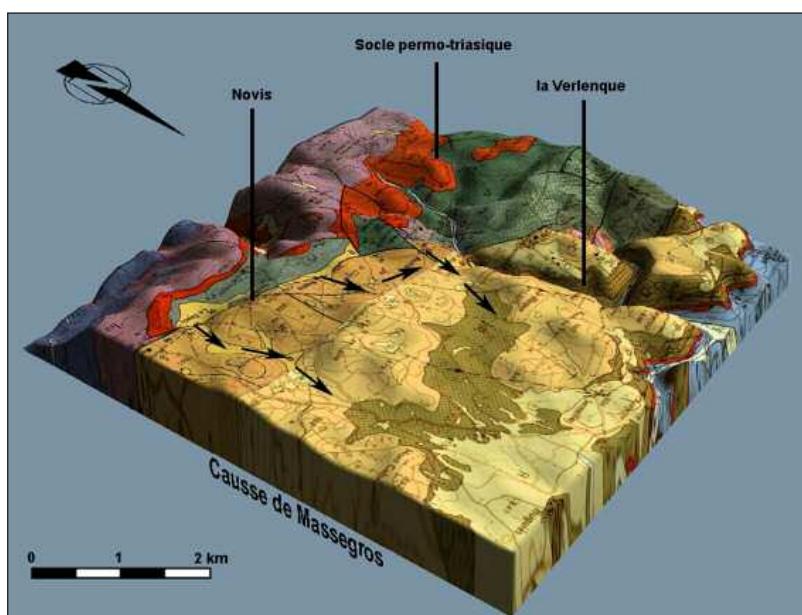


Figure 8 : Vallons fluvio-karstiques prenant leur source sur les terrains permo-triasiques

Exemples d'apports de la géomorphologie

Les vallons fluvio-karstiques du Causse de Massegros se situent tous dans la partie occidentale du Causse, en aval du contact avec les formations permo-triasiques (fig. 8). Ce système de vallées prend donc sa source sur les niveaux imperméables au sud de la faille des Palanges et se dirige en direction du nord. On retrouve dans ces vallées des fragments de grès triasiques ainsi que des pélites permianes qui confirment

bien leur fonctionnement en relation avec l'amont imperméable.

Ces vallées sèches sont en grande partie fossiles. Avec un amont tronqué, elles n'ont plus la possibilité de conserver un cours aérien. Seule la vallée de la Verlenque a pu conserver un écoulement et inciser l'entablement des causses au fur et à mesure de l'abaissement du niveau de base. Ceci a été possible car son bassin-versant amont n'a pas encore été capturé par les vagues d'érosion régressive déclenchées par le creusement du Tarn. Des poljes de bordures se sont alors développés, profitant de la zone broyée de la faille des Palanges et de l'abondance de matériel érodé sur les versants permianes. Enfin, le drainage hypogé de ce secteur vers la source du Rouveyrol matérialise bien la capture progressive de ces écoulements vers le Tarn alors qu'ils alimentaient à l'origine le bassin-versant de l'Aveyron.

Dans la plupart des cas les positions exactes des limites ne peuvent pas être connues de façon rigoureuse, malgré l'emploi des différents outils. Aussi, ce sont des limites de bassin assez épaisse qui ont été mises en place (zones d'incertitude), parfois de 500 m de largeur.

Connaissance du fonctionnement et de la structure des aquifères

Apports de l'étude des débits

Les données de débit ont été acquises sur les 18 sources principales sur au moins deux cycles hydrologiques (cycles 2002-2003 et 2003-2004). On citera deux exemples d'analyse :

- Le rapport $Q_{j \text{ max}}/Q_{j \text{ min}}$ est indicateur d'une régulation et de la karstification. C'est la source de Cayrac qui possède le rapport le plus bas (3), signe d'une karstification peu développée et/ ou d'une régulation des débits importante. A l'inverse, on trouve des rapports supérieurs à 100, indice d'une karstification prononcée, pour les sources Courtinaux, Roquaizou, Serre, Lestang et Verlenque.
- Le corrélogramme croisé, dans le cas où la fonction d'entrée peut être considérée comme aléatoire (cas de la pluviométrie), représente la réponse impulsionale du système (ou hydrogramme unitaire).

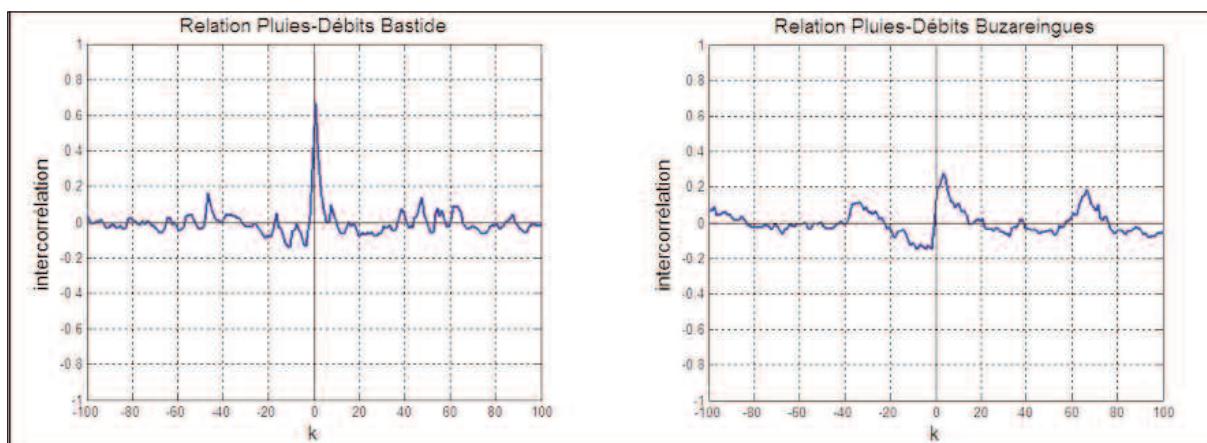


Figure 9 : corrélogrammes croisés pluie-débits

On peut distinguer deux types de réponses : la première très aigüe et peu étalée correspondant à des écoulements rapides, donc à des aquifères bien karstifiés. La seconde plus étalée, avec une pointe moins haute, où les aquifères seraient moins bien karstifiés. (cf exemples fig. 9).

Les différentes analyses effectuées sur les séries chronologiques de débits des 18 sources permettent d'acquérir des informations précises sur le fonctionnement des aquifères qu'elles drainent.

Globalement toutes les sources présentent dans leur comportement une forte parenté : les réponses en général indiquent une assez bonne réponse à la pluie, indice d'une karstification développée, mais avec une traîne qui indiquerait la présence de réserves non négligeables. Il est cependant possible, en partant des différents critères examinés, de distinguer deux groupes. Ces critères sont la forme des réponses impulsionales (corrélogrammes croisés) que ce soit à l'échelle journalière, mais de façon encore plus marquée à l'échelle semi-horaire, la répartition des composantes suivant le court et le long terme, la loi utilisée pour les débits classés et la comparaison des spectres.

Le premier groupe serait relativement bien karstifié, alors que le second le serait moins. La distinction entre ces groupes ne paraît relever ni d'un critère géologique, ni d'un critère pétrologique ni même d'une situation géographique particulière. Le critère de discrimination se rapporte à autre chose et c'est probablement l'histoire géomorphologique de ce secteur qui peut nous apporter une réponse. On constate que pour le groupe apparaissant comme le plus évo-

lué avec les écoulements les mieux organisés, la réponse semble composite (double réponse). Il est possible que le 2^e groupe possède un degré de karstification aussi développé que le premier groupe, mais il serait alors moins fonctionnel à cause du colmatage de la zone d'émergence (évolution géomorphologique récente).

Dans le comportement global de l'ensemble aquifère apparaît un autre point important, c'est la présence d'un niveau de base très bas constitué par la vallée du Tarn. Les sources sont réparties au nord et au sud du massif carbonaté et à l'est au niveau du Tarn.

- Pour les organisations au nord et au sud du massif de Sauveterre l'existence de plans de drainage orientés N-S justifie cette disposition. Comme ces plans sont verticaux on comprend que l'hétérogénéité lithologique ne joue aucun rôle. Il existe de plans de drainage avec une dispersion de plus de 36° suivant cette orientation.
- Pour les sources situées en bordure du Tarn là aussi existent de nombreux plans de drainage orientés suivant la direction de l'écoulement, donc le drainage des eaux dans cette direction est tout à fait possible. En revanche, ces plans sont pour la plupart faiblement inclinés. De ce fait l'écoulement se fera préférentiellement suivant certaines couches. L'aquifère à ce niveau risque d'être multicouches. Or, pour Fontmaure apparaît une composante semi-diurne due sans doute à la marée terrestre, indiquant qu'il existerait des conditions de captivité de l'aquifère, confirmant cet aspect multi-couches. Là aussi, la dispersion des plans de drainage suivant cette direction, s'effectue sur un éventail d'angles supérieurs à 36° (de 45 à 120°).

La mise en place d'un karst obéit à une loi fractale faisant apparaître des symétries d'ordre 5 ; et l'existence d'angles supérieurs à 36° entre deux principales directions d'écoulement a pour conséquence le développement de réseaux anastomosés et bien développés selon chacune de ces directions. Le karst de Sauveterre pourrait donc, éventuellement, présenter un double comportement hydrodynamique, que nous confirment l'analyse des débits, mais aussi les traçages.

Enfin au niveau du Tarn, les altitudes sont basses (395 m au Rozier), c'est à dire que le gradient hydraulique est maximal suivant cette direction. Dans ces conditions, à plus ou moins long terme, tous les écoulements du massif de Sauveterre prendront cette direction avec capture progressive des systèmes karstiques situés plus à l'Ouest. Ce mécanisme a commencé comme le montrent les traçages, mais surtout les valeurs des débits, puisque les sources les plus importantes sont Beldoire, Rouveyrol et Fontmaure.

Apports de la chimie des eaux

La concentration moyenne en HCO₃ des sources du karst de Sauveterre en étage (317 mg/l) est élevée par rapport aux concentrations connues sur d'autres régions karstiques, Jura (280 mg/l), Fontaine de Vaucluse (260 mg/l) et aussi le Larzac proche (250 mg/l). Des teneurs supérieures à 350 mg/l sont même atteintes pour les sources issues d'un réservoir dolomitique. Ces résultats indiquent des temps de séjour longs permettant d'approcher la saturation vis à vis de la calcite, et font donc penser à des circulations assez lentes dans un réseau de drainage moyennement développé.

Apports des traçages

Les vitesses apparentes déduites des distributions des temps de séjour (fig. 10) ne dépassent pas 100 m/h. Les valeurs les plus élevées ont été mesurées sur des systèmes traçages dont l'entrée est une perte fonctionnelle. On notera l'homogénéité des valeurs obtenues pour le système de Beldoire dans des conditions hydrologiques variées (très basses à moyennes

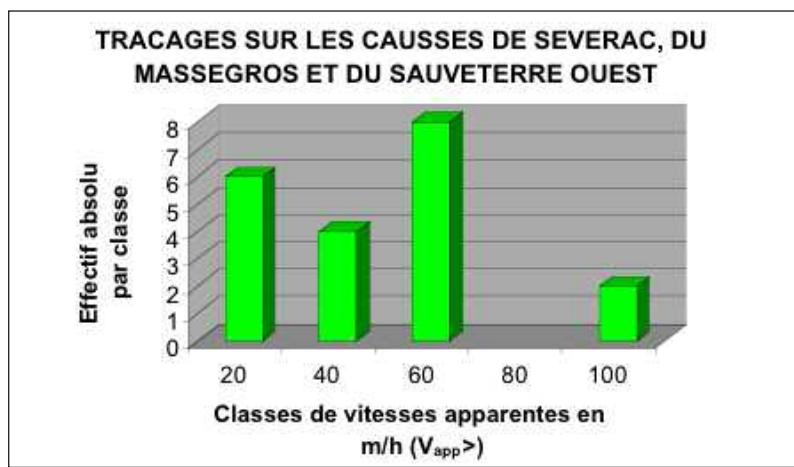


Figure 10 : Distribution des vitesses apparentes mesurées à partir des traçages

assez cohérentes (seule une faible partie des résultats est présentée ici).

Evaluation de la ressource en eau souterraine

Les résultats du calcul des *volumes dynamiques* montrent :

- Des volumes forts, supérieures à 1,5 Mm³ pour Beldoire et Cayrac impliquant la présence de réserves souterraines considérables;
- Des volumes compris entre 0,5 Mm³ et 1,5 Mm³ pour Bastides, Lestang, Mayrinhac, Ségala et Verlenque ;
- Des volumes plus faibles, inférieur à 0,5 Mm³ pour les autres sources.

Dans le but de comparer les systèmes karstiques en fonction des caractéristiques de leur zone d'infiltration et de leur zone noyée, les résultats de l'analyse des courbes de récession de 2004 ont été replacés dans la classification établie par A.Mangin. Cette classification fait appel à deux coefficients : k et i.

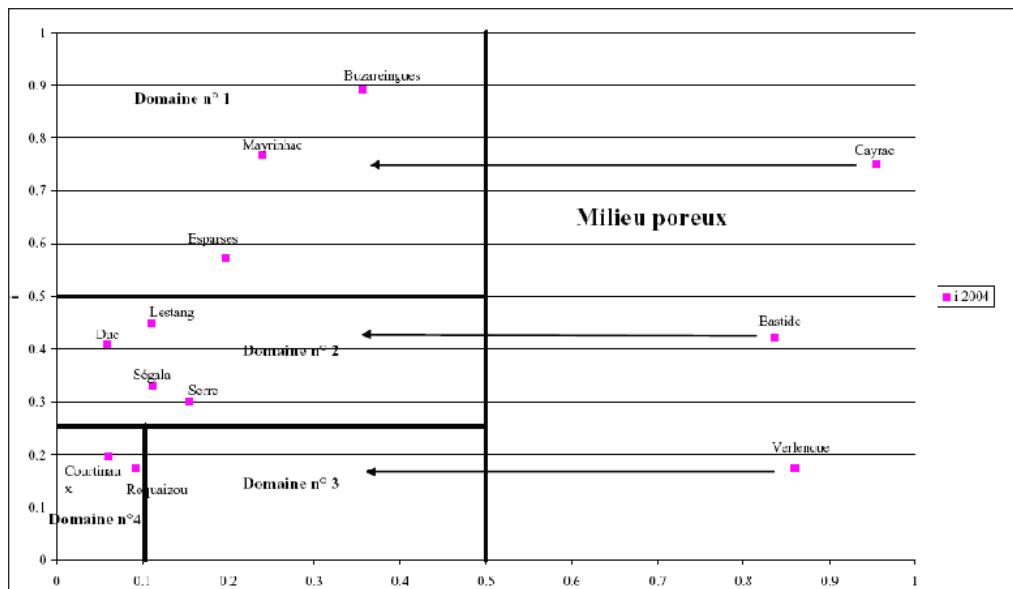


Figure 11 : position des systèmes karstiques étudiés dans la classification de Mangin

eaux) à partir de points d'injection diversement situés. Cette homogénéité et le niveau plutôt moyen des valeurs mesurées suggèrent l'existence d'un réseau de drainage moyennement développé et alimenté en permanence par de puissantes réserves.

Ainsi l'information acquise aux exutoires des systèmes karstiques (débits, chimie, traçages) apporte de nombreuses informations, globalement

- k traduit l'aptitude du système à stocker les précipitations et à les restituer. Plus ce pouvoir régulateur est élevé, plus le coefficient k tend vers 1. Cette dernière valeur représente le cas des aquifères poreux où le volume dynamique est quasiment égal au volume en transit. Dans le cas des systèmes karstiques, k est en général inférieur à 0.5 et une valeur proche de 0 traduit un pouvoir régulateur négligeable.
- i traduit les retards à l'infiltration. Une forte valeur de i est significative d'une infiltration lente ou de l'influence d'un aquifère épikarstique. Une valeur faible de i est le signe d'un transit rapide des eaux vers la zone noyée.
- Pour le domaine n° 4 correspondant à des systèmes karstiques très karstifiés en aval, domaine des réseaux spéléologiques très développés, on trouve les sources de Courtinaux et Roquaizou.
- Pour le domaine n° 2 correspondant à des systèmes plus karstifiés à l'amont qu'à l'aval, avec des retards à l'alimentation dus à des terrains non karstiques, on trouve les sources du Duc, Ségal, Serre et Lestang ;
- Pour le domaine n° 1 correspondant à des systèmes complexes, qui sont généralement les systèmes de grande taille et dont la structure est faite de nombreux sous-systèmes, on trouve les sources d'Esparses, Mayrinhac et Buzareigues.

En revanche, 3 stations se situent au-delà de $k=0.5$ (Verlenque, Bastide, et Cayrac). Ce sont des sources proches, issues de la partie Nord-Ouest du Causse de Massegros. Elles correspondent à des systèmes à comportement de milieu poreux avec un i croissant de Verlenque à Cayrac.

Ces résultats doivent être pris très prudemment car fonction du seul cycle 2004. L'analyse de plusieurs cycles hydrologiques permettra de confirmer ou d'inflimer cette classification.

Incidence des activités humaines et mesures de protection

L'apport des données hydrochimiques

Les campagnes exhaustives et tout particulièrement celle d'étiage ont permis de caractériser et de distinguer les marqueurs chimiques naturels géologiques, des éléments anthropiques introduits dans les systèmes karstiques par les activités agricoles et urbaines.

La répartition statistique des teneurs en chlorures montre que l'impact anthropique est perceptible au-delà du seuil de 4 mg/l hérité des seules précipitations efficaces. Les teneurs restent cependant faibles et l'impact anthropique n'est manifeste que pour les teneurs supérieures à 12 mg/l dont 5 échantillons dépassent 25 mg/l. Ces points se localisent à proximité d'un axe de communication et/ou d'une agglomération, indépendamment de la géologie.

Pour les nitrates, plus de la moitié des échantillons (51/92) présente des teneurs inférieures à 6 mg/l en NO_3 qui est le seuil au-delà duquel sont perceptibles les impacts de l'activité humaine (engrais, effluents d'origine animale ou humaine rejoignant les circulations karstiques via les stations d'épuration ou même directement). 5 sources seulement dépassent 25 mg/l et une seule 50 mg/l. Les teneurs excessives se localisent dans les dépressions liasiques des vallées de l'Aveyron et de la Serre (rebord de l'avant-Causse) qui sont des axes de communication avec urbanisation et des zones de culture.

La corrélation entre chlorures et nitrates (fig. 12) bien exprimée pour la campagne de hautes eaux et lors du suivi mensuel, n'est qu'à peine esquissée pour la campagne d'étiage. La croissance simultanée de Cl et NO_3 indique un impact des eaux usées d'origine humaine ou animale. Une évolution verticale traduit l'apport très majoritaire de chlorures résultant du salage

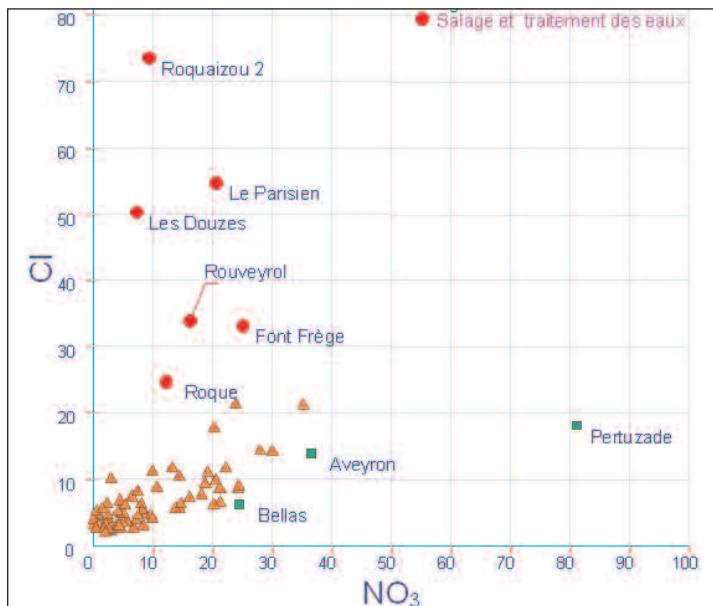


Figure 12 : corrélation chlorures-nitrates

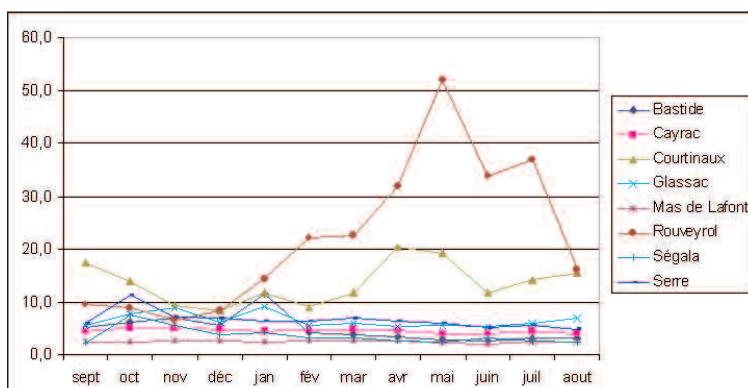


figure 13 : Chlorures

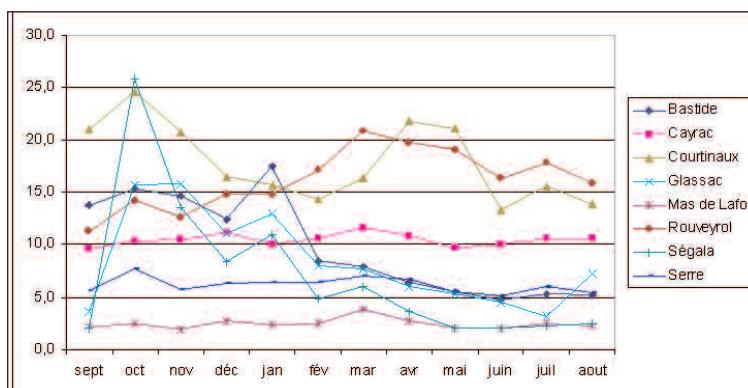


figure 14 : Nitrates

des routes ou du traitement par le chlorure ferrique des effluents de la station d'épuration du Massegros qui atteignent les sources de Rouveyrol et le Parisien. La position bien en dessous de la tendance générale indique un impact prépondérant de l'agriculture.

Le suivi et la comparaison des variations des paramètres physico-chimiques des 18 sources au cours d'un cycle hydrologique permettent de préciser leur fonctionnement, les raisons de l'état qualitatif du système et la manière dont les éléments anthropiques parviennent à l'exutoire. La présence des éléments anthropiques renseigne sur la vulnérabilité du système, mais

la pollution peut se manifester, soit de façon chronique ce qui indique la détérioration de la qualité des réserves ou la permanence de fortes entrées polluantes dans le système karstique, soit de façon accidentelle ou répétitive.

Par exemple en ce qui concerne les chlorures (fig.13) certaines sources présentent des teneurs constantes tout au long du cycle hydrologique et des états satisfaisants. D'autres présentent des augmentations faibles mais significatives en novembre, octobre et janvier lors de petites crues, traduisant leur vulnérabilité. A l'inverse deux sources polluées, Courtinaux et Rouveyrol connaissent des baisses de leurs teneurs en hautes eaux qui peuvent être interprétées comme la dilution d'un flux polluant se déversant en permanence dans le système. L'hypothèse de réserves de très mauvaise qualité peut être écartée en raison des variations importantes observées durant un long étiage.

En ce qui concerne les nitrates ce sont les trois mêmes sources qui présentent une grande constance. Presque toutes les autres connaissent une augmentation des teneurs en nitrates surtout lors des premières crues d'automne en octobre, novembre mais aussi en janvier, avec des amplitudes croissantes de Glassac, Bastide jusqu'à Ségala, confirmant ainsi leur vulnérabilité déjà entrevue avec les chlorures. Les sources polluées de Rouveyrol et Courtinaux accusent, comme pour les chlorures, de fortes concentrations en étiage confortant l'idée d'un déversement permanent et conséquent d'eaux usées dans leur réseau. Celle de Courtinaux avec également de fortes teneurs de septembre à novembre est aussi vulnérable au lessivage des sols en automne.

L'étude géomorphologique a démontré que les argiles à chailles constituent des sols profonds et les paysages bocagers qui s'y trouvent contrastent fortement avec l'aridité des autres secteurs. L'activité humaine s'y concentre depuis des milliers d'années et les premiers déboisements sur les ségalas ont provoqué d'importants phénomènes de colluvionnement en direction des points bas. Une partie de la couverture d'argiles à chailles a donc été restaurée à cette époque, masquant l'existence de dolines et d'avens. Cet héritage, ainsi que la tendance à la verticalisation du karst rend cette couverture extrêmement sensible. Ainsi, toute concentration de l'eau en surface tend au débourrage du karst sous-jacent. Plusieurs exemples récents, notamment pendant les travaux de l'autoroute A 75 au niveau de l'Hospitalet-du-Larzac, sont venus illustrer ce postulat. En outre, le remembrement, qui a fait disparaître tout ce qui pouvait favoriser l'infiltration diffuse, l'existence de grandes surfaces imperméabilisées (parking, voirie), ainsi que le rejet des eaux usées contribuent au décolmatage et à l'absorption massive d'effluents pollués.

Un inventaire des activités potentiellement polluantes (pression anthropique) a été réalisé. Une carte de vulnérabilité et une carte des dangers (croisement de la vulnérabilité et de la pression anthropique) ont ensuite été dressées, en tenant compte de l'ensemble des résultats (chimie, traçages, etc...).

Conclusion

L'intérêt de cette étude ne réside pas dans la nouveauté des méthodes employées, même si certaines ne sont pas encore exploitées en routine. Son caractère singulier est plutôt le double aspect :

de l'approche à l'échelle d'une unité hydrologique cohérente ;
de la mise en œuvre de diverses disciplines complémentaires des sciences de la terre, et du dialogue qui a pu s'instaurer entre celles-ci au moment de la comparaison des résultats.

DARCY 112

Cartographie de la vulnérabilité simplifiée des eaux souterraines du Bassin Seine-Normandie. Application aux sites BASOL

MARDHEL Vincent¹, GRAVIER Annabel¹, KOCH-MATHIAN Jean-Yorick¹, NOWAK Céline¹,
TERREYRE Jean-Luc², RAGUET Mireille³, GARNIER Cécile³

¹ BRGM, BP6009, 45060 Orléans cedex 2, France, v.mardhel@brgm.fr ; jy.kochmathian@brgm.fr

² MEDD, 20 av. de Sécur, 75302 Paris 07 SP, France, jean-luc.terreyre@ecologie.gouv.fr

³ Agence de l'Eau Seine-Normandie, 51, rue Salvador Allende, 92027 Nanterre Cedex, France,
raguet.mireille@aesn.fr ; garnier.cecile@aesn.fr

BASOL : BAse des Sites et SOLs pollués, ou susceptibles de l'être, sur lesquels l'administration a engagé une action.

Abstract

The index of persistence and development of networks (IDPR) was created to carry out national or regional maps of vulnerability. It translates the aptitude of the geological formations to let to flow or to infiltrate surface water. IDPR is based on the analysis of the drainage network (calculated by DEM) and the natural hydrological flow .This concept is a indirect approach of infiltration and it is necessary in the development of any map of vulnerability. Finally the IDPR can replace many criteria usually employed in the use of vulnerability methodologies to produce maps.

The map of vulnerability described now was produced with the IDPR. It's related to the territory of the Agency of basin Seine-Normandy. The methodology was validated within a working group made up of the representatives of the MEDD, agency of water, DIREN, DRIRE and BRGM. Since then, the territories of the Agency of water Loire-Bretagne, of the areas Nord-Pas-de-Calais and Aquitaine were treated with the same approach. The Agency of Rhone-Mediterranée-Corse has index IDPR since 2003.

The vocation of this method is not to replace maps of vulnerability at high scale, the precision of DEM and rivers network does not allow it, it constitutes an indicator of a general state of vulnerability. The map obtained must be interpreted not as a reflection of an absolute vulnerability but as a construction of a hierarchy of the systems relative to their vulnerability. This hierarchisation allowing to target the priority zones as regards protection of the resource. The application to the specific polluting pressures such as those related to sites BASOL, carried out in 2005 on the Seine-Normandy basin in partnership with the MEDD and the agency of water, showed the interest of such total maps to contribute to the establishment of the priorities of monitoring and interventions. The other prospects for use are numerous, in particular for the installation of the follow-up of the quality of subsoil waters downstream from the Installations Classified in the vulnerable zones.

Résumé

L'Indice de Persistance et de Développement des Réseaux (IDPR) a été créé pour réaliser des cartes nationales ou régionales de vulnérabilité. Il traduit l'aptitude des formations du sous-sol à laisser ruiseler ou s'infiltrer les eaux de surface et se fonde sur l'analyse des réseaux hydrologiques et celle du MNT. Cette notion d'infiltration est requise dans l'élaboration de toute carte de vulnérabilité et l'IDPR peut se substituer à de nombreux critères usuellement employés.

La première carte de vulnérabilité produite avec l'IDPR a porté sur le territoire de l'Agence de bassin Seine- Normandie, la méthodologie validée au sein d'un groupe de travail constitué des représentants du MEDD, de l'agence de l'eau, des DIREN, des DRIRE et du BRGM est décrite dans cet article. Depuis lors, les territoires de l'Agence de l'eau Loire- Bretagne, des régions Nord-Pas-de-Calais et

Aquitaine ont été traités ainsi que celui de l'Agence Rhône Méditerranée Corse où l'indice IDPR a été calculé dès 2003.

La vocation de cette méthode n'est pas de se substituer aux cartes de vulnérabilité d'échelle infra départementales, la précision des données ne le permet pas, elle constitue un indicateur d'un état général de vulnérabilité. La carte obtenue doit être interprétée non pas en tant que reflet d'une vulnérabilité absolue mais en tant que construction d'une hiérarchie des systèmes relativement à leur vulnérabilité. Cette hiérarchisation permettant de cibler les zones prioritaires en matière de protection de la ressource. L'application aux pressions polluantes ponctuelles telles que celles liées aux sites BASOL, réalisée en 2005 sur le bassin Seine-Normandie en partenariat avec le MEDD et l'agence de l'eau, a montré l'intérêt de telles cartes globales pour aider à l'établissement des priorités de surveillance et d'interventions. Les autres perspectives d'utilisation sont nombreuses, en particulier pour la mise en place du suivi de la qualité des eaux souterraines en aval des Installations Classées dans les zones vulnérables.

Le réseau hydrographique

«Le réseau hydrographique correspond à tout écoulement linéaire concentré sur la surface topographique qu'il transforme progressivement. Il représente un état du cycle de l'eau, celui de l'écoulement qui suit le chemin le plus facile, minimisant sans cesse leur entropie» (Deffontaines, 1990).

En 1972, Robert Prud'homme, un des précurseurs français en matière d'analyse des réseaux hydrographiques, montre l'intérêt de ces types d'analyse pour les études géologiques, car : «les caractères du réseau hydrographique sont extrêmement dépendants au cours de leur évolution de l'état du bassin versant». Il ajoute : «les trois paramètres dont les variations nous semblent les plus importantes dans l'étude des réseaux hydrographiques sont la topographie, les structures géologiques et la composition lithologique du sous-sol». Prud'homme expérimente donc l'analyse cartographique des réseaux hydrographiques et donne un certain nombre de corrélations très pertinentes. Kim Woo-Gwan, poursuit ces travaux et approfondit l'analyse des réseaux hydrographiques. Dans les années 1990, Deffontaines insiste sur l'intérêt du réseau hydrographique pour une approche morphostructurale : «Le réseau hydrographique est principalement modifié par la lithologie et la fracturation». En parallèle, Riazanoff propose des méthodes automatiques d'extraction et d'analyse de réseaux hydrographiques, en faisant apparaître quelques corrélations qui ouvrent les portes à une analyse automatisée et informatique du réseau hydrographique. Les travaux de ces différents auteurs montrent que le tracé du réseau hydrographique résulte d'interactions complexes. Si l'eau par nature est incompressible et s'écoule par le chemin le plus court du point haut (sommet, crête,...) au point bas (mer, lac, fleuve...), durant son parcours, les conditions de son cheminement influent sur son tracé. Parmi ces facteurs, les causes d'origines uniquement géologiques sont nombreuses :

La lithologie : elle intervient par sa nature physique : épaisseur, perméabilité, etc., et sa nature chimique : sensibilité à la dissolution, phénomènes de cristallisation, etc.

La structure : les alternances géologiques, les discordances, les déformations affectent la lithosphère, modifient la topographie et façonnent le réseau hydrographique.

La pente régionale : définie par un sens, une direction puis une inclinaison, elle est un élément déterminant dans l'orientation et l'organisation des cours d'eau.

D'autres facteurs interviennent résultants d'une combinaison de contraintes de nature diverse, leur importance diffère selon l'échelle à laquelle on observe le réseau hydrographique, on ne mentionnera pour mémoire que le rajeunissement et l'eustasme. Ainsi, au delà de sa morphologie, le réseau hydrologique par sa morphogenèse suppose la recherche d'éventuelles corrélations entre la forme du réseau hydrographique et la nature du sous-sol. Celle-ci a suscité un grand nombre de travaux et l'hypothèse principale qui les sous tend suppose que les

réseaux hydrographiques conservent, dans leurs formes, la signature de phénomènes endogènes ou exogènes.

Définition de l'IDPR (Indice de Développement et Persistance des Réseaux), morphologie vs morphogenèse

Les travaux cités précédemment montrent qu'au-delà de l'objet géographique, le réseau hydrographique peut être appréhendé comme un objet morpho structural dont la genèse montre des corrélations entre causes et forme. L'IDPR s'intéresse à ces corrélations et met en exergue celles qui sont supposées d'ordre géologique. Arbitrairement, cette approche minimalise les autres facteurs et cela même si le climat (paléoclimat), la végétation, l'action de l'homme ont un rôle important dans l'évolution du tracé des cours d'eau. Ainsi dans l'hypothèse d'un milieu parfaitement homogène, de perméabilité nulle, seule la pente et la morphologie des reliefs guident la mise en place des cours d'eau. La recherche des talwegs ou lignes de plus grande pente qui par la gravité, rassemblent les eaux de ruissellement, doit donc conduire à la reproduction du réseau hydrographique. Dans la réalité, ce réseau hydrographique théorique diffère du réseau naturel et cette différence traduit la complexité du milieu naturel. L'idée qui sous tend l'IDPR découle donc du postulat suivant,

Si l'organisation du réseau de drainage, des talwegs, dépend du modèle des terrains naturels ; si l'organisation du réseau hydrographique dépend du contexte géologique qui le supporte : alors l'écart entre le réseau des talwegs et le réseau hydrographique traduit l'influence du milieu souterrain. Ainsi, un bassin formé de matériaux très perméables aura en général un réseau hydrographique de densité faible comparativement à la densité des talwegs calculés. A l'inverse, un bassin formé de roches imperméables mais meubles et érodables, des marnes par exemple, va souvent présenter un réseau hydrographique de densité plus élevée. L'IDPR devient ainsi un moyen de quantifier indirectement la fonction de transfert des eaux météoritiques depuis la surface vers le sous-sol. Il compare un réseau théorique établi selon l'hypothèse d'un milieu parfaitement homogène (indice de développement **ID**), au réseau naturel mis en place sous le contrôle d'un contexte géologique hétérogène (de persistance des réseaux **PR**). Il présente une métrologie de l'écart constaté entre les deux réseaux et rend compte du rôle du milieu souterrain dans l'établissement du réseau hydrologique et va alors être exploité pour approcher de manière indirecte, la capacité intrinsèque des terrains à laisser infiltrer ou ruisseler les eaux de surface.

Couches d'informations nécessaires

Venus du monde des géographes universitaires, repris par de grands projets dont la réalisation a conduit à l'acquisition d'un volume important de données qui fallait gérer dans le temps et l'espace, les Systèmes d'Informations Géographiques (SIG) sont développés depuis les années 80 pour la digitalisation, la conservation, l'analyse et à la synthèse de l'information géographique. Si de nombreux scientifiques, géologues, géographes, hydrologues ou géomorphologues ont défini, dès les années 50, des modes d'analyse des réseaux hydrographiques, ce type d'analyse n'a jamais vraiment été utilisé autrement qu'à titre expérimental ou de manière parcimonieuse jusqu'aux années 80. Ce peu d'utilisation s'explique alors par la longueur des calculs manuels et l'inadaptation des moyens pour l'automatisation de ces analyses. La montée en puissance des SIG a porté depuis lors largement l'accent sur l'automatisation de l'extraction du réseau hydrographique à partir de modèle numérique de terrain (MNT). L'IDPR propose de réunir l'approche d'automatisation de l'analyse des réseaux hydrographiques avec les travaux de digitalisation des réseaux naturels.

Le réseau naturel

Dans le cadre de l'étude présentée en Seine-Normandie, le réseau hydrologique naturel, utilisé dans la démarche de calcul de l'IDPR provient des données de la BD CARTHAGE IGN© (fig.1). Les attributs exploités pour l'analyse sont l'état et la nature des cours d'eau.

Le réseau théorique

Le réseau théorique des écoulements est fondé sur l'analyse des talwegs (fig.2). Il s'établit à

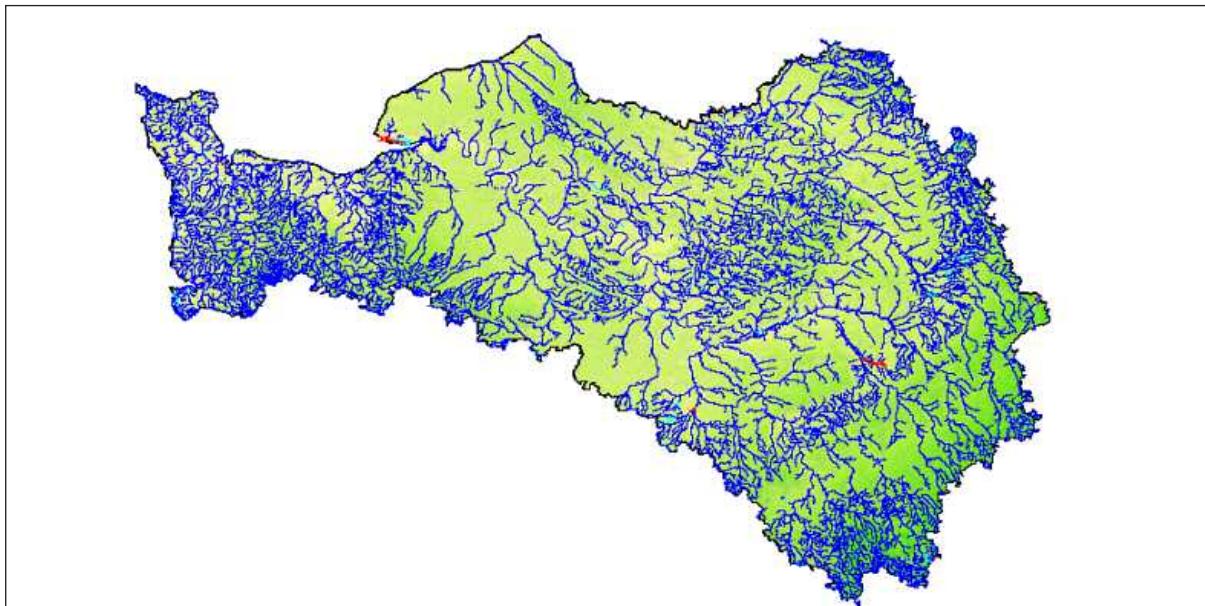


Figure 1 : Réseau hydrologique extrait de BD Carthage IGN©

partir du modèle numérique de terrain (MNT) au pas de 50m. Si ce dernier est précis, il reste des dépressions pour lesquelles aucun exutoire n'est possible ou des zones planes pour lesquelles la détermination d'un talweg s'avère impossible et il est nécessaire de traiter ces zones afin de rétablir l'écoulement potentiel. Pour les zones en dépression, l'hypothèse suivante guide les corrections, *l'eau s'écoule en surface et s'il y a une dépression naturelle, l'eau remplit préalablement celle-ci avant de continuer sa route vers l'aval*. Une première technique de traitement suppose que ces dépressions résultent d'artéfacts ne représentant aucune forme réelle (Janson et Domingue, 1998). De ce fait, il suffit de procéder à leur comblement après en avoir déterminé l'exutoire : c'est la technique dite du « bouche-trous ». Une seconde technique (Fairfield, et Leymarie, 1991) vise à déterminer l'exutoire de la dépression puis à inverser le chemin d'écoulement entre le fond de la dépression et celui-ci en rétablissant la continuité du réseau. Enfin, une dernière méthode consiste à identifier une zone d'altitude forte entre deux dépressions et à creuser cette zone de façon à ce que l'eau de la dépression s'écoule en aval.

A l'usage, ces techniques offrent toutes des résultats comparables. L'algorithme de traitement des dépressions n'influence pas de manière significative le réseau obtenu par extraction automatique, en revanche, c'est au niveau des modifications du MNT que se situent les différences essentielles, en effet, si la seconde technique indiquée est sans effet sur les altitudes, les deux autres vont modifier le MNT et fournir une indication quant à la qualité des données initiales et/ou la nature des reliefs observés (dolines, zones endoréiques, etc...). Par souci de simplification des outils mis en œuvre, la première méthode est celle retenue pour le processus de calcul de l'IDPR.

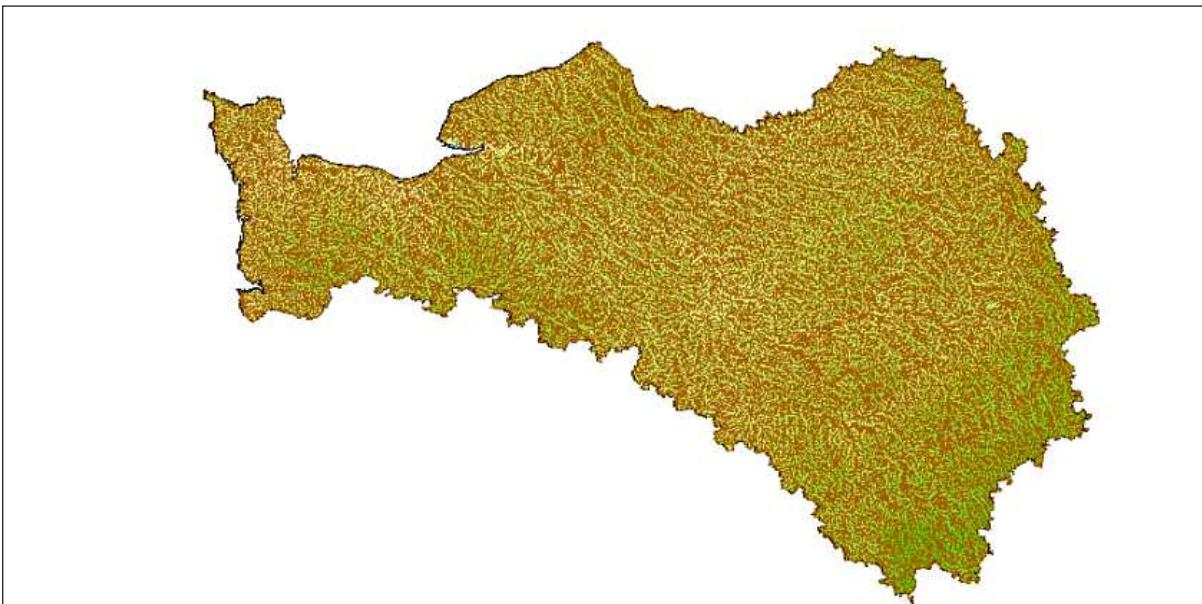


Figure 2 - Réseau des talwags

Calcul de l'IDPR

L'IDPR résulte du rapport entre la distance au plus proche cours d'eau réel et la distance au plus proche talweg calculé, il varie selon une échelle comprise entre 0 et n et est arbitrairement ramené à une gamme de 0 à 2000.

IDPR < 1000 : Infiltration majoritaire par rapport au ruissellement superficiel. L'eau ruisselant sur les terrains naturels rejoint un axe de drainage défini par l'analyse des talwags sans que celui-ci ne se concrétise par l'apparition d'un axe hydrologique naturel.

IDPR = 1000 : Infiltration et ruissellement superficiel de même importance. Il y a conformité entre la disponibilité des axes de drainage liés au talweg et les écoulements en place

IDPR > 1000 : Ruissellement superficiel majoritaire par rapport à l'infiltration vers le milieu souterrain. L'eau ruisselant sur les terrains naturels rejoint très rapidement un axe hydrologique naturel sans que la présence de celui-ci soit directement justifiée par un talweg. Un IDPR voisin ou égal à 2000 traduit une stagnation transitoire ou permanente des eaux, menant à deux interprétations différentes. Si la nappe est proche de la surface des terrains naturels, (cours d'eau et zones humides), le terrain est saturé et l'eau ne s'infiltra pas. Si la nappe est profonde, le caractère ruisselant peut démontrer une imperméabilité des terrains naturels. On pose l'hypothèse que des valeurs d'IDPR supérieures à 2000 sont majoritairement assimilables à des milieux humides.

La figure 3 présente le résultat du calcul de l'indice IDPR sur la totalité du territoire Seine-Normandie, le maillage est composé de cellules de 100m de coté. Il est établit sur la seule analyse des données géomorphologiques et hydrologiques et la comparaison avec la carte géologique présentée en médail-lon montre des correspondances remarquables. Deux exemples ont vocation à illustrer ces correspondances entre les résultats de l'IDPR et formations géologique.

Le calcaire de Beauce

La nappe de Beauce que représente le complexe aquifère des calcaires de Beauce constitue

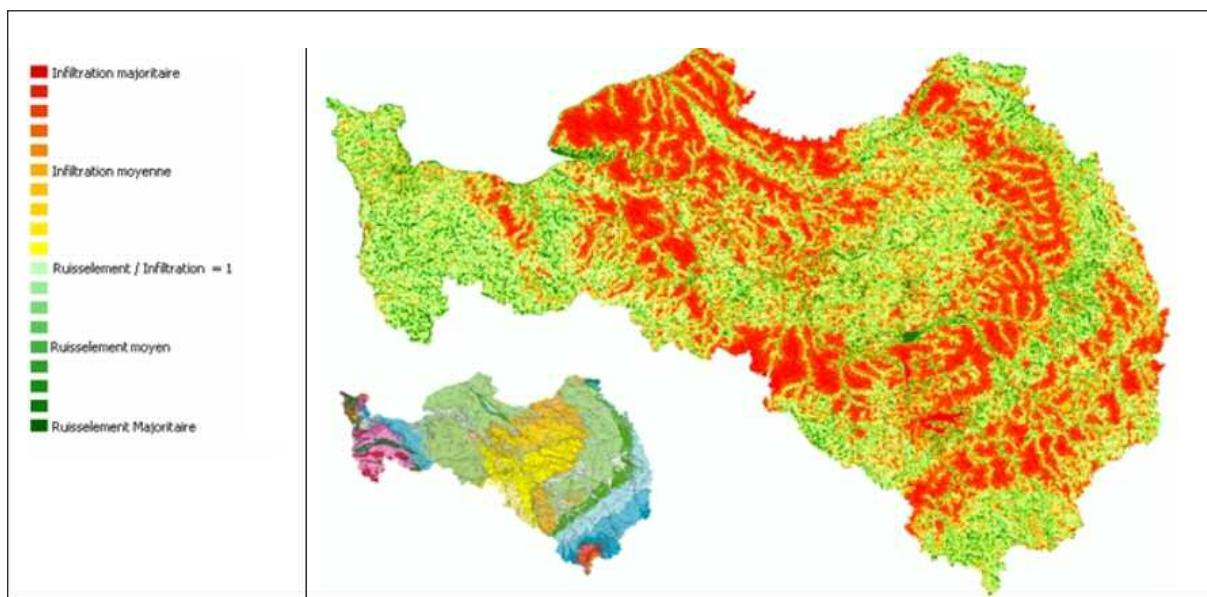


Figure 3 : Grille IDPR appliquée au bassin Seine-Normandie

une unité hydrographique qui s'étend entre la Seine et la Loire. Représentée par la nappe libre des calcaires de Beauce et sa partie captive sous forêt d'Orléans et recouvrement du Burdigalien, le réservoir aquifère est composé principalement de calcaires empilés dans une cuvette dont le fond est constitué d'argile imperméable. Dans le secteur de la forêt d'Orléans, la nappe est captive, surmontée d'une couche d'argile. La carte géologique à l'échelle du million qui est stratigraphique et non lithologique, ne montre pas (fig. 4) ce recouvrement des formations de la forêt orléanaise alors que la grille IDPR la met clairement en évidence.

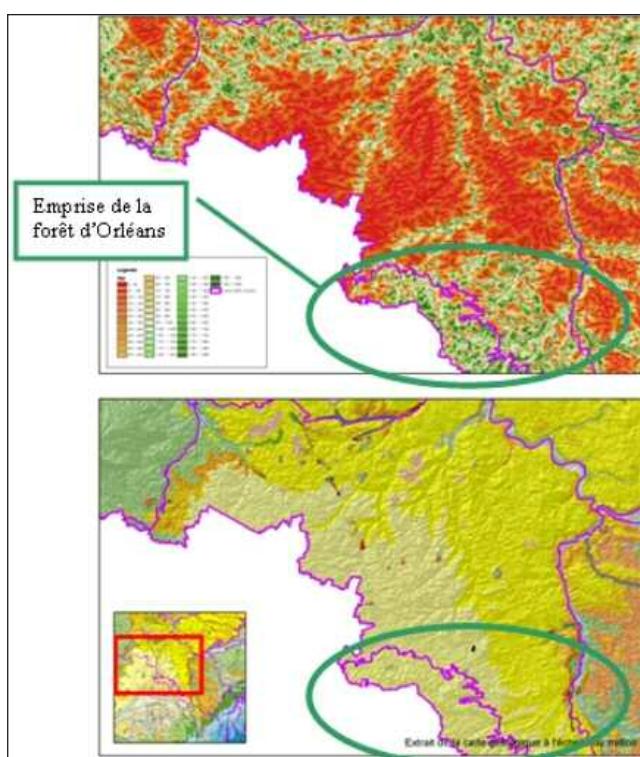


Figure 4 : La Beauce, réponse IDPR et géologie (Million BRGM)

Le pays de Bray

La partie nord du Bassin sédimentaire de Paris est majoritairement composée des affleurements de l'auréole du Crétacé supérieur, sous un faciès de craie largement développé sur les territoires de la Somme, du nord de l'Aisne et de l'ouest de l'Oise. Localement existent des affleurements tertiaires (sables et argiles Eocène principalement) déposés sur le substrat crayeux. Plus localement encore, des terrains plus anciens d'âge Jurassique affleurent en limite de région, dans le Beauvaisis, à la faveur de la « boutonnière » du Pays de Bray. Ces terrains sont formés par des argiles ou des marnes calcaires relativement imperméables. Le bloc diagramme (fig.5) et la coupe associée en illustrent la morphologie et la structure géologique.

La grille de calcul de l'IDPR fournit pour cette région une réponse très détaillée où la présence des formations peu perméables du Crétacé inférieur souligne la structure de l'anticlinal du pays de Bray qui a formé cette boutonnière si particulière.

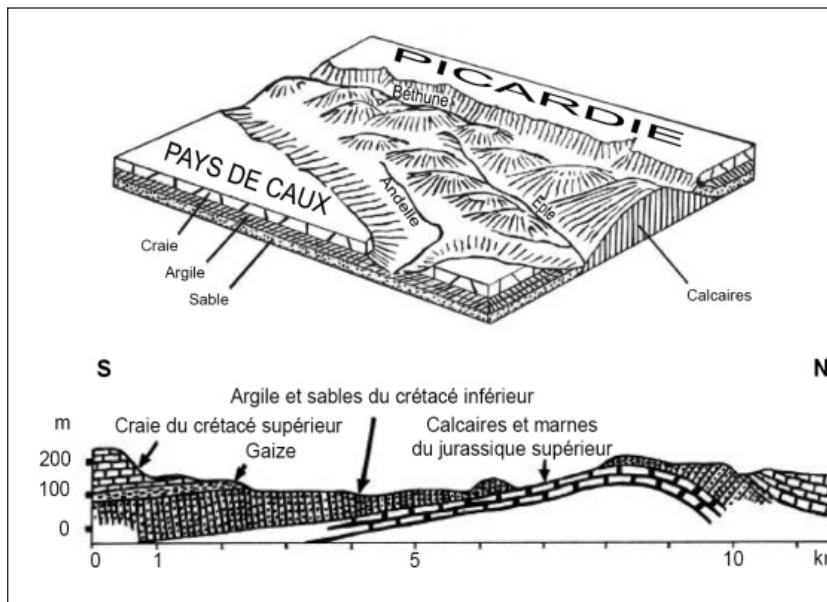


Figure 5 : Le Pays de Bray

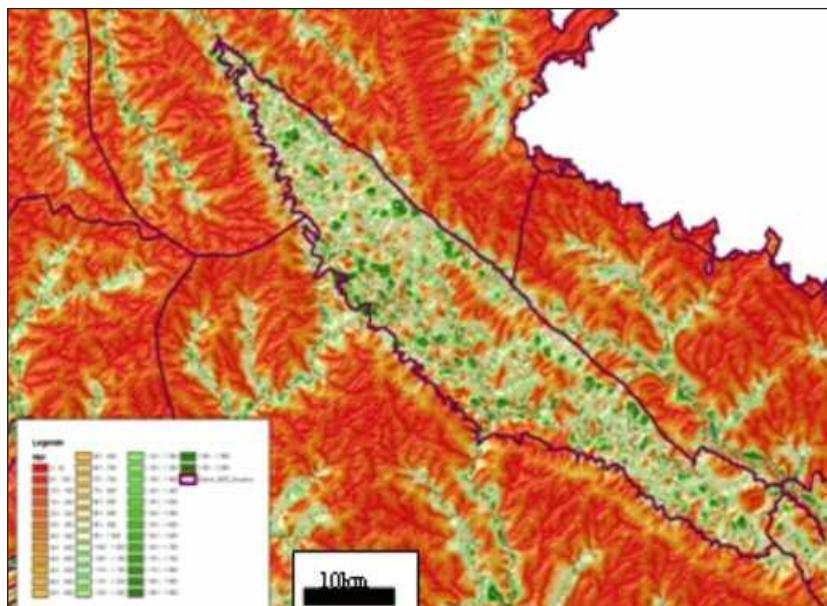


Figure 6 : réponse IDPR du pays de Bray

vulnérabilité intrinsèque.

De nombreuses méthodes de détermination de la vulnérabilité des eaux souterraines ont été développées dans le monde, allant des plus complexes avec des modèles prenant en compte les processus physiques, chimiques et biologiques dans la zone noyée, à des méthodes de pondération entre différents critères affectant la vulnérabilité (Gogu et Dassargues, 1998 b). Parmi celles-ci, les méthodes dites « de cartographie à index avec pondération des critères » (Point Count Systems Models, PCSM) apparaissent les plus pertinentes vis à vis des réalités de terrain. Ce sont aussi les plus reconnues et utilisées à l'heure actuelle (Gogu et

Cartographie de l'indice simplifié de vulnérabilité

La notion de vulnérabilité repose sur l'idée que le milieu physique en relation avec la nappe d'eau souterraine procure un degré plus ou moins élevé de protection vis-à-vis des pollutions. La vulnérabilité est alors représentée par la capacité donnée à l'eau située en surface de rejoindre le milieu souterrain saturé en eau. Deux types de vulnérabilité sont distinguées; la vulnérabilité intrinsèque et la vulnérabilité spécifique (Schnebelen et al., 2002). La vulnérabilité intrinsèque est définie pour représenter les caractéristiques du milieu naturel qui déterminent la sensibilité des eaux souterraines à la pollution par les activités humaines. La vulnérabilité spécifique est le terme utilisé pour définir la vulnérabilité d'une eau souterraine à un polluant particulier ou à un groupe de polluants. Elle prend en compte les propriétés des polluants et leurs relations avec les divers composants de la

Dassargues 2000 ; Zaporozec et Vrba 1994). Ces méthodes supposent l'identification de nombreux indices auxquels l'IDPR a vocation, à petite échelle, à se substituer. Ainsi l'étude présentée s'attache à réaliser la carte de vulnérabilité intrinsèque simplifiée du bassin Seine-Normandie, simplifiée car elle exploite uniquement deux critères:

- la zone non saturée (ZNS) qui intervient avant l'arrivée du polluant dans l'aquifère (nature, perméabilité, épaisseur), elle est issue de la compilation des données piézométriques des premières nappes rencontrées et du MNT exploité pour l'IDPR;
- L'IDPR, exploité pour se substituer aux données liées à la perméabilité des sols et les caractéristiques propres des aquifères. Il s'agit d'une approximation des caractéristiques de ces milieux pour lesquels, on l'a vu précédemment, l'IDPR décrit, de manière qualitative, la perméabilité à travers les pôles infiltration et ruissellement.

La formule de calcul est : $V_i = (\text{Poids IDPR} * [\text{Critère IDPR}]) + (\text{Poids ZNS} * [\text{Critère ZNS}])$ avec : Poids IDPR + Poids ZNS = 1 et V_i compris entre 0 et 100. L'ajustement des poids retenu par les différents experts régionaux comme le plus représentatif des connaissances acquises est fixé à 50%/50%.

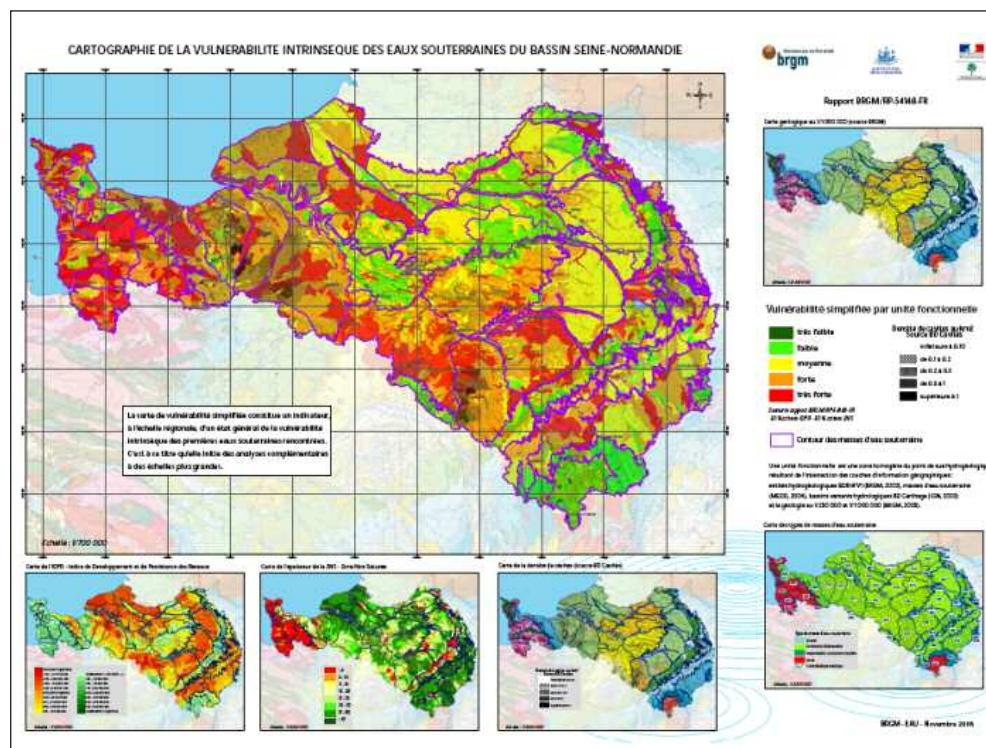


Figure 7 : Cartographie de la vulnérabilité intrinsèque du bassin Seine- Normandie

Confrontation de la méthode

IDPR/ZNS avec les cartes de vulnérabilité régionales antérieures

La cartographie du bassin Seine-Normandie a été discutée et validée au sein d'un groupe de travail constitué des représentants du MEDD, de l'agence de l'eau, des DIREN, des DRIRE et du BRGM. Parmi les différentes zones de contrôle prises en compte lors de l'étude, sont illustrés à la suite les résultats comparés des cartes régionales sur les territoires de Bourgogne et de Champagne.

En Champagne-Ardenne, le document de référence utilisé est la carte de vulnérabilité spéci-

fique vis à vis des nitrates de la zone d'affleurement du faciès crayeux du Turonien supérieur et du Sénonien, Crétacé Supérieur. La méthode élaborée par J. Ricour (1998) dans le cadre d'une application à la nappe de la craie dans le secteur de Guines (Pas-de-Calais) a été utilisée et adaptée pour l'élaboration de cette carte. Le degré de vulnérabilité est exprimé selon 4 classes (Vulnérabilité négligeable à nulle, Vulnérabilité faible, Vulnérabilité modérée et Vulnérabilité forte) représentées sur carte par un gradient de couleur (cf. légende). Le résultat du test de calage de la méthode d'analyse simplifiée de la vulnérabilité de l'aquifère de la craie est la carte présentée en figure 8. Sa comparaison avec la carte de référence indique un calage adéquat sur cette région

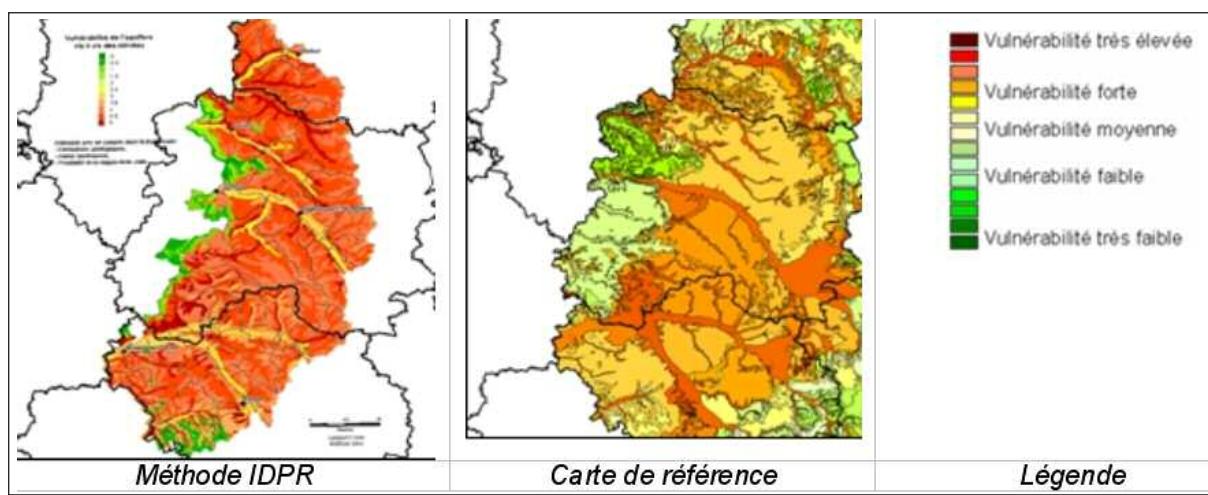


Figure 8 : Comparaison des méthodes sur la région Champagne- Ardennes.

En Bourgogne, la carte de référence utilisée est la carte de vulnérabilité aux phytosanitaires des eaux. La comparaison est présentée en figure 9 et montre une nette correspondance concernant le degré de vulnérabilité affecté aux aquifères par la méthode simplifiée à l'aide de l'IDPR.

Exemple d'application de la carte de vulnérabilité intrinsèque aux sites BASOL

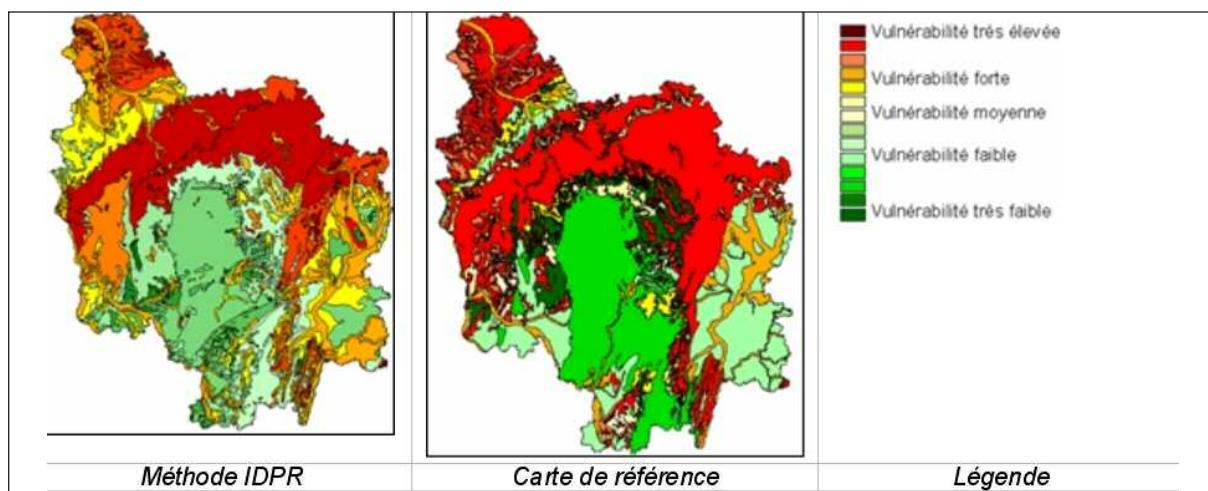


Figure 9 : Comparaison des méthodes sur la région Bourgogne.

L'Agence de l'Eau Seine- Normandie et le Ministère de l'Ecologie et du Développement Durable ont chargé le BRGM en 2004 de développer des indicateurs d'appréciation de la vulnérabilité des eaux souterraines au droit des sites BASOL sur l'ensemble du bassin. Une méthodologie de croisement des données en fonction de différents critères pertinents a d'abord été mise au point avec les partenaires de l'étude. Une Geodatabase et un Système d'Information Géographique au format Access 2000® et Arcmap® ont ensuite été élaborés. L'outil ainsi mis en place nommé « BASOLHYD SN 2005 » couplé au SIG peut permettre de prioriser les actions de traitement et de surveillance des sites BASOL, mais aussi de tout autre point de pression ponctuelle. Les critères permettant de classer et comparer les sites entre eux combinent les paramètres sur les sources de pollutions (données de BASOL), les facteurs de transfert vers les nappes (obtenus par le SIG vulnérabilité) et les cibles potentielles (captages AEP, volumes prélevés, enjeux de protection des masses d'eau). Le SIG relié à l'outil numérique BASOLHYD permet d'analyser différents scénarios multicritères par modulation des poids affectés à chaque critère (IDPR, ZNS, source, transfert, cible), de générer des cartes de visualisation des résultats (atlas du bassin par masses d'eau, départements et régions et des sites BASOL) et des tableaux de résultats triés par catégories de sites.

Sur un total de 846 sites BASOL géoréférencés du bassin ayant pu faire l'objet du traitement multicritères, 35% sont localisés au droit de formations aquifères de forte vulnérabilité et 47%

au droit de formations aquifères de vulnérabilité moyenne. Parmi les 281 sites considérés comme prioritaires, 256 ont mis en place une surveillance des eaux souterraines et 222 ont engagé des actions de traitement des sites. La figure 10 présente à titre d'exemple la carte des sites BASOL de la région Picardie.

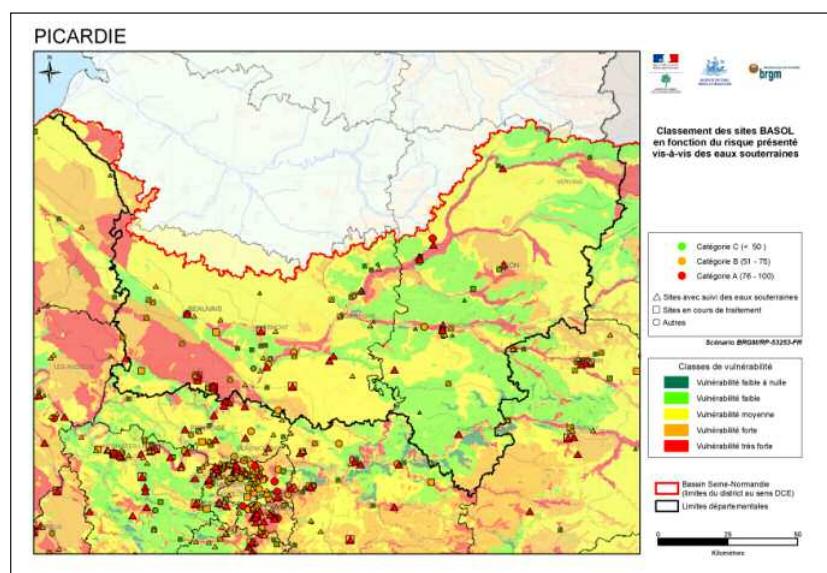


Figure 10 : Analyse de la vulnérabilité des sites BASOL de la région Picardie

Conclusion

La transition de l>IDPR vers la notion de vulnérabilité se fait avec l'exploitation du critère lié à l'épaisseur de la ZNS. Ce critère permet de hiérarchiser la cible eau souterraine selon la distance à parcourir depuis la surface des terrains naturels jusqu'au milieu saturé. Dans le domaine sédimentaire, le critère lié à l'épaisseur de la zone non saturée conditionne à part égale avec l>IDPR l'indice de vulnérabilité des eaux souterraines. Ce dernier permettant de simplifier drastiquement le jeu de données nécessaire à l'élaboration de ces cartes.

L'avancement des différentes études menées sur le territoire national permet d'espérer une couverture nationale de la vulnérabilité des eaux souterraines à l'horizon de l'année 2007 (fig.11).

Une telle couverture a déjà été menée en sur la totalité d'un territoire national, en Slovénie (Mardhel et al., 2004).

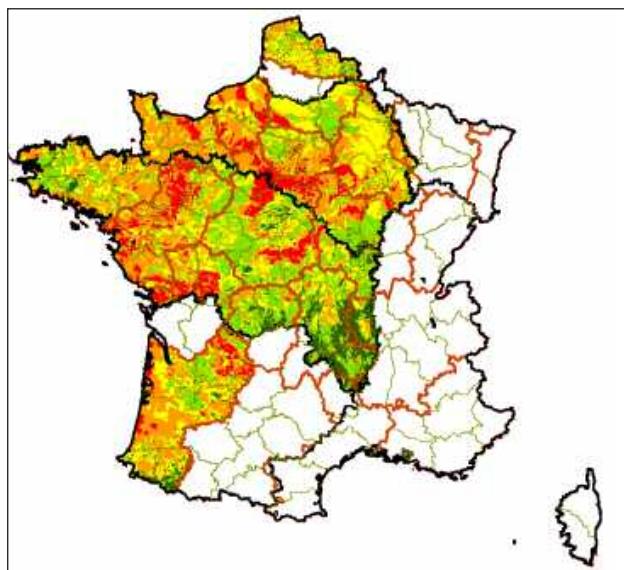


Figure 11 : Avancement des différentes études sur le territoire national.

La limite d'interprétation, d'exploitation, de ces cartes de vulnérabilité est fixée par la méthode d'élaboration des données qui la composent. Par construction, on peut considérer une échelle minimum de 1/100 000 lorsque l'on dispose d'un fond hydrologique vectorisé à la même échelle et d'un modèle numérique de terrain au pas de 50m. L'analyse de ces réseaux à partir du modèle numérique de terrain au pas de 90m (SRTM 90m) présente un résultat comparable et permet d'envisager une cartographie européenne de cette indice (projet FOOTPRINT).

L'application aux sites BASOL réalisée sur le bassin Seine- Normandie a montré l'intérêt de telles cartes pour aider à l'établissement des priorités d'interventions et de surveillance.

Les autres perspectives d'utilisation sont nombreuses. Parmi celles-ci, on retiendra :

- L'extension de la méthode aux sites BASOL de l'ensemble du territoire ;
- L'exploitation de l'IDPR dans le cadre d'études de vulnérabilité des eaux superficielles à l'échelle de bassins versants ;
- La cartographie à une échelle plus locale de la vulnérabilité associée à une carte de sensibilité dans les zones à enjeux ;
- L'établissement des priorités de bancarisation des données du suivi de la qualité eaux souterraines en aval des Installations Classées (I.C) ;
- La contribution à la sélection des I.C nécessitant une surveillance des eaux souterraines localisées dans les secteurs les plus vulnérables (article 65 b du décret relatif à la surveillance du 03/08/2001) ;
- L'aide à l'adaptation des réseaux de suivi liés au SDDE et à la mise en place d'une surveillance commune des eaux pour un ensemble de sites industriels situés au droit d'une zone très vulnérable.

SRTM 90m: Void-filled seamless SRTM data V2, 2005, International Centre for Tropical Agriculture (CIAT), available from the CGIAR-CSI SRTM 90m Database

FOOTPRINT was published in the Official Journal of the European Communities on 30 October 2004. It's a STREP (Specific Targeted Research Project). FOOTPRINT Creating tools for pesticide risk assessment and management in Europe

Références :

- Corbier.P., Mardhel.V., 2003 - Carte de vulnérabilité simplifiée des bassins versants de la région Pays de la Loire. Rapport BRGM/RP-53106-FR
- Deffontaines B., (1990)- Développement d'une méthodologie morphonéotectonique – Analyse des surfaces enveloppes du réseau hydrographique et des MNT, Thèse, Université Paris VI, 225 pages, 1990.
- Fairfield J. et Leymarie P., 1991- Drainage networks from grid Digital Elevation Models. Water resources Research, pp 709-717.
- Gogu R.C., Dassargues A., 2000 - Current trends and future challenges in groundwater vulnerability assessment using overlay and index methods, Environmental Geology, 39 (6), April, Springer-Verlag.
- Gravier A., Koch-Mathian J-Y, Mardhel V. et Nowak C., 2006 - Croisement des données des sites BASOL avec la vulnérabilité simplifiée des nappes du bassin Seine-Normandie, rapport de synthèse, BRGM/RP-54257-FR,
- Jenson, S.K. et Domingue, J.O. 1998 - Extracting topographic structures from digital elevation data for geographic information system analysis. Photogrammetric engineering and remote sensing, pp 1593-1600.
- Kim W.G. 1978 - Analyse cartographique du bassin de Nak-Dong (Corée), Thèse, Université Bordeaux I, 95 pages, 1978.
- Lacroix M., Martz L.W., Kite G.W. and Garbrecht J. 2002 - Using digital terrain analysis modelling techniques for the parameterization of a hydrologic model. Environmental Modelling and Software
- Lawrence W. Martz and Jurgen Garbrecht, 1993 - Automated Extraction of Drainage Network and Watershed Data From Digital Elevation Models Volume 29, No. 6, pp. 901-908, December 1993
- Machard de Gramont H., Mardhel V., Pointet T., Schomburgk S., en collaboration avec Caous J-Y., Caudron M., Corbier P., David-Rouxel E., Equilbey E., Ghyselinck M., Jauffret D., Maget Ph., Marchais E., 2003 - Etude de sensibilité aux remontées de nappes – Méthodologie et application à 20 secteurs tests de France métropolitaine. Rapport BRGM/RP-52340-FR
- Mardhel V. et Gravier A., 2005 - Carte de vulnérabilité simplifiée du bassin Seine-Normandie. Rapport BRGM/RP- 54148-FR
- Mardhel V. , Frantar P., Uhan J., Mi?o A., 2004 - Index of development and persistence of the river networks as a component of regional groundwater vulnerability assessment in Slovenia. .International conference on groundwater vulnerability assessment and mapping. Ustroń, Poland, 15-18 June 2004., Poland 15 to 18 June 2004.
- Nowak C. et Mardhel V, 2005 - Croisement des données des sites pollués, ou susceptibles de l'être, de l'outil BASOL et des données sur les nappes du bassin Seine-Normandie, rapport intermédiaire BRGM/RP-53253-FR.
- Prud'homme R., 1972 - Analyse morphostructurale appliquée en Aquitaine occidentale et au golfe de Gascogne - Définition d'une méthodologie cartographique interprétative, Thèse, Université Bordeaux I, 364 pages, 1972.
- Razianoff S. 1989- Extraction et analyse automatique des réseaux à partir de MNT, Thèse, Université Paris VII, 89 pages, 1989.
- Schnebelen N., Platel J.P., Le Nindre Y.M., et Baudry D et al 2002 – Gestion des eaux souterraines en Aquitaine Année 5. Opération sectorielle. Protection de la nappe de l'Oligocène en région bordelaise – Rapport BRGM/RP-51178-FR.
- Zaporozec A., and Vrba J., 1994 – Classification and review of groundwater and vulnerability maps. In Vrba and Zaporozec (Editors), Guidebook on mapping Groundwater vulnerability. IAH, Verlag Heinz Heise, Hannover, pp.21-19.

Posters

DARCY 22

Urban hydrogeological mapping of the Porto area (NW Portugal): a geoenvironmental perspective

AFONSO Maria José ^{1,2}, MARQUES José M. ³, GUIMARÃES Laura ⁴, COSTA Isilda ^{2,1},
TEIXEIRA José ², SEABRA Clara ¹, ROCHA Fernando T. ²,
GUILHERMINO Lúcia ^{4,5} and CHAMINÉ Helder I. ^{1,2}

¹ Dep. Eng. Geotécnica, ISEP, R. Dr. A. Bernardino Almeida,
431, 4200-072, Porto, Portugal, *mja@isep.ipp.pt*

² Centro de Minerais Industriais e Argilas, Univ. Aveiro, Aveiro, Portugal, *frocha@geo.ua.pt*

³ Dep. Eng. de Minas e Georrecursos, IST, Lisboa, Portugal, *jmmarques@mail.ist.utl.pt*

⁴ CIIMAR, Laboratório de Ecotoxicologia, Porto, Portugal, *Iguimaraes@cimar.org*

⁵ ICBAS, Dep. Estudos de Populações, Lab. Ecotoxicologia, Univ. Porto, Porto, Portugal,
Iguilher@icbas.up.pt

Abstract

This study highlights the importance of urban hydrogeological mapping, under a geoenvironmental perspective, as well as the vital significance of an inventory of potential surface contamination sources, as useful tools for understanding the potential contamination of Porto City groundwater systems (NW Portugal, Iberian Massif). Paranhos spring horizontal galleries catchworks (Arca D'Água sector; ca. 1km extension and a -20m of depth) constituted for more than five centuries one of the main water supplies to Porto city and, nowadays, these waters may be still appropriate for irrigation uses. Therefore, the following steps were performed: i) for the characterisation of the underground area, constituted mainly by granitic rocks, subsurface geological and hydrogeological mapping were applied; ii) hydrogeological, hydrogeochemical and ecotoxicological techniques were used for the description of groundwater; iii) potential sources of groundwater contamination were registered and mapped in the surrounding areas of the galleries catchworks.

Introduction

Urbanization has increasingly intensified in the last few decades and now some 50% of the world's population lives in urban centres (Foster 1996, 1997, Chilton 1997). Urban geology is an interdisciplinary field in geo- and socio-economic sciences addressing Earth-related problems in urbanised areas. Apart from the more traditional disciplines such as geological mapping, structural geology and geomorphology, some interdisciplinary fields such as hydrogeology, engineering geology, and environmental geology play a dominant role in urban geosciences. Geology exercises critical control over most phases of water use and procurement so that, without adequate geological information, planning in respect of water cannot be carried out effectively and may even, in extreme cases, be bad planning (Legget 1973).

Since water is an integral part of the environment, the hydrogeology of cities can be seen as a vital key to all successful urban planning. A city cannot exist without water and obtaining it in sufficient quantity and good quality, both for domestic and industrial use, is a primary civic service. Urbanization has deep and awful impacts on the hydrological cycle, at different scales. The urban subsurface is a network of pipes, conduits and other structures that alter the natural hydraulic conductivity of the geologic materials. Those infrastructures were dug to faci-

litate transportation, drainage, sewerage and a water supply system for the population. Aquifers characterised by the presence of abundant, but vulnerable groundwater, are in many cases located below major cities, where the poor knowledge of aquifer characteristics, uncontrolled exploitation and indiscriminate effluent and waste disposal practices contribute to groundwater resources degradation (e.g., Foster 1996, Custodio 1997, Morris et al. 1997, Foster et al. 1999, Chilton 1999, Lerner 2004, Zaadnoordijk et al. 2004).

Groundwater quality is threatened mainly by human activities, although harmful substances are sometimes introduced by natural processes. Sustainable groundwater management must be based not only on prevention of the overexploitation of groundwater resources but also on prevention of contamination because the latter, unlike treatment at the point of use, protects the whole resource. The sources and causes of groundwater contamination are numerous, and are as diverse as human activities (e.g., Fetter 1993, Vrba and Zaporozec 1994, Eaton and Zaporozec 1997, Zaporozec and Miller 2000, Zaporozec 2004). With the growing number of potential contamination sources, attempts to classify them have also been increasing. Agencies and scientists in the field of groundwater contamination have often followed their own categorisation. A large number of source classification methods have been developed and sub-classifications have also been prepared (Zaporozec 2004).

In contrast to topographic and geographic maps which are generally well appreciate, the value of thematic maps (hydrogeological maps included) is often disputed. Hydrogeological maps can be very powerful tools for conveying information, particularly for planning and management as well as for education and public information (Struckmeier and Margat 1995). Hydrogeological maps which give a picture of groundwater related information have been around for many years. Examples of such maps are plentiful (e.g., UNESCO 1983, Struckmeier et al. 1986, Struckmeier 1989, Struckmeier and Margat 1995, NRC 1997). The tendency for hydrogeological maps is to have a large central base map showing some hydrogeological variables. On such maps the results of surveys of potential subsurface contaminant load can be superimposed, to facilitate the assessment of groundwater pollution hazard. Well-executed fieldwork is the key to obtain reliable and good quality data needed for an understanding of the basic geology and hydrogeology of the site and of the types of contaminants and their behaviour in the subsurface (Zaporozec 2004).

In this work, pilot hydrogeochemical and ecotoxicological analyses conducted to assess the quality of Paranhos spring galleries catchworks further raised the need to ascertain the potential sources of contamination of this groundwater. Hence, using a GIS technique, an inventory of surface contamination sources of this aquifer was generated, based both on the character and the source characterisation by origin. This methodology proved valuable in deepening our understand of the susceptibility of Porto City (NW Portugal, Iberian Massif) groundwater systems. In addition, it can provide guidelines for the planning and management of water resources in an equitable, sustainable and ethical manner.

Geological and hydrogeological setting

Porto city is the capital of the second biggest urban area in Portugal, having an area of ca. 42 km² and a population of 260.000 inhabitants. Porto is located on the banks of the Douro River, in Northern Portugal, being one of the oldest cities in Europe. The history of Porto City dates back at least to the 6th century, since the days of Suevians. The conquest of the so-called *Portucale*, the previous designation for the Porto area, in 868 A.D. is duly considered as an event of the most ancient history of Porto. However, as of 868 A.D. it became the centre of the movement of Christians re-conquest of Iberian Peninsula (Oliveira Marques 1972). The Porto City became an important conurbation since the 12th century and has been developed on granitic hill slopes of Douro riverside.

Porto urban area is located in a complex geotectonical domain of the Iberian Massif — on the so-called Ossa-Morena Zone and Central-Iberian Zone boundary (Ribeiro et al. 1990) — alongside the western border of the Porto–Coimbra–Tomar shear zone (Chaminé 2000, Chaminé et al. 2003). Araújo et al. (2003) pointed out that the geomorphologic configuration of this region consists of a littoral platform characterised by a quite regular planation surface dipping gently to the West, culminating around 120m a.m.s.l., and East bounded by a series of hill ridges (250-300m a.m.s.l. on the top). The regional fracture network defines some preferential orientations: NNW-SSE is dominant, and more discreetly, NE-SW; while the predominant dip of the discontinuities is vertical to sub-vertical. The regional geotectonic framework of Porto urban area (e.g., Sharpe 1849, Barata 1910, Carrington da Costa 1958, Almeida 2001, Chaminé et al. 2003, and references therein) comprises a crystalline fissured basement complex of high-deformed and overthrusted Late Proterozoic/Palaeozoic metasedimentary rocks and granites.

The crystalline bedrock of the study area consists mainly of granitic rocks, representing the so-called Porto granite facies (Almeida 2001): two-micas, medium to coarse grained, deformed, greyish in colour, changing to yellowish when weathered. The granitic facies in this area is, generally, weathered to different grades, from fresh-rock to residual soil, showing highly variable conditions, resulting in arenisation and kaolinisation, which may reach depths of more than 100m (e.g., Begonha 2001, Gaj et al. 2003). The local fracture network is intense and defines some preferential orientations: NNE-SSW to NE-SW, namely N20°-30°E, with a dip of 70°-80° towards NW. Several fault sets were also recognised with a mean orientation of NE-SW, N-S and a sub-horizontal set.

The regional hydrogeological units described in Porto metropolitan area are presented in figure 1 and table 1, facing their future use as an important tool for the sustainable management of local water resources. The negative impact on the quality of groundwater resources can take considerable time to be detected, since the response time of groundwater systems is the longest of all components of the urban hydrological cycle. Thus, in these areas, hydrogeological data acquisition namely morphotectonical and geological, is, generally, the key to predict the possible negative impacts of surface water–groundwater interaction. The intensity of the impacts is usually dependent on the susceptibility to pollution of underlying aquifers and directly connected with the type and stage of urban development.

For more than five centuries, the water supply of Porto city was possible through fountains which were fed by numerous springs (e.g., Bourbon de Noronha 1885, Ferreira da Silva 1889, Fontes 1908, Afonso 2003). Several underground galleries were excavated throughout the last five centuries for conduct the water of these springs. Paranhos spring collection chambers constituted one of the main galleries.

Methodology

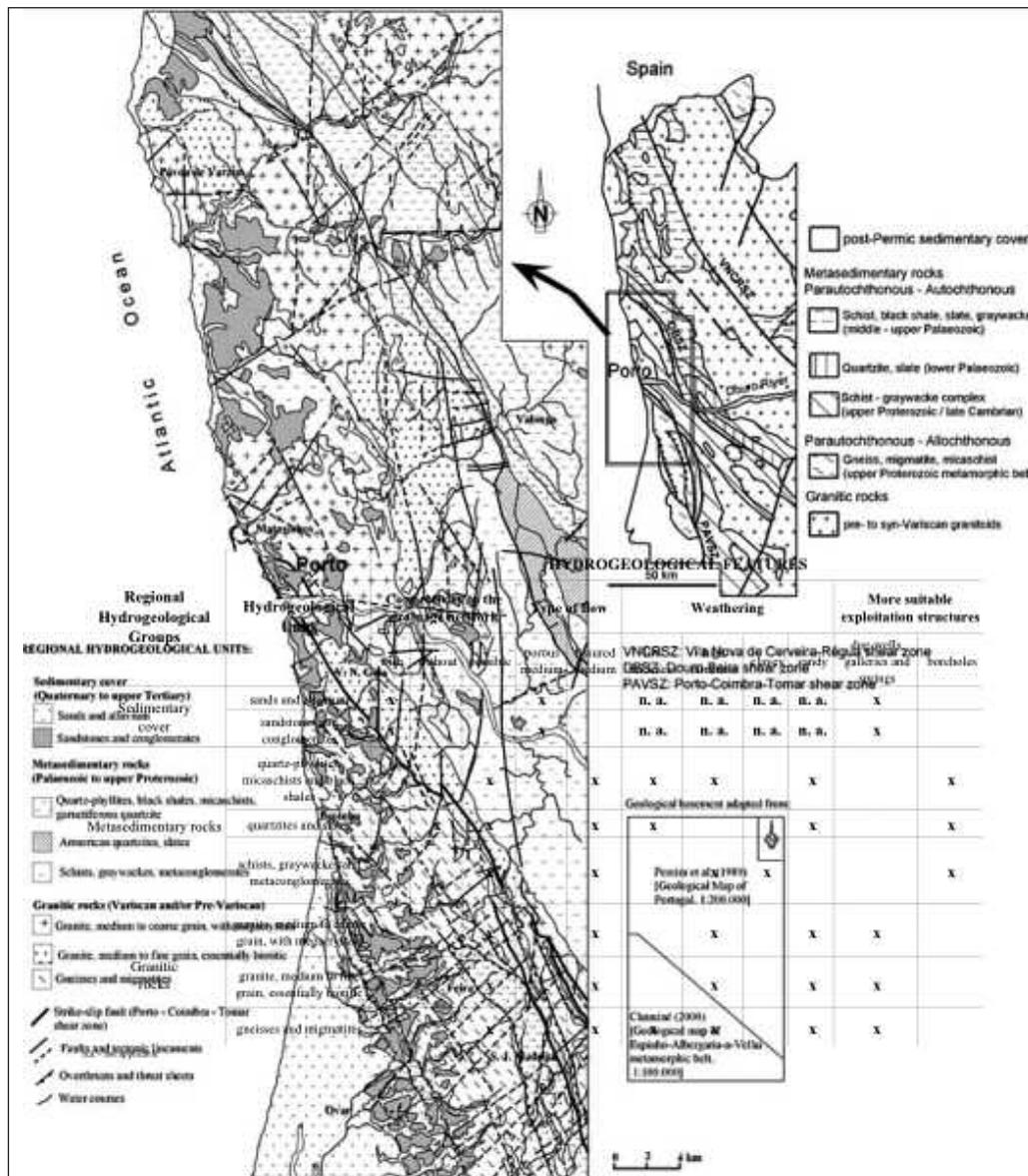


Figure 1: Regional hydrogeological setting from Porto metropolitan area (geological background adapted from Pereira et al. 1989, Chaminé 2000 and Chaminé et al. 2003).

Regional Hydrogeological Groups	Hydrogeological Units	HYDROGEOLOGICAL FEATURES										
		Connectivity to the drainage network			Type of flow		Weathering				More suitable exploitation structures	
		with	without	possible	porous medium	fissured medium	low thickness	high thickness	clayey	sandy	dug-wells, galleries and springs	boreholes
Sedimentary cover	sands and alluvium	x			x		n. a.	n. a.	n. a.	n. a.	x	
	sandstones and conglomerates	x			x		n. a.	n. a.	n. a.	n. a.	x	
Metasedimentary rocks	quartz-phyllites, micaschists and black shales			x		x	x	x		x		x
	quartzites and slates		x	x		x	x			x		x
Granitic rocks	granite, medium to coarse grain, with megacrystals			x		x		x		x		x
	granite, medium to fine grain, essentially biotitic			x		x		x		x		x
	gneisses and migmatites			x		x	x	x		x		x

n.a.= not applicable

Table 1: Regional hydrogeological units and related features in the Porto metropolitan area (see figure 1).

In order to assess and understand the potential anthropogenic and natural contamination of Porto City groundwater systems, namely Paranhos spring horizontal galleries catchworks, this work took advantage of a geoenvironmental approach, where hydrogeological mapping and an inventory of surface potential contamination sources were used as fundamental tools. For this purpose, the following steps were performed:

- i) Subsurface geological/geotechnical and hydrogeological mapping (scale: 1/1.000) was done for the characterisation of the Paranhos underground area (Arca D'Água sector), using the methodologies and techniques proposed by CFCFF (1996) and Assaad et al. (2004).
- ii) Description of groundwater quality, by using hydrogeochemical and ecotoxicological (Cooney 1995, OECD 2000) analyses. Hydrogeological fieldwork campaigns were performed and *in situ* determinations included: temperature (°C), pH and electrical conductivity (µS/cm). The hydrochemical analyses were acquired at "Centro de Estudos de Águas / ISEP" (Porto, Portugal). Sixteen sampling sites were established for hydrogeochemical and ecotoxicological evaluation. All water samples have been analysed for major element concentrations. For the ecotoxicological evaluation, standard acute bioassays with *Daphnia magna* (EPA 1993, OECD 2000) were carried out. Experiments were performed according to the methodology described in (Guilhermino et al. 1996). In brief, all bioassays were carried out with animals from a single clone (clone A, *sensu* Baird et al. 1989) and initiated with third to fifth brood neonates (<24 h old). Test medium was ASTM without organic additive; the organisms were not fed during the tests. The photoperiod was 16 h L:8 h D and the temperature was 20 ± 1 °C. Twenty animals were used per treatment, in groups of 5 per 100 ml of test solution in a glass flask. In each bioassay, five test solutions of groundwater, with a concentration factor equal or less than 2 between them, plus a control solution (100% dilution water) were prepared by dilution of the original sample with ASTM hard water. For col-

lected samples showing pH values outside the range 7-9, two tests were simultaneously performed: one with pH correction and another without pH correction. Each test had duration of 48 h. The measured effect was death recognised by immobilisation of the organisms during 15 s after stimulation by a bright light. Temperature and photoperiod were as described above. In all test vessels, pH, temperature, and conductivity were measured at the starting of the test, and after 24 and 48 h.

- iii) In what concerns to groundwater degradation conditions, potential sources of groundwater contamination occurring in the surrounding areas of the galleries catchworks were registered and mapped. This approach was further refined through the application of geographical information system (GIS) tools. A GIS is a powerful computer-based tool for integrating and analysing data obtained from a wide range of sources (Zaporozec 2004).

Results

Geological and hydrogeological mapping

The characterisation of the underground area (ca. 1km long and a -20m of depth), constituted mainly by granitic rocks, was done by means of subsurface geological/geotechnical and hydrogeological mapping (scale: 1/1.000). For the structural geology and geotechnical characterisation, the scanline sampling technique of discontinuities has been applied to the deformed granitic rock-mass faces from Paranhos spring galleries. Surface and subsurface geological fieldwork surveys allowed to identify major tectonic accidents responsible for groundwater circulation paths and to assess lithological and structural heterogeneity (see figure 2).

Hydrogeochemical and ecotoxicological assessment

From a hydrogeochemical point of view, most of the sampled groundwaters presented near-neutral pH values (median = 6.78), being the lowest rate 5.35 and the highest 7.9. Regarding the electrical conductivity, most of the samples presented medium electrical conductivities (median = 434 $\mu\text{S}/\text{cm}$), being the minimum value 405 $\mu\text{S}/\text{cm}$ and the maximum 530 mS/cm . Concerning chemical signatures, the studied groundwaters show a wide range; Ca^{2+} followed by Na^+ dominates cations and anions are dominated by SO_4^{2-} and Cl^- . By observing the Piper diagram of figure 3, one can conclude that most of the groundwaters are "mixed" $\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}^-$ - $\text{Ca}^{2+}/\text{Na}^+$ waters. Besides major elements, all water samples have been analysed for minor constituents, such as nitrate. According to the Portuguese and European legislations, the majority of these samples exceed the maximum admissible value (50mg/L) for this element. The SAR (sodium adsorption ratio) plot of groundwater chemistries showed that these waters induce a medium salinity and low sodium concentrations.

Concerning the results of the ecotoxicological evaluation of Paranhos groundwater, within all test vessels pH, temperature, and conductivity variation was always lower than 1 unit. Mortality recorded in control solutions was less than 5% (Figure 4, upper left). No mortality was recorded at the lowest concentrations of groundwater tested in any of the tests performed, whereas occasional lethality, always around or below 10%, was recorded at concentrations greater than 25% effluent (Figure 4). The low mortality observed within the groundwater concentrations tested, occurred usually in the tests without pH correction, and was no longer observed in the corresponding pH corrected tests (Figure 4, upper and lower right).

These results are in good agreement both with the low pH values registered at some sample sites and the high sensitivity exhibited by *Daphnia magna* to acidic environments (Peters, 1987).

Contamination source inventory

The former results led us to inquire which potential sources of contamination could explain the high content in nitrates and sulphates of this groundwater. In order to assess the existing or potential impacts of human activities on groundwater, we therefore proceeded by documenting all existing and potential sources of contamination æ their location, type, characteristics, and estimated magnitude of impact on groundwater æ in the surrounding area of Paranhos spring galleries catchworks. The inventory of contamination sources included three major phases: i) recording of elements of inventory design; ii) inventory implementation; and iii) evaluation and analysis of the elements of the groundwater contamination inventory. Indeed, an assessment of both the existing and potential sources of contamination and the spatial extent of the existing groundwater contamination is needed before considering methods to monitor and prevent future groundwater quality problems. In this paper, a classification of the contamination sources based on character (Table 2), i.e. point, line and diffuse sources, was used, although the source categorisation by origin has also been applied (Zaporozec 2004). On the map of Figure 5, the contamination sources and the areas of existing contamination were labelled according to whether they have been rated high, moderate, or low. A letter indicates the rating of the potential contamination source: H - high, M - moderate, and L – low. All identified contamination sources are summarised in table 2 and figure 5.

Discussion

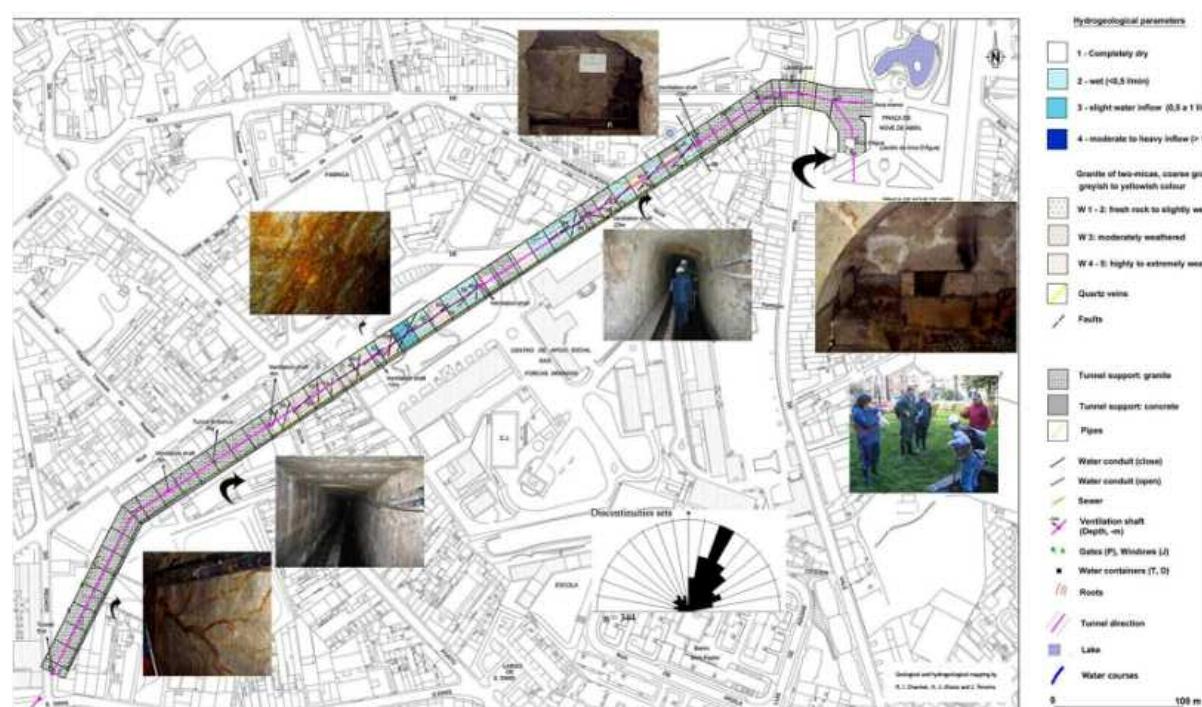


Figure 2: Hydrogeological mapping of the Paranhos spring galleries catchworks, Arca d'Água sector. The structural diagram (inferior right) shows the main discontinuities sets orientation ($n=344$).

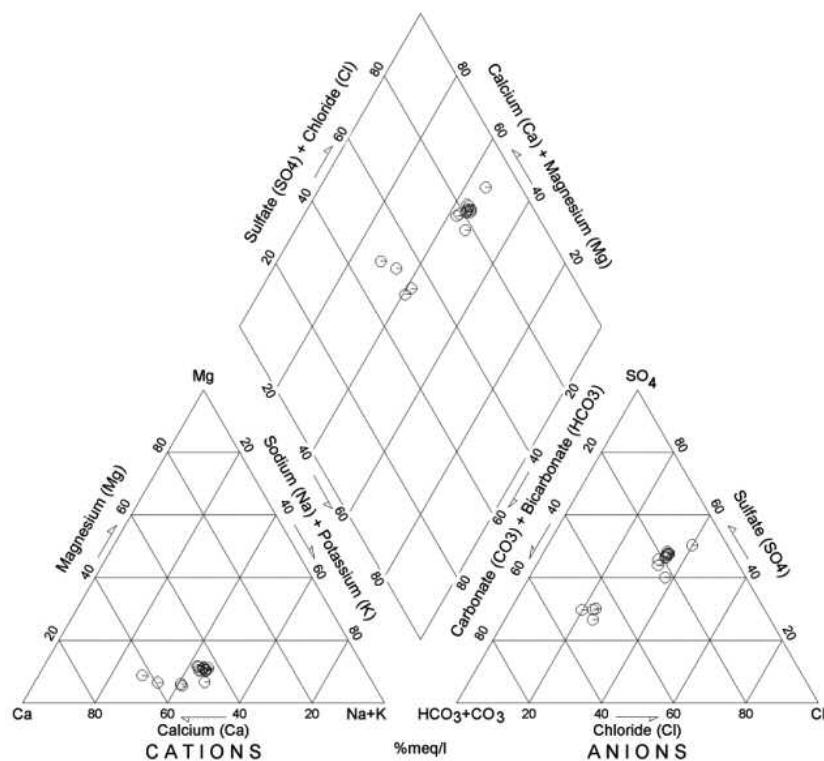


Figure 3 : Piper diagram for water samples collected from Paranhos spring galleries catchworks, Arca D'Água sector (Porto city).

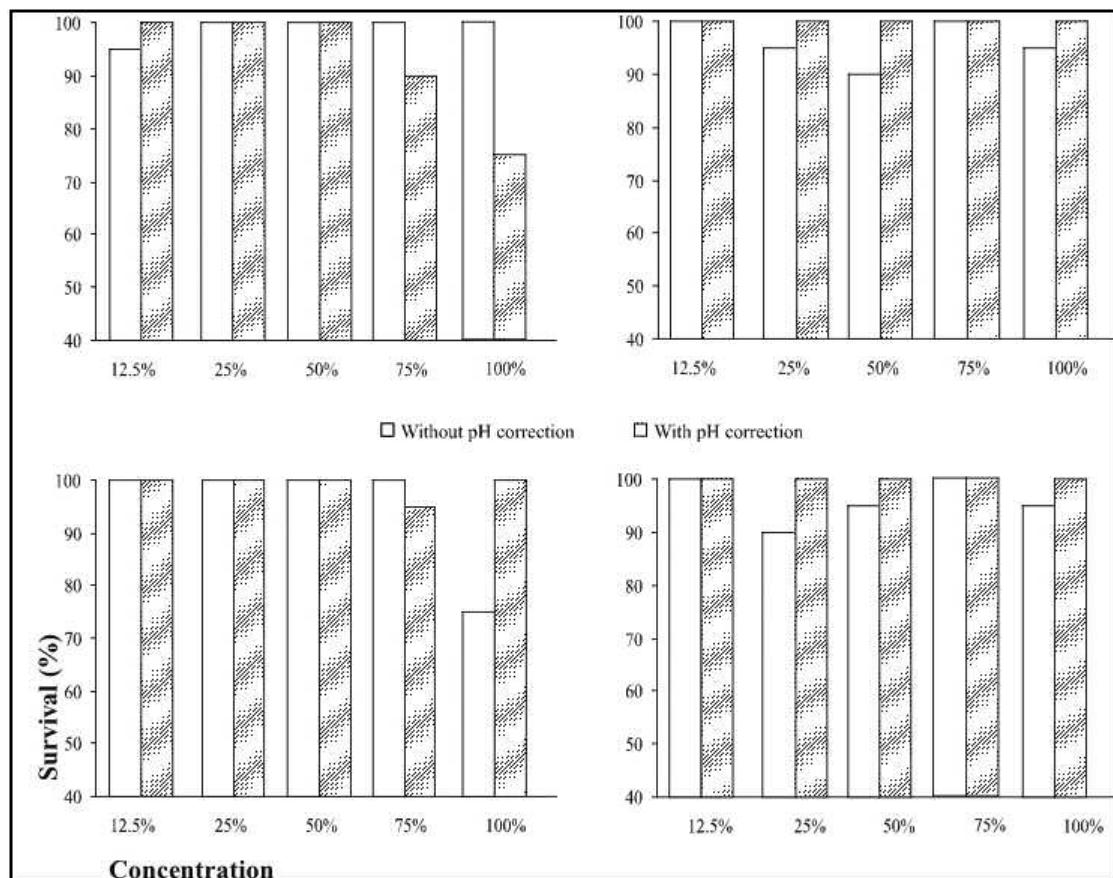


Figure 4: Results obtained for four of the acute bioassays performed to assess the ecotoxicological quality of Paranhos groundwater, Arca D'Água sector (Porto city).

Category	Source type	Usual character: point (P); line (L); diffuse (D)	Inventory numbers	Potential groundwater contamination load: H (high), M (moderate), L (low)
Agriculture	Public garden with pond	D	7	M-H
	Public garden	D	11	M
Urbanisation	On-site sanitation	P	9, 33	M
	Hospital	P	15, 16	
	Ventilation shaft	P	18, 19, 23, 30, 31, 32	
	Spring galleries entrance	P	24, 25, 26, 28, 29, 34, 35	
Industry	Garage	P, L	1, 2, 3, 5, 6, 8, 12, 14, 22	H
	Metallurgy	P	10	M
	Petrol station	P, L	27	H
	Cable wire factory	P	13	M
Water mismanagement	Production well	P	20	M-H
	Abandoned well	P	21	
Miscellaneous	Riding school	D	4	M-H
	Artificial lake	D	17	
	Watercourse canalized	L	36	
	Spring galleries	L	37	H

Table 2: Groundwater potential contamination sources around Paranhos spring galleries catchworks, Arca d'Água sector.

The hydrogeochemical analyses performed in this work have shown that this groundwater is nitrate and sulphate-enriched, being unsuitable for human consumption. Nevertheless, the SAR plot of groundwater chemistries permitted to conclude that these waters induce a medium salinity and a low sodium hazard for irrigation purposes.

Standard acute bioassays are widely used test methods for the toxicity assessment and monitoring of groundwater (e.g., EPA 1993, Connon et al. 2003, Dewhurst et al. 2002). These tests provide rapid information on the degree of pollution present in the groundwater and the potential effect of that pollution on indicator or surrogate organisms. Typically, their result is the determination of the median lethal concentration (LC50), i.e., the concentration that causes a mortality of 50% of the tested organisms (Cooney 1995) in the specific conditions of the bioassay. In spite of the high nitrate and sulphate concentrations found, no considerable mortality was observed in any of the acute bioassays performed, suggesting a low toxicity potential for this groundwater. The results obtained so far do not discard, however, the possible occurrence neither of more subtle effects on organisms, such as changes in growth and/or reproduction, nor of seasonal patterns of toxicity, eventually associated with climate changes and/or human activities.

These earlier pilot studies raised concern on which potential contamination sources could contribute to explain the results obtained so far. To answer this question we developed a potential contamination source inventory, which provided a precious basis for planning the quality assessment of Paranhos spring galleries catchworks, especially when cross-linked with the regional and local hydrogeological settings and the structural geology and geotechnical characterisation. In agreement with the methodology adopted, most of the contamination sources were mapped as of point character; nevertheless some of the sources were considered as diffuse and line. Results of the contamination source inventory indicated that the greatest poten-

tial problems are the leaking underground storage tanks, spills of hazardous materials (mostly concentrated along main roads and streets), garages, ventilation shafts, and latrines. Also several abandoned domestic wells are expected to be within areas now served by municipal water systems. Individual on-site septic systems were not inventoried. The most difficult part of the inventory was the identification of abandoned wells. As the public water systems were built and their areas expanded, these domestic wells were often abandoned without being properly closed and sealed. In the case of subsurface contaminant load, the largest and most sophisticated facilities are not necessarily the ones which generate the largest subsurface contaminant load and the highest groundwater contamination risk. This is because their chemical handling and effluent disposal practices are more carefully controlled and monitored. Equal or greater concern is associated with small services, and activities, because they are widely disseminated, often use considerable quantities of potentially toxic groundwater contaminants, and their effluent disposal practices may not be subject to strict control. Specifically, geoenvironmental and ecotoxicological studies are required to assess potential variations in water composition and toxicity associated with seasonal changes in climate and human activities.

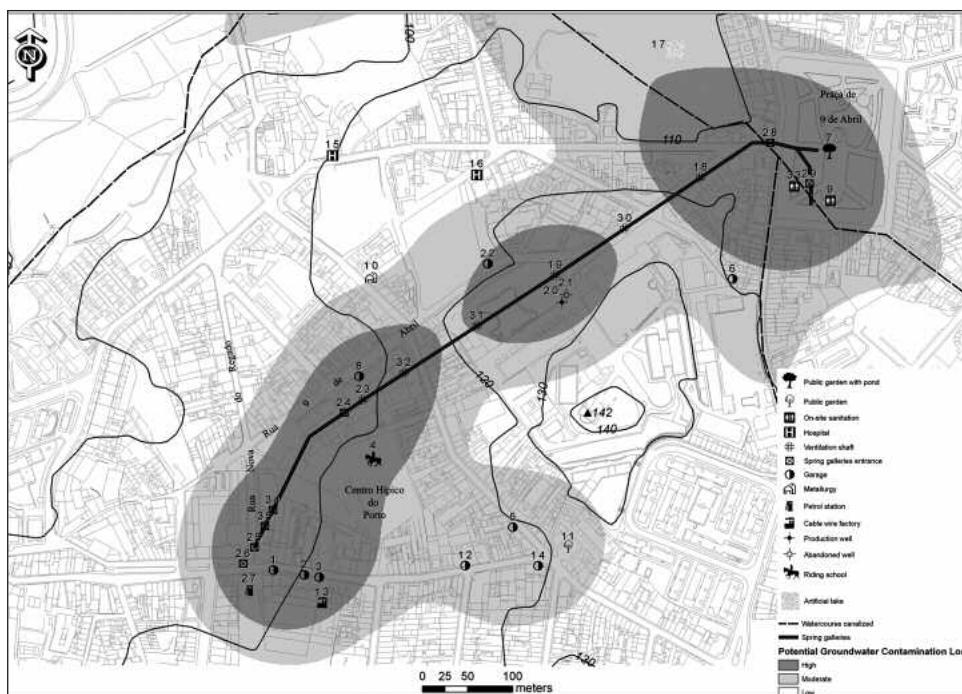


Figure 5 – Sketch of groundwater potential contamination sources around Paranhos spring galleries catchments, Arca d'Água sector (topographic contour interval = 10 m).

Concluding remarks

The delineation of the potential problematic areas was not intended to suggest that these were the only areas where potential groundwater quality problems may occur. All inventoried contamination sources have to be considered as having a potential to contaminate groundwater. The map of potential problematic areas was projected only as a planning tool to prioritise the possible problems and to indicate which areas should be addressed first in a regional water quality management plan. To avoid misinterpretation, it is important to stress that the developed method is qualitative and should be used as a planning and screening tool and that it cannot replace site-specific, detailed investigations. Indeed, the local approach methodology described above is regarded as the first step in the evaluation of groundwater contamination risk assessment, and is intended to prioritise areas, but not to substitute for systematic field

inspection and monitoring. In concretisation of these concepts, the inventory of potential contamination sources presented herewith will next be used to plan additional hydrogeochemical and ecotoxicological campaigns required to assess variations in water composition and toxicity impeding from seasonal changes in climate and human activities.

Geoengineering multidisciplinary approaches probably offer the best potential for reliable groundwater and surface water studies and for assessment of geospatial parameters' variability, such as, lithological heterogeneity, structural geology features, hydrogeology and hydrobiology of a specific site. So, the combination of hydrogeological and ecotoxicological consistent local data, GIS technology offers promise for a better understanding over large urban areas.

Acknowledgments

This study was performed under the scope of the *GROUNDURBAN – Urban groundwater and environmental management in the Northwest Portugal R&D Project* granted by the Portuguese Foundation for Science and Technology (FCT) and FEDER EU funds, contract POCTI/CTE-GIN/59081/2004. Special acknowledgements are due to V. Beleza (*Centro de Estudos de Águas, ISEP, Porto*) for his support on the hydrochemical analyses.

References

- Afonso MJ (2003) Hidrogeologia de rochas graníticas da região do Porto (NW de Portugal) [Hydrogeology of granitic rocks from Porto region (NW Portugal)]. Cadernos Laboratório Xeolóxico de Laxe, Coruña, 28:173-192.
- Almeida A (2001) Caracterização geoquímica e geocronológica do granito de duas micas sintectónico do Porto (NW de Portugal) [Geochemical and geochronological characterization of the syntectonic two-mica granite of Porto (NW Portugal)]. In: Proceedings IIIer Congreso Ibérico de Geoquímica. Instituto Tecnológico de Aragón, Zaragoza, pp. 311-315.
- Araújo MA, Gomes A, Chaminé HI, Fonseca PE, Gama Pereira LC, Pinto de Jesus A (2003) Geomorfologia e geologia regional do sector de Porto-Espinho (W de Portugal): implicações morfoestruturais na cobertura sedimentar Cenozóica [Regional geomorphology and geology from the Porto-Espinho sector (W Portugal): morphostructural implications to cenozoic sedimentary cover]. Cadernos Laboratório Xeolóxico de Laxe, A Coruña, 28:79-105.
- Assaad FA, LaMoreaux PE, Hughes TH, Wangfang Z, Jordan H (2004) Field methods for geologists and hydrogeologists. Springer-Verlag.
- ASTM - American Society for Testing and Materials (1980) Standard practice for conducting acute toxicity tests with fishes, macroinvertebrates and amphibians. Report E - 790-80. American Society for Testing and Materials, Philadelphia.
- Baird DJ, Soares, AMVM, Girling A, Barber I, Bradley M, Calow P (1989) The long-term maintenance of *Daphnia magna* Straus for use in ecotoxicity tests: problems and prospects. In: Lokke H, Tyle H, Bro-Rasmussen F (eds), Proceedings First European Conference on Ecotoxicology, Lyngby, pp. 144-148.
- Barata JMP (1910) Contribuição para o estudo das rochas do Porto [Contribution to the study of the Porto rocks]. Faculdade de Philosophia Natural. Coimbra.
- Begonha A (2001) Meteorização do granito e deterioração da pedra em monumentos e edifícios da cidade do Porto [Granite weathering and stone deterioration in monuments and buildings of the Porto city]. Coleção monografias, FEUP Edições, Porto, 2:1-445.
- Bourbon e Noronha T (1885) As águas do Porto [Porto waters]. Dissertação inaugural apresentada à Escola Médico-Cirúrgica do Porto. Typ. Occidental, Porto.
- Carrington da Costa J (1958) A geologia da região portuense e os seus problemas [Porto region geology and their problems]. Boletim Academia Ciências Lisboa, 30:36-58.
- Chaminé HI (2000) Estratigrafia e estrutura da faixa metamórfica de Espinho-Albergaria-a-Velha

(Zona de Ossa-Morena): implicações geodinâmicas [Stratigraphy and structure of the Espinho-Albergaria-a-Velha metamorphic belt (Ossa-Morena Zone): geodynamic implications]. Faculdade de Ciências da Universidade do Porto. (PhD Thesis)

- Chaminé HI, Gama Pereira LC, Fonseca PE, Noronha F, Lemos de Sousa MJ (2003) Tectonoestratigrafia da faixa de cisalhamento de Porto–Albergaria-a-Velha–Coimbra–Tomar, entre as Zonas Centro-Ibérica e de Ossa-Morena (Maciço Ibérico, W de Portugal) [Tectonostratigraphy of the Porto–Albergaria-a-Velha–Coimbra–Tomar Shear Zone between Central-Iberian and Ossa-Morena Zones (Iberian Massif, W Portugal)]. Cadernos Laboratório Xeológico de Laxe, A Coruña 28: 37-78.
- Chilton J (1997) Groundwater in the urban environment: selected city profiles. A. A. Balkema.
- Chilton J (1999) Groundwater in the urban environment: problems, process and management. A. A. Balkema.
- CFCFF - Committee on Fracture Characterization and Fluid Flow 1996. Rock fractures and fluid flow: contemporary understanding and applications. National Research Council, National Academy Press, 568 pp.
- Connon R, Dewhurst RE, Crane M, Callaghan A (2003) Haem peroxidase activity in *Daphnia magna*: A biomarker for sub-lethal toxicity assessments of kerosene-contaminated groundwater. Ecotoxicology, 12 (5): 387-395.
- Cooney JD (1995) Freshwater tests. In: Rand, GM (ed), Aquatic toxicology: effects, environmental fate, and risk assessment (2nd edition), London, pp. 71-102.
- Custodio E (1997) Groundwater quantity and quality changes related to land and water management around urban areas: Blessings and misfortunes. In Chilton et al. (eds.) Proceedings of the 27th IAH Congress on Groundwater in the urban environment: Problems, processes and management. Balkema, Rotterdam, 1: 11-22.
- Dewhurst RE, Wheeler JR, Chummun KS, Mather JD, Callaghan A, Crane M (2002) The comparison of rapid bioassays for the assessment of urban groundwater quality. Chemosphere, 47 (5): 547-554.
- Eaton TT, Zaporoze A (1997) Evaluation of groundwater vulnerability in an urbanizing area. In: Chilton, J. et al. (eds.), Groundwater in the Urban Environment, Volume 1, Problems, processes and management. A. A. Balkema, Rotterdam, pp. 577–82.
- EPA - Environmental Protection Agency (1993) Methods for measuring the acute toxicity of effluents and receiving waters to freshwater and marine organisms, 4th edition, Office of Research and Development, Washington, DC, EPA/600/4-90/027F.
- Ferreira da Silva AJ (1889) Contribuições para a hygiene da cidade do Porto [Contributions to the hygiene of the Porto city]. Typ. António José da Silva Teixeira, Porto.
- Fetter CW (1993) Contaminant hydrogeology. Macmillan Publishing Comp., New York, NY, USA.
- Fontes A (1908) Contribuição para a Hygiene do Porto: Analyse sanitaria do seu abastecimento em água potável. I. Estudo dos Mananciais de Paranhos e Salgueiros [Contributions to the hygiene of the Porto city: sanitary analysis for the potable water-supply. I. Study of the Paranhos and Salgueiros springs]. Dissertação inaugural apresentada à Escola Médico-Cirúrgica do Porto. Typ. Encyclopedia Portugueza, Porto.
- Foster S (1996) Groundwater quality concerns in rapidly-developing cities. In: Guswa JH (ed.), Hydrology and hydrogeology of urban and urbanizing areas. American Institute of Hydrology, St. Paul. pp. MIU12-MIU26.
- Foster S (1997) The urban environment. Evaluation of hydrological changes and their consequences. In: Proceedings of an International Symposium on Isotope Techniques in the Study of Past and Current Environmental Changes in the Hydrosphere and the Atmosphere. International Atomic Energy Agency, Vienna, pp. 321-338.
- Foster S, Morris B, Lawrence A, Chilton J (1999) Groundwater impacts and issues in developing cities: an introductory review. In: Chilton (eds.), Proceedings of the 27th IAH Congress on Groundwater in the urban environment: Selected cities profiles. Balkema, Rotterdam, 21:3-16.
- Gaj F, Guglielmetti V, Grasso P, Giacomin G (2003) Experience on Porto: EPB follow-up. Tunnels & Tunnelling International, pp. 15-18.
- Guilhermino L, Lopes MC, Carvalho AP, Soares AMVM (1996) Inhibition of acetylcholinesterase activity as effect criterion in acute tests with juvenile *Daphnia magna*. Chemosphere, 32(4): 727-738.
- Legget RF (1973) Cities and geology. McGraw-Hill, New York.
- Lerner D (2004) Urban groundwater pollution. A. A. Balkema.
- Morris BL, Lawrence AR, Foster SD (1997) Sustainable groundwater management for fast-growing

cities: mission achievable or mission impossible?. In: Chilton et al. (eds.), Proceedings of the 27th IAH Congress on Groundwater in the Urban Environment: Problems, processes and management. Balkema, Rotterdam, 1: 55-66.

- NRC - National Research Council (1997) Valuing ground water: economic concepts and approaches. Nat. Academy Press, Washington, DC, USA, 189 pp.
- OECD - Organisation for Economic Co-operation and Development (2000). OECD Guidelines for testing of chemicals – Revised protocol for updating Guideline 202 – Daphnia sp. Acute Immobilisation Test.
- Oliveira Marques AH de (1972) History of Portugal. Vol. 1: from Lusitania to Empire. Columbia University Press, New York.
- Pereira E, Ribeiro A, Carvalho GS, Noronha F, Ferreira N, Monteiro JH (1989) Carta Geológica de Portugal, escala 1/200.000. Folha 1 [Geological Map of Portugal, scale 1/200.000, Sheet 1]. Serviços Geológicos de Portugal, Lisbon.
- Peters RH (1987) Daphnia culture. In: Peters RH, de Bernardi R (eds), Daphnia. Memorie Dell'istituto Italiano di Idrobiologia Dott. Marco de Marchi, 45: 483-495.
- Ribeiro A, Quesada C, Dallmeyer RD (1990) Geodynamic evolution of the Iberian Massif. In: Dallmeyer RD and Martínez-García E (eds.) Pre-Mesozoic Geology of Iberia, Berlin, Heidelberg. Springer-Verlag. pp. 397-410.
- Sharpe D (1849) On the Geology of the neighbourhood of OPorto, including the Silurian coal and slates of Vallongo. Quart. Journ. Geol. Soc. London Proceedings, 5:142-153.
- Struckmeier W (1989) Types and uses of hydrogeological maps. IAH, Mem. Intern. Symp. on Hydrogeological Maps as Tools for Economic and Social Development, Hannover, pp. 17–30.
- Struckmeier WF, Margat J (1995) Hydrogeological maps: a guide and standard legend. IAH, Intern. Contr. to Hydrogeology, Vol. 17. Heise, Hannover.
- Struckmeier W, Engelen GB, Galitzin MS, Shakchnova RK (1986) Methods of representation of water data. In: Engelen GB and Jones GP (eds.), Developments in the Analysis of Groundwater Flow Systems, IAHS Publ. 163, pp. 47–63.
- UNESCO (1983) International legend for hydrogeological maps. Revised Edition, Unesco, Paris.
- Vrba J, Zaporozec A (1994) Guidebook on mapping groundwater vulnerability. Verlag Heinz Heise, Hannover, Germany, International Contributions to Hydrogeology, Vol. 16. Heise, Hannover.
- Zaadnoordijk WJ, van den Brink C, van den Akker C, Chambers J (2004) Values and functions of groundwater under cities. In: Lerner DN (ed.), Urban groundwater pollution, A. A. Balkema, Lisse, 24:1-28.
- Zaporozec A (ed.) (2004) Groundwater contamination inventory: a methodological guide with a model legend for groundwater contamination inventory and risk maps. IHP-VI, series on groundwater, 2. UNESCO, Paris, France.
- Zaporozec A, Miller JC (2000) Groundwater pollution. UNESCO, Paris, France.

DARCY 67

Etude de la migration des nitrates dans la nappe à travers la zone non saturée : enjeux et impact sur la qualité de l'eau exploitée

Serhal Hani ¹, Bastin-Lacherez Sabine ², Bernard Daniel ³, El Khattabi Jamal ⁴

^{1, 2, 3 et 4} Polytech-Lille, UMR CNRS 8107 (LML), Université des Sciences et Technologie de Lille,
Cité scientifique, 59655 Villeneuve d'Ascq cedex, France.
hserhal@polytech-lille.fr

Résumé

Dans le nord de la France, les concentrations en nitrates mesurées dans la nappe de la craie atteignent ou dépassent fréquemment le seuil de la potabilité fixé à 50 mg.L⁻¹ par la Directive Européenne transcrise en droit français en 2001. Cet état de fait est la conséquence directe de l'essor de l'agriculture intensive, l'industrialisation ou encore la croissance démographique. Pour remédier à cette situation plusieurs programmes ont été mis en place : Ferti-mieux dans le domaine de l'agriculture, raccordement aux stations d'épuration et traitement des rejets.

L'impact de ces mesures dans l'arrondissement de Cambrai a été évalué à travers un modèle intégré basé sur le couplage de différents modules permettant d'établir un bilan du cycle de l'azote dans la zone racinaire (Agriflux) et son transit dans la zone non saturée infra-racinaire (VS2DT) jusqu'à la zone saturée (ModFlow et MT3D). Les résultats obtenus illustrent d'une part, un rôle important des caractéristiques physiques du milieu dans l'évolution des polluants dans le sous-sol et d'autre part, une amélioration associée au programme de la fertilisation raisonnée ainsi qu'une dégradation ponctuelle liée aux rejets près des zones urbaines.

Les prévisions jusqu'en 2020 montrent une évolution différenciée de taux des nitrates. Il s'agit d'une amélioration dans la partie nord de la région caractérisée par une épaisseur moyenne de la zone non saturée inférieure à 20 m et d'une dégradation dans la partie sud-ouest marquée par une épaisseur plus importante (75 m) et donc un transfert plus long.

L'utilisation d'un modèle intégré composé de modules adaptés aux différents horizons, nous a permis de mieux évaluer l'état qualitatif actuel et futur de l'eau souterraine exploitée dans la région. Son application constitue un outil d'aide à la décision efficace pour contrôler l'impact des pratiques culturelles et des rejets urbains dans le milieu naturel.

Abstract

The comprehension of the water movement and solute transport mechanisms in an unsaturated and saturated porous media is essential to answer the interrogations concerning the impacts of nitrogen applied on the groundwater quality.

In the north of France, the nitrate concentrations measured in the chalk aquifer reach or exceed frequently the limit of drinking water fixed at 50 mg/l by the European Directive (French right 2001). These concentrations are consequence of the intensive agriculture, industrialization and the demographical growth. To remedy this situation many applications were adopted: "Ferti-mieux" in the agriculture and installation of wastewater treatment plants.

The impacts of these applications in the "Cambrai district" were evaluated through an integrated model: Agriflux for nitrogen cycle in vegetation zone; VS2DT for nitrogen transfer in the vadose zone; ModFlow and MT3D for the hydrodynamic and hydrodispersive simulation in the saturated zone. The results obtained showed the significant role of the physical characteristics of the porous media in the evolution of the pollutants. A global amelioration associated to the reasonable fertilization and the treatment of wastewater was mentioned. The concentration observed under the urban area is higher than that observed under agriculture parcels.

Thus, in the pedological part the nitrate concentrations are strongly influenced by the fertilization and the vegetative cycle and they reach their maximum in absence of plants. In the unsaturated part, the velocity of transfer depends mainly on the hydraulic conductivity, the precipitation and the soil moisture. In the saturated zone, this velocity varies from point to another according to the productivity and the pumping of the groundwater. Finally, the prediction for 2020 shows a differentiated variation in nitrates concentrations. Amelioration is observed in the northern zone of the study area characterized by an average thickness of the unsaturated zone lower than 20 m and degradation in the south-western zone marked by an important thickness (75 m) and thus a longer transfer time.

The use of this integrated model is useful for the better evaluation of the ground water quality in the present and the future. Also, this integrated model aid the decision-maker to control the anthropical activities which effects the natural environment.

I. Introduction

Les nitrates sont souvent connus comme polluant d'origine agricole. Leurs fortes concentrations mesurées dans la nappe de la craie dans la région Nord de la France, sont la conséquence directe de l'essor de l'agriculture intensive (Préaux, 1986; Dupuy, 1997; Maison, 2000; Lacherez-Bastin, 2005), l'industrialisation ou encore la croissance démographique (Serhal, 2006). Ford et al. (1994) et Lerner et al. (1999) ont montré que les concentrations en nitrates dans les eaux souterraines situées sous les surfaces urbaines sont plus importantes que celles rencontrées sous les parcelles agricoles. Pour remédier à cette situation, plusieurs mesures ont été adoptées : programme Ferti-mieux dans le domaine de l'agriculture depuis 1990, collecte des eaux usées et traitement de l'azote dans les stations d'épuration depuis 1998. Afin de mieux évaluer l'impact des pressions anthropiques il est nécessaire de connaître la migration des polluants dans la zone non saturée. Celle-ci a fait l'objet de nombreux travaux expérimentaux qui ont permis de déterminer les différents paramètres caractéristiques de cette zone (Parker et Van Genuchten, 1980 ; Van Genuchten et Alves, 1982 ; Javendel et al., 1984) ; mais aussi la description des processus de transfert de solutés dans le sol (Kincaid et al., 1986) à l'origine de modèles numériques et analytiques (Anderson, 1979 ; Van Genuchten, 1987).

Afin de connaître l'influence des pressions anthropiques de type fertilisation excessive et rejets urbains sur l'évolution des concentrations en nitrates dans l'eau de la nappe de la craie en régime libre et vulnérable dans la région de Cambrai (Nord de la France) ; ainsi que l'impact réel des mesures entreprises, nous présentons dans cet article une étude orientée à la fois sur son état passé et actuel ainsi que sur l'évolution prévisible des concentrations en

nitrates, à conditions comparables jusqu'en 2020. Cette étude a été appliquée au bassin versant de Cambrai où des études antérieures (Bernard, 1979 ; Préaux, 1986) prévoient une augmentation importante des teneurs au cours de la période allant de 1980 à 2000. L'approche utilisée s'est basée sur la mise en place d'un modèle intégré composé de modules adaptés aux différents horizons : Agriflux (zone racinaire), VS2DT (zone non saturée infraracinaire) et ModFlow-MT3D (zone saturée).

2. Contexte géographique, géologique et hydrogéologique de la zone d'étude

L'arrondissement de Cambrai (Nord de la France) est composé de 115 communes totalisant 900 km² (Fig. 1). Le relief de l'arrondissement est caractérisé par un vaste plateau à l'Ouest et par un secteur vallonné à l'Est de «Le-Cateau». La déclivité générale est orientée du Sud-Est (+186m) vers le Nord (+33m).

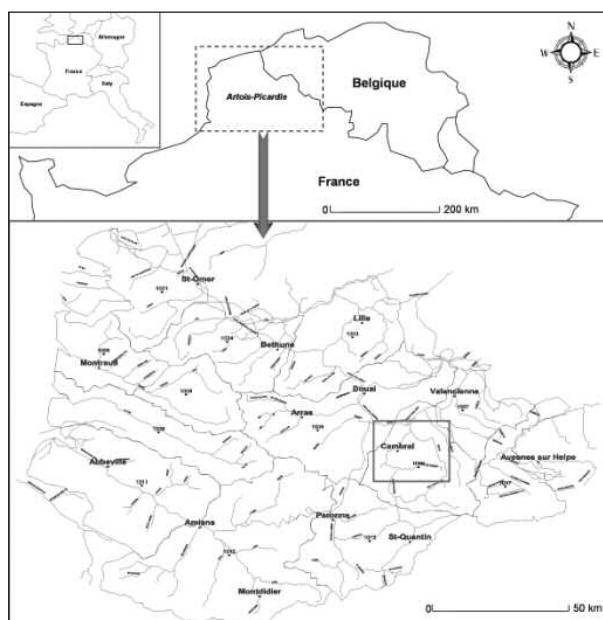


Figure 1: Localisation de la zone d'étude

Le climat dans l'arrondissement est de type tempéré à dominante océanique. La température moyenne annuelle s'établit à 9.7°C avec des moyennes mensuelles extrêmes de 2.8°C en janvier et 17°C en juillet. La durée d'insolation est de 1585 heures par an, avec des moyennes de 210 heures en juin et 43 heures en décembre. La précipitation varie du Nord-Ouest au Sud-Est (de 650 à 750 mm), résultat de la direction des vents dominants et du relief. Plusieurs stations météorologiques sont situées autour de la zone d'étude. La plus proche est celle de l'aérodrome militaire d'Epinoy au Nord-ouest de Cambrai.

Le sous-sol de la zone d'étude est essentiellement composé par la craie du Séno-Turonien sous limons, avec par endroits un recouvrement par des formations tertiaires constituées de sables et d'argiles. L'alimentation en eau potable des communes de l'arrondissement est assurée par une centaine des captages. Si les débits sont généralement satisfaisants, il n'en est pas de même pour la qualité de l'eau.

3. Modélisation intégrée de la transformation et du transfert des nitrates

1. Méthodologie : démarche de modélisation

L'azote nitrique (très soluble dans l'eau et peu fixé par le sol) est considéré comme le seul composé azoté qui peut migrer avec l'eau. Quant à l'azote ammoniacal est moins soumis au lessivage par son aptitude à se fixer sur le sol par la Capacité d'Echange Cationique ou la CEC (Barroin et al., 1996).

Afin de pouvoir réaliser la modélisation à l'échelle de l'arrondissement, il a été nécessaire de valider au préalable la modélisation à l'échelle parcellaire. Cette démarche permet de caler les paramètres des modèles par comparaison de leurs résultats avec les profils azotés réels obtenus des sondages des parcelles de référence et avec l'utilisation des historiques cultu-

raux obtenus par les enquêtes. Quatre outils de modélisation ont été utilisés et couplés pour la réalisation de cette étude.

Aux pressions azotées agricoles percolant sous la couche racinaire, calculées par le module AgriFlux (Banton et al., 1993) s'ajoutent le flux de nitrates aux endroits urbains (domestiques et industrielles) estimé. Les flux de l'eau et de nitrates ainsi obtenus sont intégrés dans le module VS2DT (Healey. 1990) pour simuler les transferts dans la zone non saturée. Enfin, la lame d'eau et les concentrations en nitrates obtenus à la sortie de la zone non saturée, sont introduites dans ModFlow (McDonald, 1988) et MT3D (Zheng, 1990) pour évaluer les concentrations en nitrates dans l'eau de la nappe et des captages.

2. Azote d'origine agricole

2.1. Modélisation à l'échelle de la parcelle

2.1.1. Simulation dans la zone racinaire

AgriFlux (Banton et al., 1993) a été utilisé pour calculer le devenir de l'eau et de l'azote dans le sol avec un pas journalier et fournir les flux sortant à la base du profil. L'azote nitrique, très soluble dans l'eau et peu fixé par le sol, est considéré comme le seul composé azoté qui peut migrer avec l'eau. L'azote ammoniacal est moins soumis au lessivage par son aptitude à se fixer sur le sol par la Capacité d'Echange Cationique ou la CEC (Barroin et al., 1996).

La dynamique de processus biochimiques dans le sol est contrôlée par le carbone (Hanks and Ritchies 1991). Comme celui-ci diminue avec la profondeur (Lafrance et Banton, 1995), on considère qu'au-delà d'un certain profondeur, les nitrates ne subissent aucun transformation. La culture dominante qui a été relevée est le blé. Les besoins en azote de chaque culture ont été calculés à partir des rendements observés sur le bassin durant la période de l'étude. Les fertilisations sont principalement inorganiques (formées de 60% en nitrates et de 40% en ammonium).

La figure 2 illustre un exemple de résultat, obtenu sur une parcelle (S8), montrant l'évolution en fonction du temps de la hauteur d'eau lessivée et des concentrations en nitrates associées.

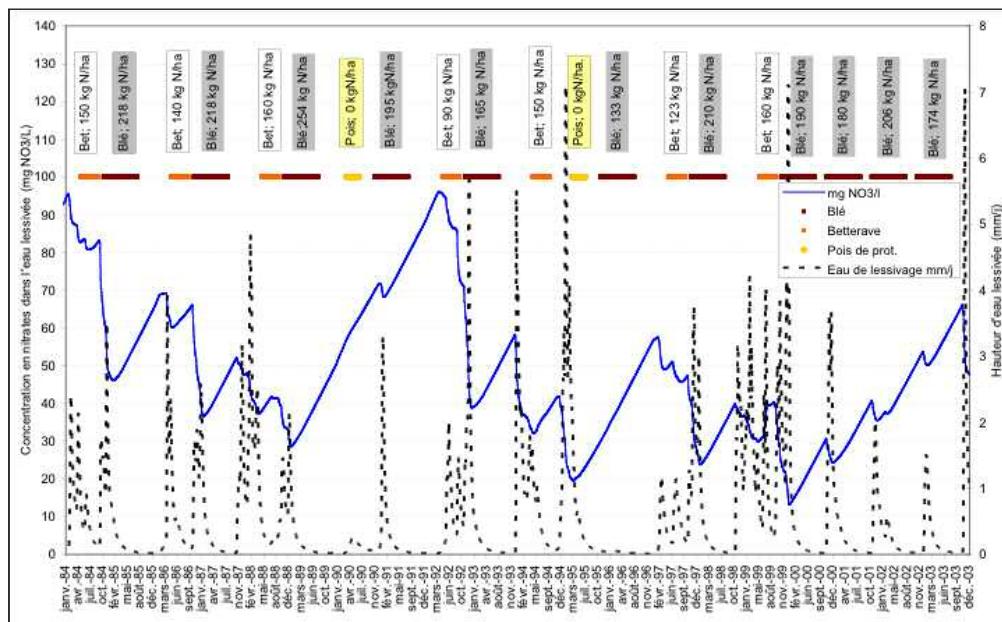


Figure 2 : Evolution des nitrates dans l'eau lessivée (parcelle du sondage S8).

Pour la période simulée, la concentration en nitrates varie entre 13 et 97 mg.L⁻¹. Cette concentration dépend de l'occupation du sol et des apports azotés. A titre d'exemple, entre janvier 1988 et avril 1992, cette concentration croît de 29 à 97 mg.L⁻¹. Ceci est lié à plusieurs facteurs : entre août 1989 et juin 1992, le sol est resté nu pendant 618 jours ; de fortes fertilisations ont été appliquées sur le blé (254 kg N.ha⁻¹ en 1989 et 195 kg N.ha^{-1.an-1} au début de 1991). La concentration diminue après avril 1992, date de semis des betteraves, pour atteindre 40 mg.L⁻¹ en décembre 1993. Cette baisse est due à une fertilisation modérée (90 kg N.ha⁻¹ pour les betteraves et 165 kg N.ha⁻¹ pour le blé) et à un couvert végétal presque continu durant cette période.

Par ailleurs, la hauteur d'eau lessivée dépend des précipitations mais aussi du type de culture. Ainsi, après la culture de betteraves, la hauteur la lame d'eau lessivée est importante, du fait d'un plus faible besoin en eau de cette culture (ce besoin varie entre 0.139 et 0.197 m, tandis que celui du blé et de l'escourgeon entre 0.44 et 0.69 m (Normand et al., 2000)).

2.1.2. Simulation dans la zone non saturée infra-racinaire : modèle VS2DT

Le flux d'eau et le taux de nitrates à la sortie de la zone racinaire obtenu pour chaque parcelle simulée ont été introduits (en entrée) dans VS2DT (Healey, R.W. 1990) pour simuler son évolution dans la zone non saturée. La comparaison entre les profils azotés réels et ceux obtenus par la modélisation couplée (AgriFlux – VS2DT) permettent d'apprecier la validité du calage des paramètres. De façon globale, les résultats simulés montrent une bonne concordance avec les observations (Fig. 3A, B et C).

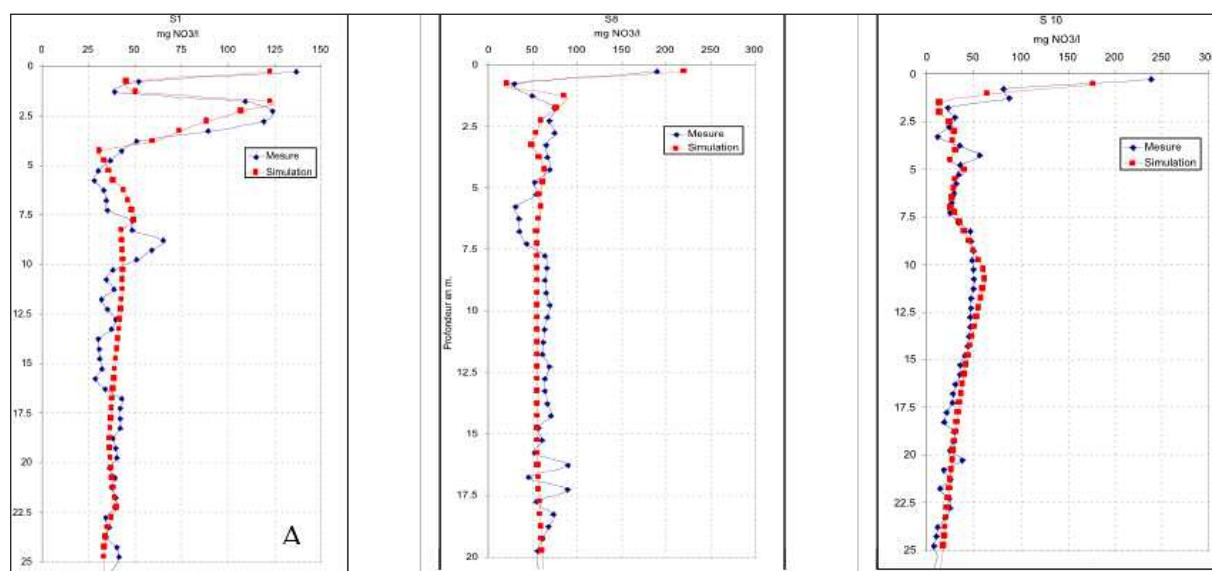


Figure 3 : Comparaison entre des profils azotés réels et simulés (A : S1, B : S8 et C : S10).

2.2. Généralisation : modélisation à l'échelle de l'arrondissement

La modélisation couplée doit être réalisée pour des zones homogènes exigeant ainsi un découpage du bassin versant en secteurs homogènes. Ainsi, le domaine de calcul a été divisé en mailles de 500 m de côté. Les données alors nécessaires à la simulation à l'échelle du bassin versant concernent les activités agricoles (assolement, fertilisation et le rapport entre la surface agricole utilisée (SAU) et la superficie totale de chaque commune) et les profils de sol (épaisseur et type de recouvrement, épaisseur de la zone non saturée de la craie).

2.2.1. Modélisation dans la zone racinaire (AgriFlux)

Avant d'entamer la modélisation à l'échelle de l'arrondissement, il a été nécessaire de créer un historique cultural applicable à toutes les communes. Selon les données de Recensement Général Agricole (RGA), la surface agricole est principalement consacrée aux grandes cultures, qui occupent en général les terrains plats. La surface des prairies est de l'ordre de 17.9 % de la surface totale agricole. Le blé tendre est la culture dominante occupant 41.4% des surfaces agricoles utiles, tandis que les cultures de printemps comme les betteraves présentent 11.4% des surfaces agricoles (Fig. 4).

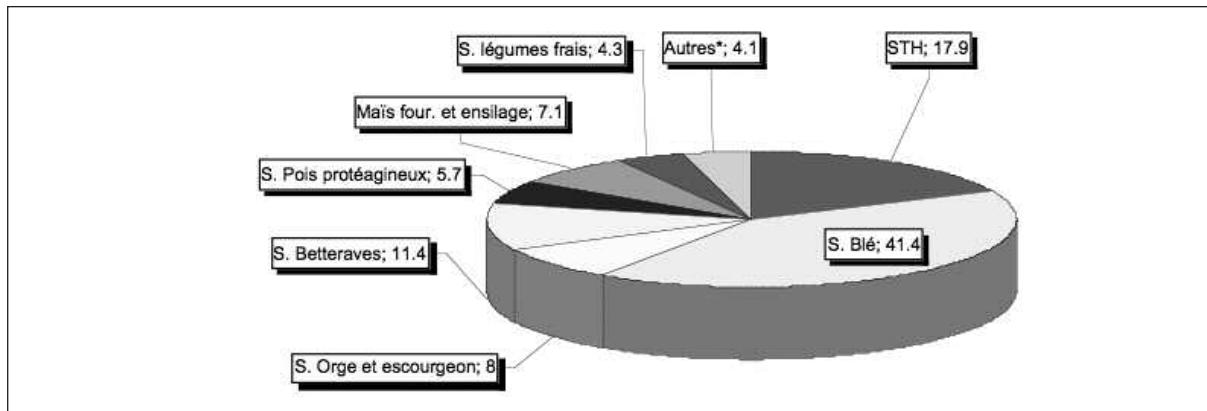


Figure 4 : Pourcentage de répartition des cultures (Source RGA).

Ainsi, le tableau I représente le scénario retenu pour la modélisation des flux azotés au cours du temps. La simulation qui débute en 1950, continue jusqu'en 2020 afin de prévoir l'évolution de la concentration en nitrates dans l'eau de recharge. En respectant la distribution des cultures (Fig. 4) durant la période de polyculture [1980-2020], la culture du blé a été répétée 20 fois, l'orge 4 fois, les betteraves 6 fois, pois protéagineux 2 fois, le maïs fourrage 4 fois, les légumes 2 fois et les autres cultures 2 fois. L'utilisation des engrains de synthèse débute en 1960, avec une fertilisation excessive entre 1960 et 1980, devenant plus modérée entre 1980 et 1990. A partir de 1990, des pratiques de fertilisation raisonnée sont mises en place (Tab. I).

Historique utilisé pour les simulations avec AgriFlux						
1950	1960	1970	1980	1990	2004	2020
précipitations statistiques			précipitations connues			précipitations prospectives
Monoculture de blé			Polyculture à dominante de blé			
Forte fertilisation		Fert. moyenne		Fertilisation Raisonnée		
			Prairies			
Fertilisation Org.			Plus ou moins fertilisées (plutôt fortement)			
.....

Tableau I : Scénario de rotation de fertilisation et des précipitations retenu pour la modélisation

Les précipitations efficaces (1970 à 2004) qui constituent la recharge de la nappe, ont été fournies par la station météorologique d'Epinoy. Pour les simulations prospectives s'étendant jusqu'à 2020, des années pluviométriques contrastées ont été prises en compte.

Les concentrations en nitrates obtenues à la sortie de la zone racinaire montrent un pic après l'année 1963 (Fig. 5). Cette forte concentration est due au retournement des prairies et au commencement de l'utilisation des engrains chimiques. La rotation, qui débute en 1980, provoque une légère diminution des concentrations en nitrates qui atteignent les minima lors de la mise en place du programme de fertilisation raisonnée en 1990 (contrôle des quantités d'engrais appliqués).

Ces premiers résultats obtenus illustrent assez bien l'effet des pratiques culturales. Sa généralisation dans l'arrondissement requiert la connaissance des surfaces agricoles utilisées (SAU), qui sont fournies par les RGA.

2.2.2. Modélisation dans la zone non saturée (VS2DT)

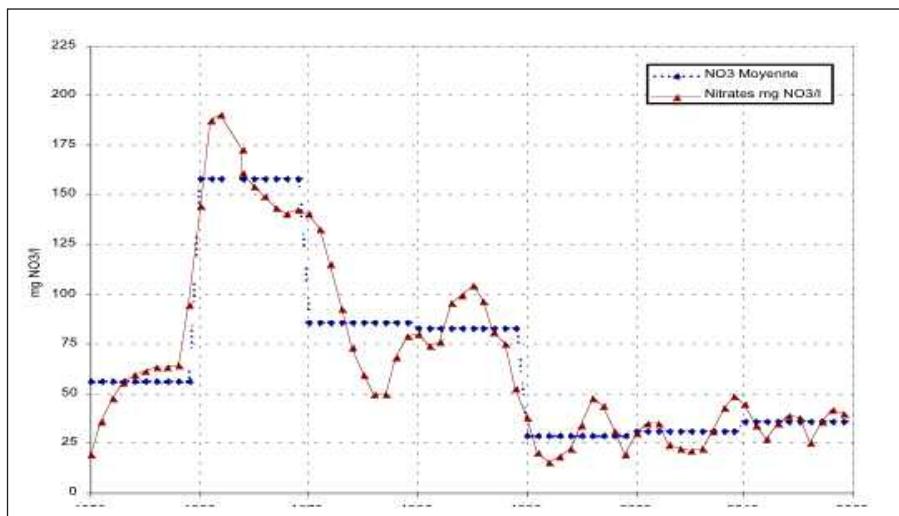


Figure 5 : Concentration en nitrates dans l'eau sous la zone racinaire.

L'introduction des valeurs des flux d'eau et de nitrates lessivés à la sortie de la zone racinaire dans le module VS2DT a permis de poursuivre les simulations du transfert dans la zone infra-racinaire et la zone non-saturée de la craie. Ces manœuvres ont nécessité auparavant la définition des profils lithologiques du sous-sol en chaque point du domaine.

La vitesse de transfert vertical des nitrates dans la zone non saturée de la craie est conditionnée par la conductivité hydraulique et par les pluies efficaces (Lacherez-Bastin, 2005, Serhal, 2006). Afin d'apprécier la dépendance de la vitesse à ces deux facteurs, plusieurs simulations ont été réalisées. La vitesse obtenue varie entre 0.6 et 1.25 m/an. Ces valeurs obtenues sont concordante à celles des autres auteurs (Séguin, 1986 ; Chiesi, 1993 ; Ballif et Muller, 1993 ; Brossier et al., 1979).

Le temps de transfert vertical des nitrates déduit de la vitesse de transfert obtenue par VS2DT et de l'épaisseur de la zone non saturée. Ainsi au nord de la zone d'étude, où la nappe n'est pas profonde, le temps de transfert varie de quelques mois à 30 ans, tandis qu'il atteint plus de 75 ans dans la partie Sud-ouest, là où la nappe est plus profonde.

Les concentrations en nitrates dans l'eau qui arrive à la nappe montre une évolution qui débute par les vallées avant leur généralisation (Fig. 6 et 7).

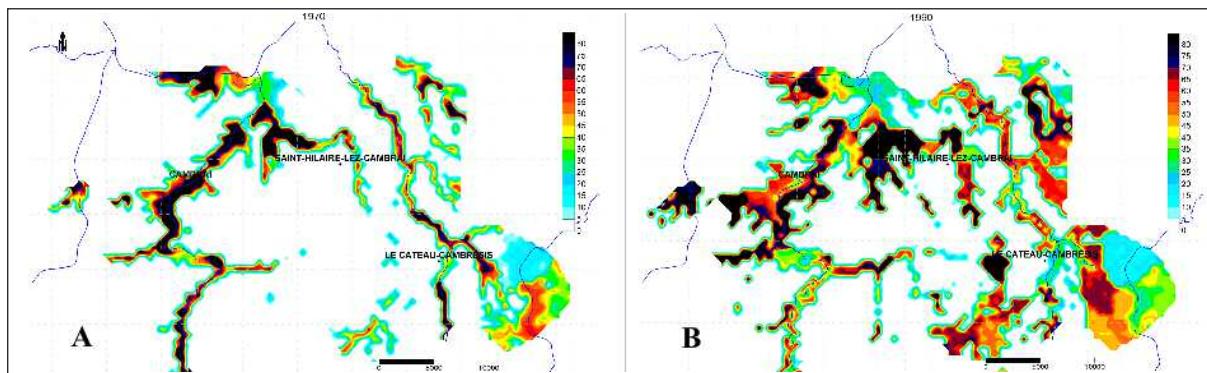


Figure 6 : Concentration en nitrates calculée dans l'eau de recharge (A : 1970 et B : 1990).

Ainsi, dans un premier temps les nitrates ne parviennent à la nappe que dans les secteurs des vallées où les nappes sont sub-affleurantes (Fig. 6A). Les surfaces contaminées s'accroissent au fur et à mesure en fonction du temps. A partir des années 1980 – 1990 (Fig. 6B), des fortes concentrations arrivent à la nappe. Après cette date, ces concentrations s'atténuent mais la contamination est presque partout présente (Fig. 7). Le scénario se poursuit jusqu'en 2020, où l'on trouve des nitrates dans la quasi-totalité de la zone d'étude, à l'exception de quelques zones correspondant aux secteurs argileux à faible perméabilité.

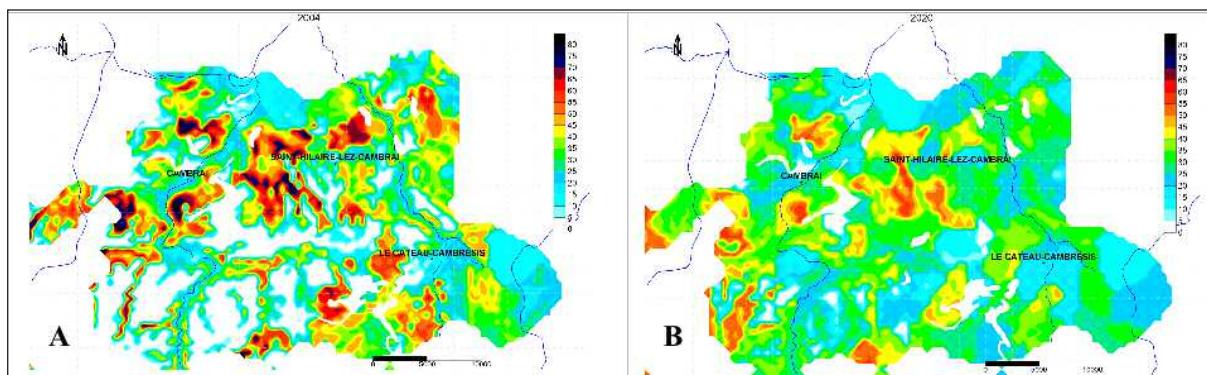


Figure 7 : Concentration en nitrates calculée dans l'eau de recharge (A : 2004 et B : 2020).

3. Estimation des pressions azotées urbaines

En se référant à l'étude réalisée par IFEN SCEES (2001), la demande en eau par habitant s'élève à $38 \text{ m}^3.\text{an}^{-1}$ sur les dix dernières années, soit près de 104 l.jour^{-1} par habitant. A l'horizon 2015, ce ratio ne devrait pas varier significativement en raison de la prise de conscience concernant la carence de la ressource et les mesures concourant à l'économie des consommations. En terme de charge polluante, on peut considérer les éléments suivants (Tab. II) de l'équivalent habitant (Direction de l'Eau, 2003) :

Composition	g/j
DBO5	60
DCO	135
MO	57
MES	70
NTK (ou NR)	12
P	2.5

Tableau II: Charges journalières produites par habitant.

L'arrondissement de Cambrai bénéficie de 28 unités d'épuration dont les capacités de traitement et les rendements sont très variables. Pour chaque station sont indiquées les communes raccordées, le taux de collecte ainsi que le rendement de la station. Les zones non raccordées au réseau collectif constituent pour chaque commune un ensemble d'émissions ponctuelles proches les unes des autres et qui peuvent être assimilées à une émission diffuse sous les zones urbanisées. Les rejets s'y effectuent dans des puits perdus, dans les fossés ou par épandages souterrains (assainissement individuel). L'état général de l'assainissement des collectivités dans le bassin Artois Picardie (AEAP (2004)) suggère que 50% des habitants qui ne sont pas ou sont mal raccordés rejettent directement dans les eaux de surface alors que les autres 50% sont desservis par des systèmes d'Assainissement Non Collectif (ANC).

De plus, d'un point de vu rendement, nous avons considéré que 50% des ANC ne sont pas conformes. Ce choix se justifie par les études menées dans d'autres secteurs. A titre d'exemple, l'étude menée par la Communauté de Communes des Flandres et la Communauté des Communes du Sud Arrageois, dans le cadre de la gestion des Services Publics d'Assainissement Non Collectif (SPANC) a montré qu'au plus de 70% des installations n'étaient pas conformes. De même, dans le bassin Seine Normandie seulement 50% des ANC sont conformes (Tab. III).

Performance de l'ANC		Conforme		non-conforme	
Paramètre	Ratio	Rejet	Rendement	Rejet	Rendement
DBO5	60	5.4g	90%	32.4g	40%
DCO	135	13.5g	90%	81g	40%
MES	70	0g	100%	28g	60%
Nitrate	12	8g	33%	10.8g	10%
NTK (ou NR)	12	0g	100%	10.8g	10%
P	2.5	0.75g	70%	2g	20%

Tableau III: Rendement des assainissements non collectifs.

En s'appuyant sur cette hypothèse, nous avons calculé la quantité de l'azote qui reste dans le sol rejoignant la nappe à travers la zone non saturée. En divisant cette quantité d'azote par la superficie des zones urbanisées on calcule ainsi le flux spécifique d'azote ($\text{kg} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$ N) pour chaque commune de l'arrondissement (Fig. 8).

Le flux spécifique d'azote calculé est compris entre $4 \text{ kg} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$ N pour les communes possédant à la fois des taux de desserte et de collecte élevés (comme Proville avec un taux de collecte de 58%), et $50 \text{ kg} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$ N pour les communes à faible taux de raccordement et à forte densité (population). Pour l'agglomération de Cambrai, ce flux est de l'ordre de $21 \text{ kg ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$ N.

Les résultats issus de la modélisation dévoilent un flux de nitrates lessivés moyens de $15.2 \text{ kg} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$ N sous les parcelles agricoles. Cette valeur est inférieure à celle rencontrée en domaine urbain. Cependant, l'impact de l'agriculture sur les eaux souterraines est plus important en raison de sa superficie (78%) nettement plus élevée que celle des agglomérations (7%). Par ailleurs, l'estimation de la pression azotée industrielle a été relevée par les mesures effectuées dans les établissements industriels dans le cadre du projet d'Aide au Bon Fonctionnement (ABF) et des déclarations d'activités polluantes lors du calcul de la redévalence de pollution industrielle par deux agences de l'eau. Ainsi, pour les établissements de faible ou moyenne taille et intégrées dans le tissu urbain, les rejets se font dans le réseau

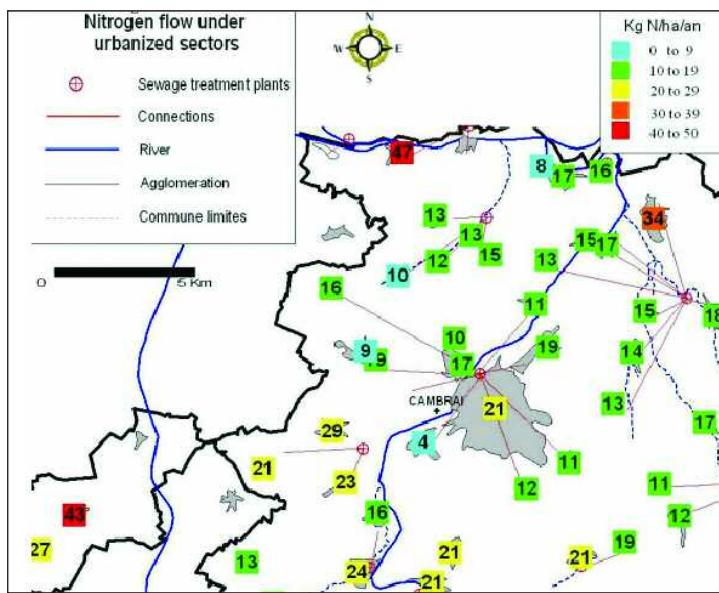


Figure 8 : Flux spécifiques des nitrates lessivés dans les secteurs urbanisés.

d'assainissement collectif. Par contre pour les unités industrielles importantes, ces rejets s'effectuent en rivière éventuellement après épuration spécifique par l'industrie concernée.

La station d'épuration de Cambrai collecte les rejets de onze établissements industriels. La plupart sont équipés de systèmes d'épurations. La quantité d'azote global brut produit par ces établissements est 424 kg.jour⁻¹ de NGL, mais la quantité qui rejoint la station est 88 kg.jour⁻¹ de NGL. Au total, la quantité d'azote industrielle qui n'est pas collectée par les stations d'épuration et qui rejoint les cours d'eau est estimée à 50 t.an⁻¹ de NGL.

4. Modélisation hydrodynamique et hydrodispersive dans la zone saturée

4.1. Modélisation hydrodynamique

Cette phase consiste à construire, puis à caler un modèle mathématique d'écoulement des eaux souterraines. L'objectif de ce modèle est de simuler le fonctionnement global de l'écoulement des eaux souterraines en quantifiant les flux d'eau entrants et sortants du système hydrologique. Le modèle est ensuite complété pour simuler le transfert des nitrates dans la nappe. Une simulation en régime transitoire a été réalisée sur la période de 1985 à 2020. Cette période est découpée en pas de temps mensuel donnant ainsi 420 pas. Pour les variations spatiales de la conductivité hydraulique, le modèle s'est appuyé sur les travaux de Préaux (1985) et Bernard (1979).

Le temps de réponse de la nappe à la pluviométrie a été estimé à trois mois à partir de la comparaison de la courbe pluviométrique et la courbe piézométrique. Pour les simulations prospectives (jusqu'à 2020), il a été nécessaire de prendre en compte des années pluviométriques contrastées alternant entre années sèches et très humide.

La période de référence choisie pour la modélisation est 1985 où la pluviométrie et la carte piézométrique sont connues. La simulation s'est déroulée en deux étapes, la première en régime permanent et la deuxième en régime transitoire. Une comparaison entre les courbes de niveau de la nappe, enregistrées sur les six piézomètres disponibles sur la zone d'étude et les courbes calculées, illustre la validité du calage obtenu en régime transitoire. Ensuite, la deuxième simulation a été effectuée d'août 1985 à décembre 2020, en utilisant des précipitations prospectives.

4.2. Modélisation hydrodispersive

En plus des concentrations initiales en nitrates de l'eau de la nappe (valeurs réelles mesurées dans les captages en 1985), les concentrations ayant transité par la zone non saturée et arrivant à la zone saturée sont introduites dans le module MT3D. Dans une première approche, nous n'avons considéré que l'azote d'origine agricole. A ce stade, nous remarquons une

bonne concordance à la fois dans les ordres de grandeur et dans le synchronisme des événements pour certains captages, notamment ceux qui se situent dans un environnement purement rural (Fig. 9A). L'influence de l'azote d'origine urbaine apparaît clairement dans les captages situés en aval des agglomérations (Fig. 9B). En tenant compte l'azote d'origine agricole seul, on constate une grande différence. En additionnant les nitrates urbains à ceux d'origine agricole, cette différence s'atténue.

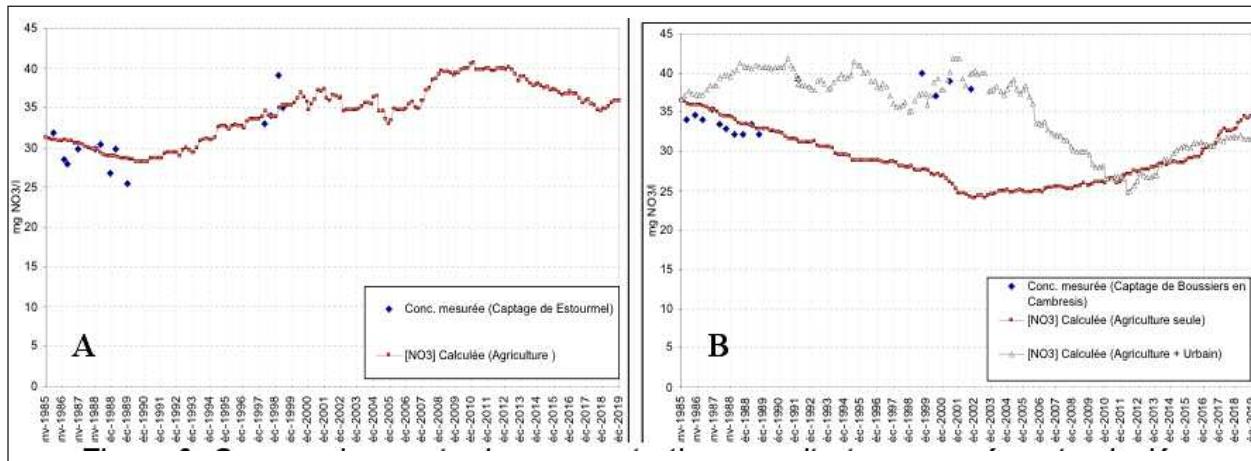


Figure 9 : Comparaison entre les concentrations en nitrates mesurées et calculées (A. agricoles B. agricoles et urbaines)

Malgré que l'agglomération de Caudry qui compte 13662 habitants soit desservie par une station d'épuration depuis 1973, dont le taux de collecte de l'azote est de 68%, la concentration en nitrates dans la nappe sous l'agglomération demeure élevée. A tel point qu'un forage situé à 2 km en aval de la commune a été fermé en 1982. Ceci s'explique par le non traitement de l'azote à la station et l'épaisseur de la zone non saturée, variant entre 25 et 35m, fortement chargée en nitrates qui continuent à migrer vers la nappe. Ce flux d'eau chargée en nitrates influence également les captages de Boussièr En Cambrésis, Saint Hillaire Lez Cambrai et Ramillies situées en aval de cette agglomération.

Par ailleurs, en ce qui concerne l'évolution prospective des concentrations en nitrates dans la nappe pour les années 2005, 2010, 2015 et 2020, elles sont en amélioration dans la partie nord de la zone d'étude et en dégradation dans la partie sud-ouest. La mise en place du programme de fertilisation raisonnée et le raccordement aux stations d'épuration de la plupart des communes du Cambrésis, ont fait diminuer la quantité d'azote entrant dans le sol. Mais le temps de transfert des nitrates à travers la zone non saturée de la craie peut atteindre par endroit plus de 75 ans (zone sud-ouest) ; et par conséquent des fortes concentrations en nitrates vont continuer à arriver à la nappe justifiant la dégradation de la qualité de l'eau souterraine dans cette partie de l'arrondissement (Fig. 10).

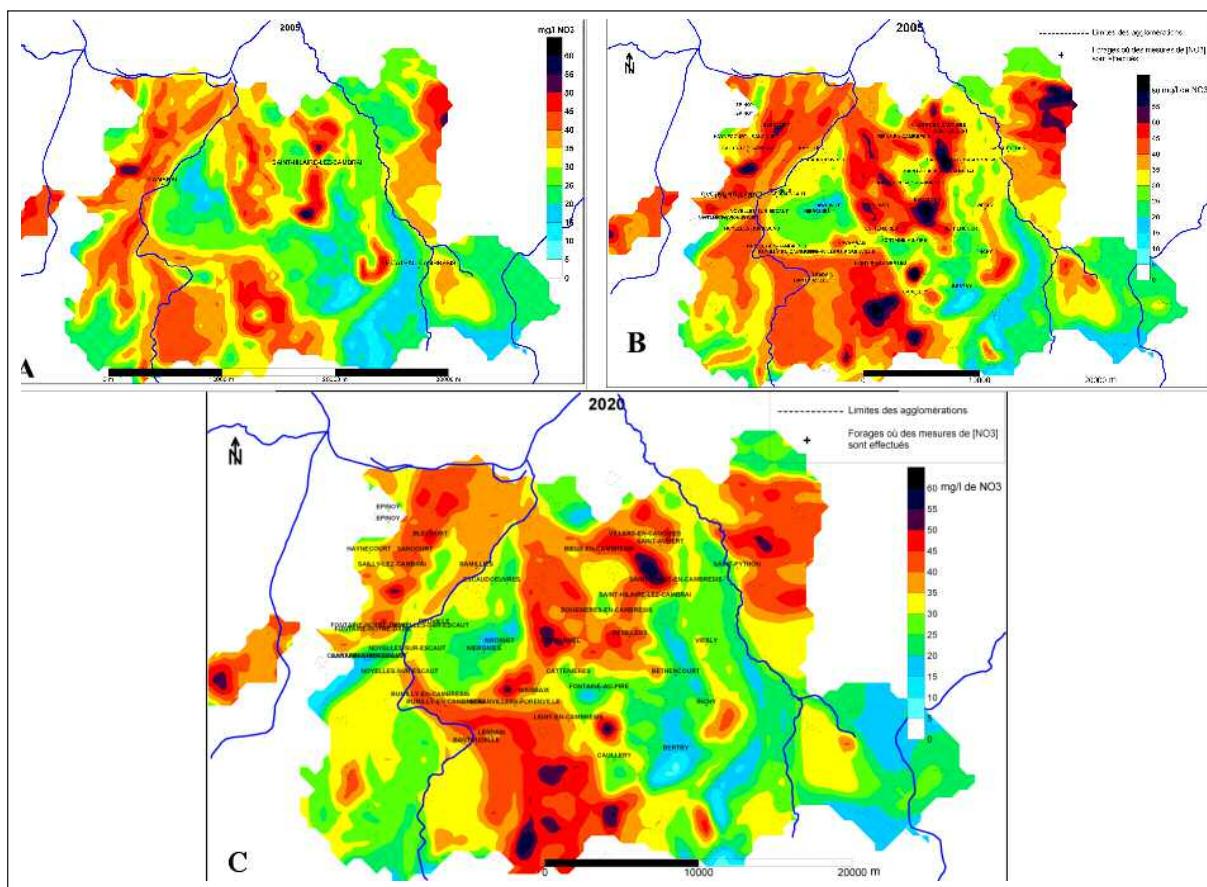


Figure 10.: Evolution de la concentration en nitrates dans l'eau de la nappe calculée pour (A. 2005-agricoles ; B. 2005-agricoles et urbaines ; C. 2020-agricoles et urbaines)

5. Discussion

Les résultats obtenus permettent d'une part, de confirmer d'anciens résultats, et d'autre part de tirer de nouvelles conclusions.

Ainsi, les concentrations moyennes en nitrates d'origine agricole dans l'eau lessivée sont étroitement liées aux pratiques culturales. Elles étaient de l'ordre de 80 mg.L^{-1} avant les années 1990, date de début de programme fertilisation raisonnée, pour atteindre des concentrations voisines de 30 mg.L^{-1} après la mise en place de ce programme. Les superficies touchées par les pollutions diffuses d'origine agricole sont plus importantes que celles touchées par les pollutions d'origine urbaine. Ceci est lié au pourcentage élevé (78%) qu'occupe la surface agricole utilisée par rapport à celle des agglomérations (7%). Par contre, ces dernières engendrent des pollutions de plus fortes concentrations pouvant atteindre 95 mgL^{-1} de NO_3 dans les communes possédant de taux de collecte faible.

Toutefois, le flux d'azote lessivé sous les agglomérations, obtenu à partir de l'état actuel de l'assainissement, est estimé à 115 t.an^{-1} de NGL. Alors que sous les parcelles agricoles, après la mise en place du programme de fertilisation raisonnée, ce flux est de 1000 t.an^{-1} . On en déduit donc que seulement environ 11% de l'azote qui rejoint la nappe est d'origine urbaine et environ 89% d'origine agricole. Ces résultats sont très proches des valeurs estimées par d'autres auteurs, notamment Schroder et al. (1985) qui évalué pour le Danemark l'apport de l'agriculture à plus de 85 % et uniquement à 15% celle produite par l'industrie et le milieu urbain.

Quant à la vitesse moyenne de transfert vertical des nitrates dans la zone non saturée de la craie non fissurée, obtenue à l'aide de la modélisation, varie entre 0.6 m.an^{-1} et 1.2 m.an^{-1} . Cette vitesse change en fonction des caractéristiques physiques du milieu crayeux et des conditions météorologiques. Ainsi, dans la partie Nord de la zone d'étude, la nappe n'étant pas trop profonde, l'épaisseur de la zone non saturée fluctue entre 0 et 30 m. Le temps nécessaire pour que les nitrates puissent parcourir cette épaisseur varie entre 0 et 45 ans. Dans ce laps de temps, la modification des pratiques agricoles, de fertilisation et la mise en place des stations d'épuration induit, à moyen terme, une modification dans la qualité d'eau de recharge. D'après les mesures réelles et ceux issues de la modélisation, la tendance de la qualité d'eau est vers l'amélioration ; ce qui explique que les fortes concentrations provoquées par les surfertilisations appliquées avant les années 90 sont déjà en parties éliminées. Par contre dans la partie Sud-Ouest, la nappe étant très profonde, l'épaisseur de la zone non-saturée atteignant plus de 70 m dans certaines zones, le temps de transfert des nitrates peut dépasser 75 ans. Les fortes concentrations en nitrates dues aux surfertilisations, n'ont pas encore traversé la zone non saturée. L'eau chargée en nitrates va continuer à arriver dans la nappe, ce qui va provoquer une dégradation de la qualité de l'eau de la nappe de cette zone.

En ce qui concerne la zone saturée (la nappe), le taux de nitrates demeure conditionné par le transfert s'effectuant à travers la zone non saturée. Ensuite, la vitesse de transport des nitrates varie avec la vitesse d'écoulement de l'eau ; elle-même dépendante des caractéristiques de l'aquifère, des gradients hydrauliques et des pompages. Cette vitesse varie de quelques mètres par an sous les plateaux à plus d'un km.an^{-1} dans les vallées, et en particulier autour des rivières et des zones de pompage.

Au terme de ce travail, l'évolution dans le temps et dans l'espace des éléments azotés est évaluée à travers une modélisation intégrée s'adaptant aux caractéristiques de chaque horizon. Les prévisions des nitrates dans les stations de pompages sont suivies pour différentes périodes : passée, présent et future (jusqu'à 2020).

6. Conclusion

L'étude réalisée a consisté à quantifier et à modéliser l'impact de l'azote urbain et agricole sur les eaux souterraines.

Le secteur étudié se distingue par l'essor de l'agriculture intensive, l'industrialisation ou encore l'urbanisation grandissante. Il en résulte une dégradation de la qualité de la nappe liée essentiellement aux apports azotés agricoles, lesquels sont aggravés ponctuellement par les apports urbains.

Avant d'atteindre la zone saturée, les nitrates transitent par deux zones principales : la zone racinaire et la zone non saturée infra-racinaire. Afin de mieux établir les bilans des taux de nitrates, nous avons utilisé deux modules adapté à chaque zone : AgriFlux (racinaire) et VS2DT (non saturée). Le temps de transfert des nitrates dépend à la fois de la recharge, la conductivité hydraulique, la teneur en eau et l'épaisseur de la zone. Ainsi, les prévisions jusqu'en 2020 montrent une évolution différenciée de taux des nitrates atteignant la nappe de la craie. Il s'agit d'une amélioration dans la partie nord caractérisée par une épaisseur moyenne et une dégradation dans la partie sud-ouest marquée par une forte épaisseur et donc un transfert plus long. Enfin, dans la zone saturée le taux des nitrates dépend du bilan et du transfert à travers la zone non saturée ; alors que la vitesse de transport des nitrates varie avec celle de l'écoulement de l'eau ; elle-même dépendante des caractéristiques de l'aquifère ainsi que des pompages.

L'utilisation d'un modèle intégré composé de modules adaptés aux différents horizons, nous a permis de mieux évaluer l'état qualitatif actuel et futur de l'eau souterraine exploitée dans la région. Son application constitue un outil d'aide à la décision efficace pour contrôler l'impact

des pratiques culturelles et des rejets urbains ainsi que pour le choix des zones idéales à l'implantation des forages.

7. Bibliographie

- AEAP (2004) Agence de l'Eau Artois Picardie, état des lieux établi au titre de la Directive Cadre sur l'Eau, basé sur les statistiques 2000.
- BALLIF JL , MULLER JC (1993) Historique cultural et profils d'azote minéral dans la zone non saturée de la craie : conséquences sur le transfert et le bilan de l'azote. Résultats de 10 années d'observations. Cahiers Agricultures, 2, 330-337 p.
- BANTON O, Larocque M, Surateau F et Villeneuve JP (1993) AgriFlux Logiciel d'évaluation des pertes en composés azotés vers les eaux souterraines et superficielles. INRS-Eau. (Rapport de recherche No. R-380). Québec, Canada. 144 p.
- Barroin G, Dorioz JM, Durand P et Merot P (1996) Entraînement de l'azote dans les eaux de surface et conséquence sur les écosystèmes aquatique. In « Maîtrise de l'azote dans les agrosystèmes ». Reims, France, pp. 39-53.
- BERNARD D (1979) Contribution à l'étude hydrogéochimique de la nappe de la craie dans le Nord de la France : état et acquisition du chimisme de l'eau. Thèse, USTL, Lille – France. 179 p.
- BOIFFIN J et FLEURY A (1974) Quelques conséquences agronomiques de retournements de prairies permanentes. In « Annal Agronomique » 25 (4), pp. 555-575.
- CHIESI F (1993) Transfert et épuration dans la zone non saturée de la craie en Champagne. Thèse, université de Reims – France. 197 p.
- DIRECTION DE L'EAU – Circulaire DCE 2003/12 du 15 mai (2003) Pollution des eaux - Redevances - 1999 - N°1456 – Editions des Journaux officiels; Arrêté ministériel du 6 novembre 1996. pp.147 – 148.
- Dupuy A (1997) Simulation de la contamination diffuse des eaux souterraines par les nitrates à l'échelle du bassin versant. Thèse, université de Poitiers, France. 241 p.
- Ford M et Tellam JH (1994) Source, type and extend of inorganic contamination within Birmingham urbain aquifère system. In « Journal of Hydrology ». 156, 101-135.
- GAURY F (1992) Systèmes de culture et teneurs en nitrates des eaux souterraines. Dynamique passée et actuelle, en région de polyculture – élevage, sur le périmètre d'un gîte hydrominéral – Thèse ENSA Rennes, INRA – SAD, France. 229 p.
- HEALEY RW (1990) Simulation of solute transport in variably saturated porous media with supplemental information on modifications to the US Geological Survey computer program VS2D. Water resource investigations. Denver, Colorado – USA. Report 90 – 4025.
- IFEN SCEES (2001) Enquête : Eau potable, réalisée par l'institut français de l'environnement (Ifen), le service central des enquêtes et des études statistiques du Ministère de l'agriculture et de la pêche (Scees), en partenariat avec les Agences de l'eau permet de souligner les inégalités géographiques, démographiques et structurelles existantes s'agissant du prix de l'eau.
- LACHEREZ-BASTIN S (2005) Contribution à l'étude des vitesses de migration des nitrates dans le sol et la zone non saturée de la nappe de la craie – Modélisation en intégrée des nitrates dans le bassin versant de l'Escrebieux. Thèse. Ecole Polytechnique universitaire de Lille, France. 183 p.
- Lerner DN, Yang Y, Barrett MH et Tellam JH (1999) Loading of non-agricultural nitrogen in urban ground water. Ellis J.B. [Ed.]. In « Impacts of urban growth on surface and groundwater quality ». IAHS publ. No. 259. IAHS press. pp.117–123.
- MAISON P (2000) Un modèle hydrologique de suivi de la pollution diffuse en bassin versant (Approche mécaniste simplifiée de la zone non saturée). Thèse, Institut National de Polytechnique de Toulouse, France. 249 p.
- McDonald MG et Harbaugh AW (1988) MODFLOW, a modular three-dimesional finite-difference grouund-watrer flow model. Technique of Water ressources Investigations of the U.S. Geological Surver. Book 6, 586 p.
- PREAUX C (1986) Constat de l'état actuel de la distribution publique et prospective d'aménagement. Rapport inédit BRGM, 86 SGN 435 NPC.

- Schroder H, Harrenmœs P, Simonsen JF (1985) Water pollution caused by nitrogen from urban wastewater and from agriculture. Congrès international nitrates dans les eaux, vol. 1, Paris, France.
- SEGUIN J.J., MOREAU F., 1986. Migration des nitrates dans la zone non saturée de la craie en Champagne. Rapport BRGM 86 SGN 172 EAU.
- SERHAL H (2006) Influence des pressions anthropiques sur l'évolution des concentrations en nitrates dans la nappe de la craie du Nord de la France. (Applications au Cambrésis et nord Audomarois). Thèse, Ecole Polytechnique universitaire de Lille, France. 200 p.
- Zheng CC (1990) MT3D, a modular three-dimensional transport model. S.S. Report to the U.S. Environmental Protection Agency. Papadopoulos and Associates, Inc., Rockville, Maryland. 170 p.

DARCY 80

Modelling aquifer salinity in the Potash Basin (Alsace)

NOYER Marie-Luce¹, ELSASS Philippe²

¹ BRGM service EAU, BP 6009 45060 ORLEANS CEDEX 2, France ml.noyer@brgm.fr

² BRGM Alsace, Parc Club des Tanneries, B.P. 177 67834 TANNERIES CEDEX, France
p.elsass@brgm.fr

Abstract

Saline pollution resulting from the tailing dumps of the Mines de Potasse d'Alsace (MDPA) affects a great part of the Haut-Rhin department. If the situation of the aquifer upper layer shows a general tendency to improvement following remediation works implemented by the MDPA with the financial partnership of Agence de l'eau Rhin-Meuse (AERM), interrogations remain on the salinity of the deep aquifer layers and on its future evolution. It is therefore important to be able to use a numerical model to simulate the evolution of salinity in deep as well as shallow layers. The objectives of such a management model are mainly to predict the long-term evolution of aquifer salinity and to test pumping scenarios in order to define a programme of aquifer quality restoration. This paper describes the different steps in the construction and calibration of the management model and the main results which were obtained.

Résumé

La pollution saline issue principalement des terrils des Mines de Potasse d'Alsace (MDPA) affecte une grande part du département du Haut-Rhin. Si la situation des tranches superficielles de l'aquifère montre une tendance générale à l'amélioration suite aux travaux de fixation et de dépollution des sources mises en œuvre par les MDPA avec le concours financier de l'Agence de l'eau Rhin-Meuse, des interrogations subsistent sur la salure des couches profondes de la nappe et sur son évolution future. Il est donc utile de pouvoir disposer d'un modèle de gestion permettant de simuler l'évolution de la salure tant en surface qu'en profondeur. Les objectifs d'un tel modèle de gestion sont multiples, notamment : prévoir l'évolution à long terme de la salure de la nappe et tester des scénarios de pompages afin de définir un programme de dépollution de la nappe. Cette communication présente les étapes de définition et de calage du modèle de gestion ainsi que les principaux résultats obtenus.

Introduction

This project was started in 2003 by BRGM with the financial partnership of Région Alsace, AERM and MDPA, following a prototype three-layer model built in 1998 (Noyer et al., 1998). This prototype model had been built on a state of the art basis, with a uniform 500 m grid inherited from former studies. In spite of the innovative results that it brought, the grid of this model was too coarse to be used as a management tool. It was therefore necessary to build a model on a finer grid.

Hydrogeological Context

The model area covers the sector of the Alsace aquifer going from Mulhouse upstream to Colmar downstream, and from the Vosges slopes in the West to the Rhine, which is taken into account in the modelling, in the East (fig.1). Geologically, the whole area belongs to the Rhine plain with Quaternary alluvial deposits resting on a substratum of Oligocene age marls. The alluvial deposits consist of a mixture of sands, pebbles and gravels locally divided by clay layers of varying extension and thickness.

The area can be subdivided in two parts of unequal hydrogeological importance:

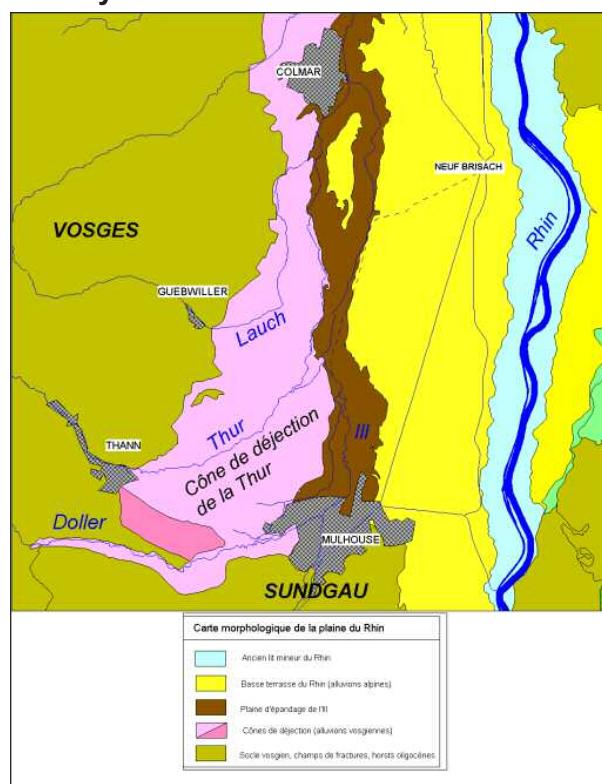
- East of the Ill river, the thickness of the aquifer increases regularly from South to North, from around 20 metres North of Mulhouse to more than 200 m near Neuf-Brisach, with a rise in the substratum along the Ill river, North of Ensisheim, due to the presence of salt diapirs marked by the Meyenheim crest and the Hettenschlag dome;
- West of the Ill river, the aquifer thickness decreases regularly from 80 m approximately near the Ill in direction of the Vosges mountains; it amounts to 20 to 30 m in the sector of the Potash Basin, situated North-West of Mulhouse and is characterized by the tortuous relief of the Tertiary substratum which is carved by a succession of palaeovalleys.

The complex hydrographic network includes the Rhine along with the Grand Canal d'Alsace, the Fecht, the Ill and its tributaries: Lauch, Thur, Vieille-Thur and Doller, the main canals (Vauban, Widensolen, Hardt, Rhône-au-Rhine, Huningue) as well as a network of drainage ditches.

Inputs to the groundwater model consist in the following components: recharge from rainfall, infiltrations from the surface network and inflow coming from the hills located at the southern and western limits of the model (Vosges, Sundgau).

Outputs correspond to the withdrawals for drinking and industrial water in the whole model area plus in the Potash Basin area only, the withdrawals from the fixation-depollution wells installed in the vicinity of the tailing dumps.

Salinity Context



Potash has been mined since the beginning of the 20th century in the Potash Basin located in the south-western part of the model area (fig. 2). The by-products of exploitation, mainly sodium chloride, have then been deposited in tailing dumps on the permeable alluvia or discharged into the rivers (the Thur and the Vieille-Thur) until 1975; after this date, the brines were rejected exclusively into the «saumoduc» created in 1934 to discharge the salt into the Rhine at Fessenheim.

The mine dumps were fed by deposits of salty residues from the ore processing until the end of the Fifties and the salinity of the aquifer results from the dissolution processes

Figure 1: Morphological map of the area

of the salt contained in the dumps by rainfall since the beginning of potash mining.

The pollution results in two distinct saline plumes in groundwater with the following configuration since the beginning of the nineties: the East plume (resulting mainly from the dumps named Joseph Else, Amélie, Anna, Fernand) is initially directed West to East then presents a sharp azimuth variation towards North-East and becomes parallel to the West plume coming from the dumps Marie-Louise, Alex and Rodolphe.

This characterization of the surface origin of aquifer salinity leads us to distinguish two zones of interest regarding data analysis and groundwater modelling:

- the Potash Basin zone, which includes the tailing dumps as main sources of saline infiltration, with maximum local concentrations (up to 50 g/l under the dumps);
- the plume zone downstream in which the main processes are related to the transport with its advective, diffusive and dispersive components, due to the heterogeneity of the velocity field. In this zone, the salt concentration is much lower. The only other salinity sources present in this zone are of much lower amplitude and are due to the infiltration from the surface network into groundwater.

Within the Potash Basin, the fifteen principal mine dumps representing the sources of pollution are organized in seven sectors; their detailed periodic survey is the subject of an annual synthesis report on salinity prepared by BRGM.

Today all these tailing dumps either have already been treated or are in the process of treatment: the most salty dumps are treated by accelerated dissolution with collection of the resulting brine by a surrounding drainage ditch and by fixation wells, while the less salty are equipped with a vegetalized impervious covering.

To complete the review of the known sources of salinity, it is necessary to add a last component of lower amplitude located upstream of the Potash Basin (South-West of the model area). At the outlet of the Thur valley, groundwater is contaminated by the Ochsenfeld industry dumps. The by-products of the industrial processes generate, among other elements, excessive chloride concentrations. The decontamination wells, set up in 1974, limit their impact to a narrow plume (200 mg/L chloride) which joins the plumes issued from the Potash Basin mine dumps. This pollution should cease in 2005 following the installation of a watertight barrier. All

these sources of salinity which are known and taken into account in the modelling are well identified anthropogenic sources. It is not excluded that there may also be natural sources such as brine rising up through faults or issuing from the dissolution of salt domes but these have not been clearly identified up to now.

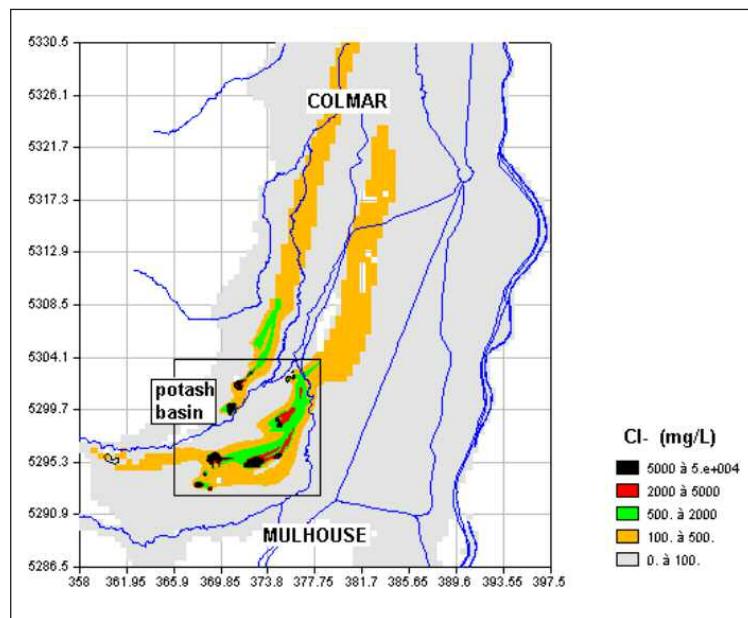


Figure 2: Observed salinity in 2004 in layer 2

Construction of the refined model

The hydrodynamic and transport software package used in this study is the MARTHE code, developed by BRGM (Thiéry, 1995). The construction of the new refined model was based on the re-use of data from the prototype model when it was possible,

completed by the analysis and the integration of the new knowledge obtained since 1998. The main steps of realization were the following:

Total redefinition of the geometry of the alluvial layers

The coarse Quaternary alluvia of the Rhine plain were deposited by the Rhine, bringing clastic material of alpine origin, while the tributaries from the Vosges and the Black Forest brought eroded materials from these ancient mountain ranges.

The distinction between the areas with Vosges material and with alpine material is fundamental for hydrogeology because the Rhine alluvia of alpine origin are well rounded and sorted with few "fines", while the Vosges alluvia are not so well sorted and are less «clean» (i.e. contain more silt and clay).

Concerning the subdivisions inside the alluvia, a multi-layer conceptual model had been established for the prototype hydrodynamic model carried out by the BRGM in 1997 (Noyer et al., 1998). It was based on the cross-border work undertaken in collaboration with the teams of the Bade-Wurtemberg Geological Survey.

The 1998 conceptual model considered 3 layers inside the Rhine alluvia; this subdivision was confirmed by the drillings carried out within the framework of the INTERREG II project «Reconnaissance transfrontalière de l'aquifère profond dans la bande rhénane entre Fessenheim et Breisach » (Regierungspräsidium Freiburg, 2002). This 3 layer conceptual model was thus preserved in the present study for the Rhine alluvia.

But it was necessary to modify the conceptual model of the Vosges alluvia. The drillings carried out since 1998 in the Potash Basin downstream of the mine dumps Amélie and Rodolphe in particular, highlighted the presence of a basal sequence of Vosges alluvia consisting of coarse sand and gravel, relatively permeable, sometimes isolated under a clay layer which had been mistaken for the substratum.

In addition to the redefinition of the alluvia stratification, the substratum and topography were updated. The topography of the prototype model was based on the Digital Elevation Model from Institut Géographique National; the topographic map has been updated in the Potash Basin with data communicated by the MDPA to take into account mining subsidence; these data were topographic contours measured in December 2003. As mining stopped in September 2002 one can consider that the topography of the MDPA in December 2003 is, with a good approximation, the final topography of the area.

To conclude, the conceptual model has been deeply modified since the 1998 prototype version. The three layers of the model after discretization at the 500 m mesh size are presented in figure 3. One can notice that in each layer the thickness varies widely, globally increasing from South-West towards North-East from a sometimes very low value (of the order of the metre) to approximately 65 m for layer 1, 175 m for layer 2 and 37 m for layer 3. None of these layers is completely continuous on the whole of the study area. It is one of the assets of the MARTHE code to be able to manage in a robust and optimal way the local disappearance of the layers as well as the numerical problems likely to occur by mesh dewatering in the south-east part of the model due to a low thickness.

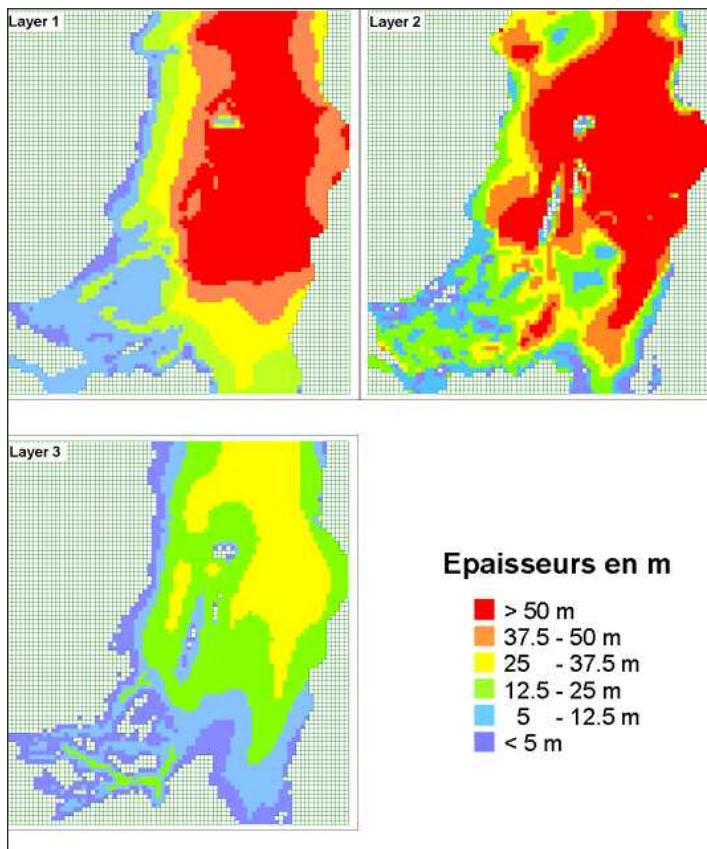


Figure 3: Model geometry -extension and thickness of each layer

A horizontal discretization locally refined with a grid of 125 m

The 1998 prototype model had been built on a state of the art basis, with a uniform 500 m grid inherited from former studies. In spite of the innovative results that it brought, the grid of this model was too coarse to be used as a management tool: Horizontal discretization at the 500 m mesh size was sufficient to represent regional piezometry and even the flows in the rivers, but not to simulate the transport of brines, in particular in the Potash Basin where the distances between the dumps and the fixation-decontamination wells vary between 100 m and 1 km. It is thus clear that in certain cases, a 500 m mesh contains the dumps and one or several wells; consequently, the prototype model enables to simulate in these meshes an «average effect» resulting from the infiltration under the dump and the withdrawals from the wells; obviously, this

average effect can be rather different from the really observed phenomena.

In addition, one important characteristic of the salinity field to be reproduced is the relative narrowness of the salted plumes induced by the transport; thus, the West plume keeps over several kilometres a width of about 500 m which is the size of the prototype mesh; the strong transverse gradients observed in salinity cannot thus be correctly reproduced.

For the construction of the refined model, the choice was made to use the “nested grid” option of the MARTHE code in order to refine the horizontal discretization in the whole Potash Basin where the mesh surface has been divided by 16 as compared to the prototype model (new mesh size is 125 m).

Consequently, all the data are treated in a much more precise way in this sensitive zone; in particular, one can now well distinguish the impact of the infiltrations under the dumps and of the withdrawals from the fixation wells which are in distinct meshes; as already mentioned, this was not in general the case with the 500 m prototype grid.

The updating of all the data necessary for hydrodynamic simulations

The previous studies have shown that the Alsace alluvial aquifer is in strong interaction with the hydrographic network (Rhine, rivers, canals, drains). The dynamic interactions between the aquifer and the surface network must thus be carefully taken into account in the modelling. Consequently, it is necessary to collect the data specific to this network. The following data were thus gathered:

- data characterizing the hydrographic network, which are for each mesh crossed by an element of the surface network: length and width of network section, water height, thickness and permeability of the river bed, roughness of the bed; the last 3 parameters are usually unknown and must be adjusted during the calibration process
- series of monthly discharge since 1975 up to 2004 at 10 gauging stations obtained by interrogation of the HYDRO database; among the 10 stations, 5 are used to characterize the discharges at the entry points of the rivers in the model (Didenheim on the Ill, Masevaux on the Doller, Willer on the Thur, Ungersheim on the Vieille-Thur and Guebwiller on the Lauch river respectively); the 5 other ones are used as control points for the calibration (Staffelfelden on the Thur, Reiningue on the Doller, Ensisheim, Oberhergheim and Colmar on the Ill)
- series of monthly discharges of the Rhine during the same period at the Kembs station (entry point of the Rhine in the model) and some information on the canals provided by the Service de la Navigation de Strasbourg and by the Direction Départementale de l'Agriculture et de la Forêt (DDAF) du Haut-Rhin
- more or less precise data on a more or less shallow network of drainage ditches.

The calculation grid (groundwater and surface network) is presented in figure 4 with the position of the gauging stations. For a better visualisation, the mesh is not shown in the 125 m grid area.

The other necessary data are withdrawal data, hydro-climatic data for recharge calculation and obviously piezometric map and time series.

- Piezometric data: for steady state calibration, the average situation of June, 2002 was retained. The observed piezometric map was thus established using data from the APRONA and MDPA piezometric networks. Series of heads measured on about 20 piezometers distributed in the whole model area were used to calibrate the model in transient state over 27 years (from January 1978 to December 2004). These time series were supplied by APRONA or extracted from the BRGM data bank (Banque de Données du Sous-Sol).
- Hydro-climatic data: long series of temperature, insolation duration and rainfall data acquired from the Météo-France database at 4 climatic stations (Meyenheim, Baldersheim, Mulhouse, Burnhaupt) between 1960 and 2004, at a monthly time step.
- Withdrawals: annual withdrawals since 1975 for drinking and industrial water in the whole model area plus, in the Potash Basin, the withdrawals from the fixation-decontamination wells installed in the vicinity of the mine dumps. This includes all the annual withdrawals except those for irrigation, poorly known and thus neglected. Following the redefinition of the model geometry, these withdrawals were then distributed in each layer according to the position of the borehole screens. The WinMarthe pre-processor enables to import to the input format of the MARTHE software the values thus obtained and to sum them up by mesh and layer. These values can vary significantly from one year to another in particular in the Potash Basin because of the progressive installation of the fixation-decontamination wells.

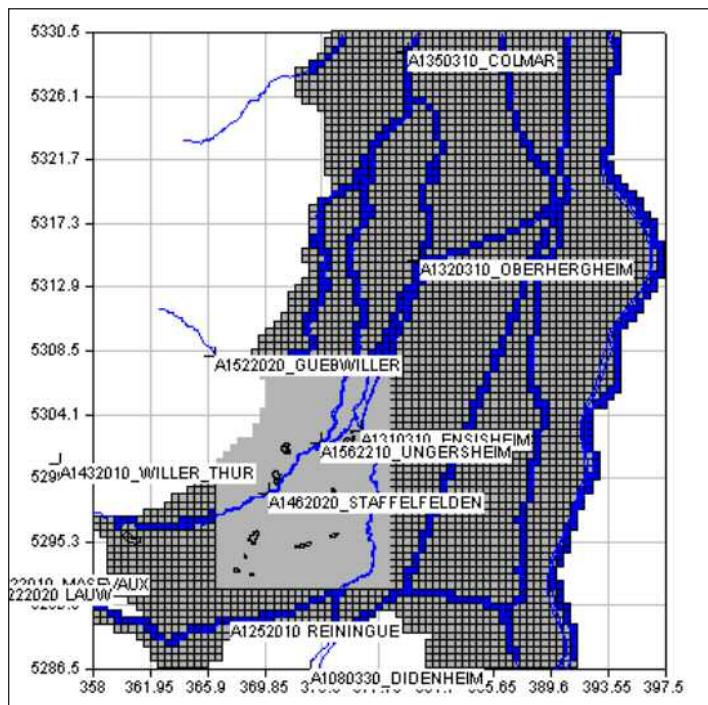


Figure 4 : Aquifer and surface network discretization with locations of gauging stations and mine dumps

calibration period.

Salinity data in the rivers come from a few gauging stations equipped for the recording of the chloride concentration and located on the main rivers: Thur, Vieille-Thur, Ill, Lauch, Doller.

The other required data for the transport modelling are related to the dumps (surface, treatment history and time series of infiltration, planned evolution) and the fixation-decontamination wells (time series of concentration and discharge, planned evolution); these data were provided by the MDPA for the calibration period (1991-2004). The infiltration data under the dumps are estimated by the MDPA on the basis of the study known as Graillat study (Graillat and Brunck, 1980) and progressively adjusted according to the observations made during operations on the dumps and to the evolution of their surface of influence during their rehabilitation.

The infiltration data were provided by the MDPA in tons of NaCl per year on each dump; they were transformed into kg of Cl⁻ per month and m²; MARTHE is then able to directly read these values at each time step of the calculation.

Model Calibration

- The model calibration was carried out in three phases with iterations between phases:
- Hydrodynamic calibration in steady state regime on the June 2002 situation;
- Hydrodynamic calibration in transient state regime on 27 hydrological cycles (January 1978 to December 2004) at a monthly time step, taking into account the dynamic interactions with the hydrographic network (Rhine, rivers, canals, drains); 5 gauge stations and approximately 20 observation wells were used as control points ;

A better definition of the salinity and its evolution under the effect of various decontamination operations

The BRGM (Service Régional d'Alsace) carries out a monitoring of the groundwater contamination by salinity, collects chloride concentrations from various locations of the aquifer and of the hydrographic network and publishes annual reports. For these reports, it establishes the annual map of the salinity distribution using data measured at the various observation points.

For the transport simulation, two salinity situations were discretized, layer by layer, using the observed data of the 1991 situation as initial condition for the transport calibration and of the 2004 situation in order to check the results at the end of the

- Mass transport calibration at a monthly time step from January 1992 to December 2004 with control on the salinity maps of 2004 and on the evolutions in 19 observation wells with one or more screened levels, distributed in the Potash Basin and the East and West plumes, and in 17 fixation or decontamination wells located downstream from the mine dumps.

For the calibration, the following options were retained:

- *Integrated recharge calculation*: definition of 5 hydroclimatic zones based on a map of average annual rainfall from AERM and on long series of meteorological data on 5 stations. For each zone, using the BRGM lumped hydrological model GARDENIA (Thiéry, 2003) in rainfall/discharge conditions on 14 to 30 years of measured rainfall data and calculated potential evapotranspiration data (PET), estimates of the calibration parameters were obtained. These estimates are read by the hydrodynamic code MARTHE which is then able, for each zone and each time step to calculate the balance rainfall/PET and to distribute the surplus of rainfall between infiltration to the water table and runoff to the surface network.
- *Groundwater/surface water interactions*: a dynamic treatment of the interactions was carried out based on a relation between water height and discharge in the rivers according to a Manning-Strickler law. It was calibrated on the river discharge measured at 5 gauging stations.
- *Dealing with the density effects*: on the extension of the salt plumes, salinity varies from almost 50 g/l under the tailing dumps to less than 200 mg/l at the downstream end of the plumes but this concentration, very high in the vicinity of the dumps decreases very quickly with the distance of the observation point away from the source; consequently, and the calculations previously carried out with the prototype model enabled to check it, the density effects can affect the velocity field only in the immediate vicinity of the spoil heaps, and isodensity transport driven only by the pressure gradient is dominant downstream. Moreover, in order to perform a detailed simulation of the density effect in the vicinity of the spoil heaps, it would be necessary to set up in this area an inner model which would be based on the 3 layer geometry of the present model with a refined vertical discretization of each layer into several sub-layers. Obviously this fine vertical discretization is not necessary over the whole extent of the present model. In order to avoid unnecessarily complicating the already heavy calculations, the decision was taken to simulate the density effects under the dumps by distributing the infiltration in the 3 layers of the model. This distribution is calibrated on the chloride concentration observed in the fixation-decontamination wells downstream from the dumps and on the concentration maps observed in 2004 in each layer.

Results

In figures 5 and 6, two illustrations of the hydrodynamic calibration in transient regime are presented, the first one on an observation well located near Ensisheim, the second one on a gauging station at Staffelfelden, both in the Potash Basin; the locations of these two points are shown in figure 4.

After an adjustment period on some hydrological cycles which is necessary because the initial condition (steady state simulation on the June 2002 situation) is different from the obser-

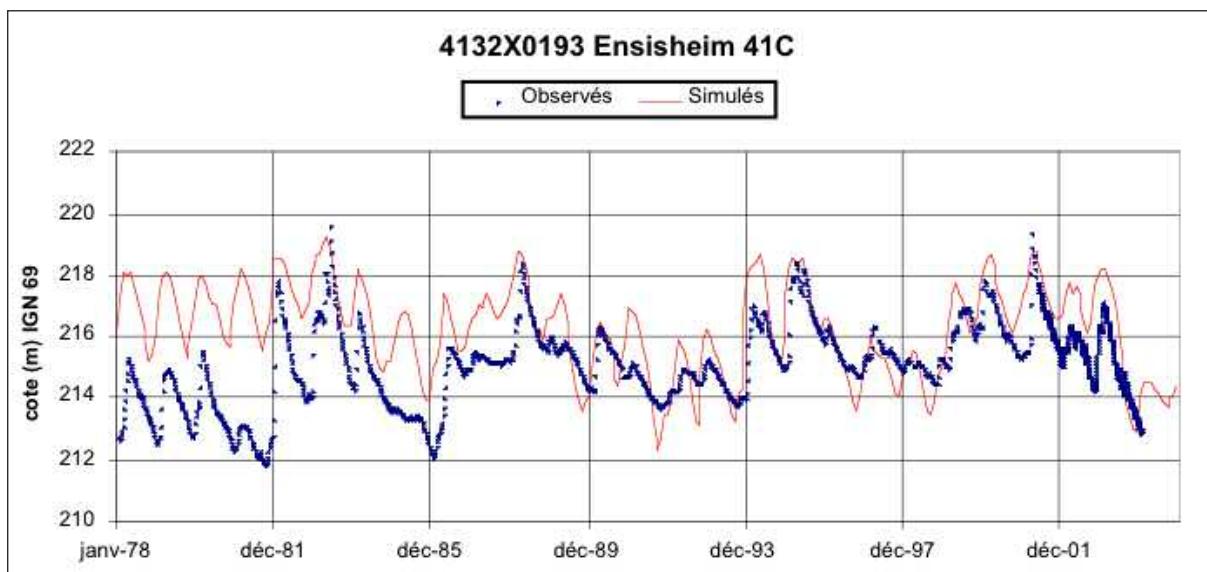


Figure 5: Example of head calibration on an observation well at the output of the Potash Basin

ved situation at the beginning of the series (January 1978), it can be observed that the fitting of the piezometry is quite satisfactory.

Also the fitting of the simulated discharge of the Thur river at Staffelfelden is quite good on the whole simulation period, especially for the low water periods.

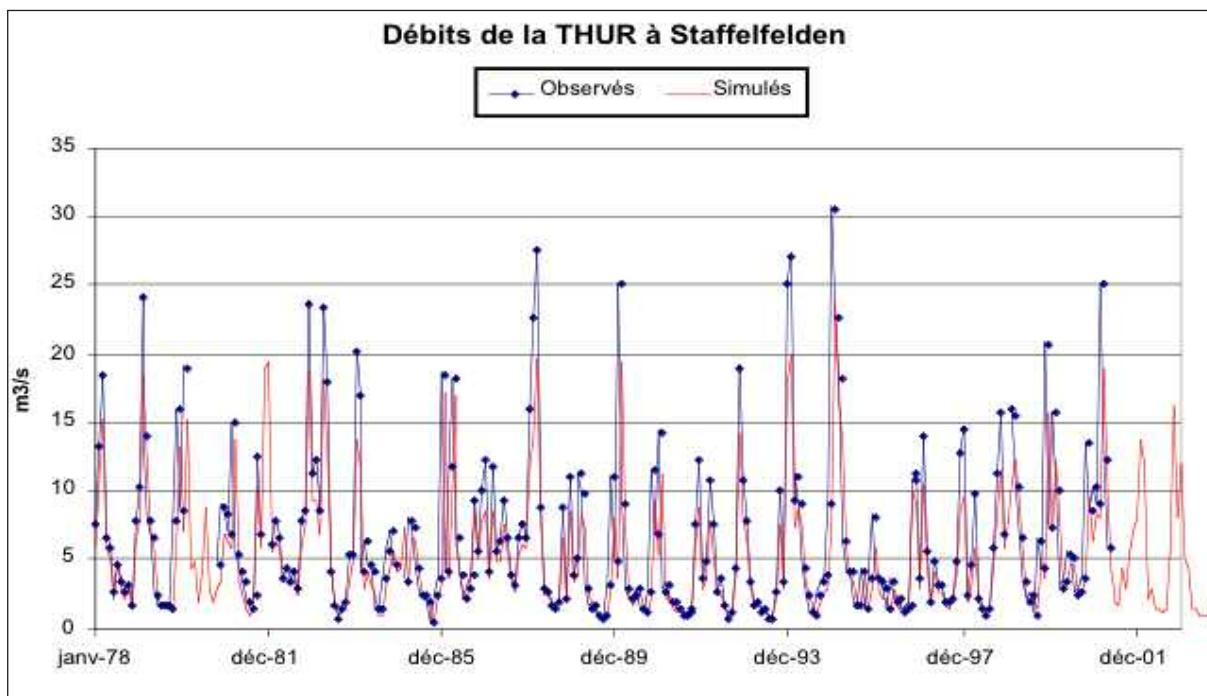


Figure 6: Example of discharge calibration on the Thur river inside the Potash Basin

The results on the other observation wells and gauge stations are of similar accuracy on the calibration period and can be seen in (Noyer and Elsass, 2005).

In figures 7 and 8, two illustrations of the mass transport calibration are presented. Figure 7 presents the concentration evolution on an observation well with multiple screening: 1/15M and 2/25M tapping layer 2, 4/38M tapping layer 3.

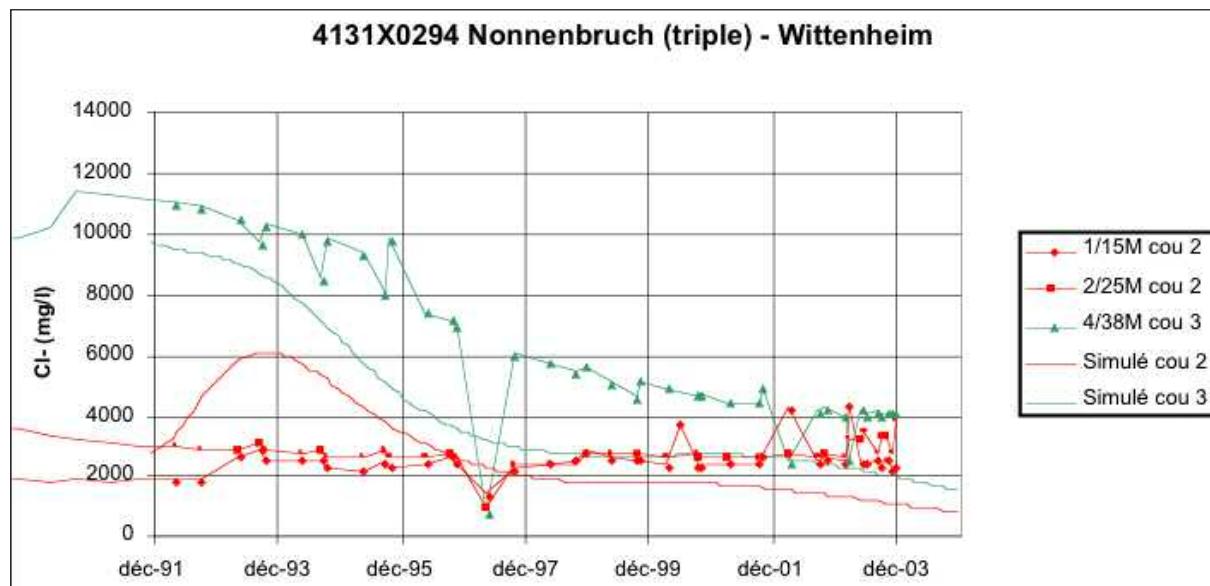


Figure 7: Example of transport calibration on a multiple piezometer in the Potash Basin

The simulated concentration curves are labelled according to the tapped layer ("cou" for "couche" meaning "layer").

Figure 8 presents the concentration evolution on a fixation well downstream from the dump Amélie in an area of high saline density. The well doesn't tap layer 3; at the end of the observed curve, a sudden increase in concentration can be observed: it is due to the start of the accelerated dissolution treatment of the dump; this feature has not been taken into account in the modelling because of the complexity of the process.

Moreover, the observed and simulated salinity maps at the end of the calibration period (December 2004) are presented in figure 9. They show an overall satisfactory agreement.

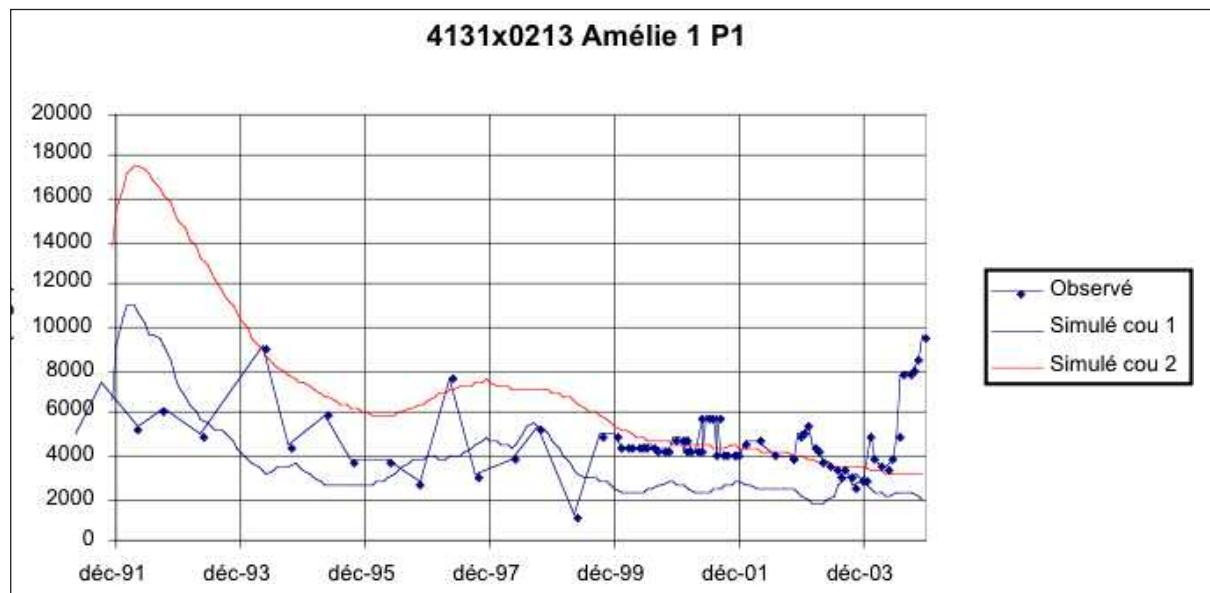


Figure 8: Example of transport calibration on a fixation well near dump Amélie

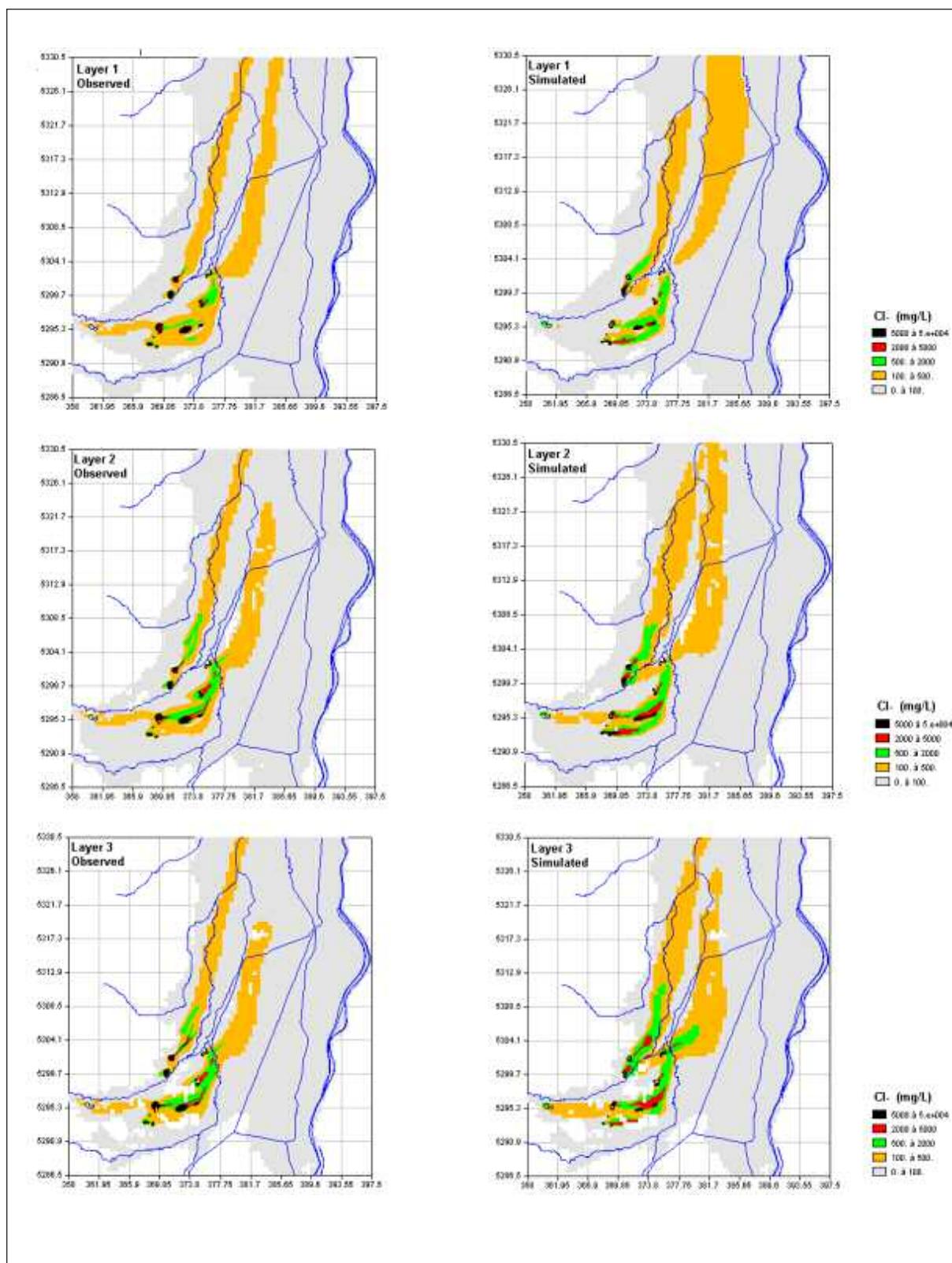


Figure 9: Observed and simulated salinity maps in 2004

Conclusions

In spite of some inaccuracies in the immediate vicinity of the tailing dumps where the density effects are very significant, the restitution at the end of the calibration period of the observed maps and series is globally satisfactory.

After the completion of the calibration process, various exploitation scenarios were implemented, in particular in order to forecast the future evolution of salinity in the study area, according to various assumptions on the future course of pumping operations by the MDPA.

References

- Graillat A., Brunck R. (1980) Direction interdépartementale de l'industrie région Alsace. Les terrils du bassin potassique. Etude en vue de leur neutralisation vis à vis de la pollution saline des eaux phréatiques et de leur insertion dans le paysage. Novembre 1980
- Noyer M.L., Menjouz A., Thiéry D., Elsass P., Martin J.C (1998) Modélisations monocouche et multicouche de la nappe d'Alsace dans la zone du Bassin Potassique., in AIH - Journée technique du Comité français de l'AIH - 5ème - Strasbourg - France - 27/11/1998, p. 33-38
- Noyer M.L., Elsass P. (2005) Modélisation de la salure profonde au droit et en aval du Bassin Potassique. Rapport BRGM RP54389-FR
- REGIERUNGSPRÄSIDIUM FREIBURG (2002) – Reconnaissance transfrontalière de l'aquifère profond dans la bande rhénane entre Fessenheim et Breisach. Rapport final projet Interreg II.
- Thiéry D. (1995) Modélisation 3D du transport de masse avec le logiciel MARTHE version 5.4. Rapport BRGM R 38149 DR/HYT 95.
- Thiéry D. (2003) Logiciel GARDÉNIA version 6.0. Guide d'utilisation. Rapport BRGM RP52832-FR

DARCY 93

La préservation de la qualité des eaux souterraines comme enjeu central de la politique nationale en matière de sites et sols pollués

Joindot T., Gilbert D., (MEDD/SEI – DPPR/BPSPR)
Darmendrail D., Mossmann J.-R., Chartier R., D. Fauconnier (BRGM)
r.chartier@brgm.fr

Dans le domaine des sites et sols pollués, les situations sont caractérisées par des enjeux sanitaires, environnementaux, mais aussi par des enjeux en termes de responsabilités impliquant non seulement les exploitants ou les promoteurs mais aussi les pouvoirs publics garants de la santé et de la sécurité publique. Dans ce contexte, les mesures de gestion nécessitent à la fois des critères de prise de décisions explicites, argumentés et transparents ainsi que la mise en œuvre d'actions pertinentes et adaptées.

Dans nombre de cas, l'expérience passée montre pourtant des processus de décisions conduisant à des choix de gestion mal ajustés et des actions de maîtrise insuffisantes, notamment vis-à-vis des pollutions des eaux souterraines. Si les causes peuvent être multiples, on constate cependant qu'elles sont liées non seulement à la complexité de certaines situations, aux multiples facteurs d'incertitudes, mais surtout aux informations lacunaires sur la pollution et les compartiments environnementaux.

Des outils méthodologiques élaborés sous l'égide du Ministère en charge de l'environnement relatifs aux sites et sols pollués identifient trois domaines clefs à étudier : 1) la caractérisation des compartiments environnementaux et de la pollution, 2) l'analyse des enjeux humains et environnementaux à protéger, 3) les actions de gestion des pollutions. Sur cette base, un bilan coût – avantage, adossé à des informations spécifiques au site, fiables, et suffisamment complètes pour cerner toutes les composantes du problème, vise à évaluer les intérêts et inconvénients de chacune des options possibles de gestion, et ce sans remettre en cause les principes d'évaluation des risques existants. Cette orientation permet de préciser l'information élémentaire et incontournable sur laquelle fonder le processus de décision : la connaissance des compartiments environnementaux et des pollutions.

La connaissance de l'état des milieux nécessite l'acquisition, l'organisation et l'interprétation de données de terrain spécifiques au site et représentatives du contexte local. Les campagnes de mesures n'ont pas vocation à être exhaustives mais doivent être menées de manière réfléchie pour être représentatives de la situation examinée. Elles doivent donc être proportionnées et orientées en fonction des enjeux sanitaires et environnementaux pertinents identifiés au travers du schéma conceptuel. Parallèlement, le niveau de compréhension des phénomènes physico-chimiques mis en jeux, essentiel à l'élaboration d'un « schéma conceptuel », est entièrement dépendant de cette connaissance des pollutions, et donc des données de terrain acquises, tant en quantité qu'en qualité.

Déclinée dans le domaine de la pollution, des eaux souterraines, cette politique vise explicitement, dans la mesure du possible, une maîtrise des sources de pollution identifiées dans les sols ou le sous-sol (y compris les sources secondaires au contact ou incluses dans les nappes) et une maîtrise des impacts, que ceux-ci soient constatés et déjà anciens, ou simplement présumés, voire préfigurés dans l'avenir. Les campagnes de mesures et les actions de gestion des pollutions ainsi conçues sont décidées au regard des enjeux sanitaires et environnementaux identifiés et de façon spécifique au problème posé.

DARCY 94

Détermination des zones de vulnérabilité à la pollution par différentes méthodes: application à la nappe alluviale de Tébessa (Algéri)

L. DJABRI*-A.HANI*-Ch.LAMOUROUX**

*11, Rue Asla Hocine, Annaba 23000, Algérie. Fax: 213.38.87.14.48,
guasmi_imen @ yahoo.fr.

** Laboratoire des basins sédimentaires. Bat SN5. Villeneuve d'ascq Lille 59000
christian.lamouroux@univ-lille1.fr

Résumé

Les méthodes d'étude de la vulnérabilité des eaux à la pollution sont nombreuses et incomplètes ce qui rend la tache des chercheurs ardue. Pour réaliser le présent travail nous avons combiné les informations données par deux outils :

-la méthode DRASTIC,

-le rapport Sr/Ca déterminé à partir des analyses chimiques des eaux de la région.

La première méthode présente l'avantage de combiner sept (07) paramètres mais ces derniers sont appréciés par l'utilisateur, par contre la seconde repose sur des informations chiffrées qui peuvent s'avérer d'un grand apport..

Les informations fournies par les deux méthodes ont été appliquées à la nappe alluviale de Tébessa. Cette zone est caractérisée par un climat semi aride, l'affleurement de formations très hétérogène et une salinité des eaux relativement importantes avec une conductivité atteignant 15 000 $\mu\text{s}/\text{cm}$. Ces facteurs peuvent engendrer une pollution des eaux. Les méthodes choisies permettent de résoudre le problème de pollution qui semble exister. La méthode DRASTIC conduit à l'élaboration de la carte de vulnérabilité qui sera comparée aux résultats donnés par le rapport $\text{Sr}^{2+}/\text{Ca}^{2+}$.

L'observation et la superposition des deux cartes réalisées montre que les zones les plus vulnérables se situent au niveau des Oueds Kebir et Chabro , au niveau de ces zones le rapport $\text{Sr}^{2+}/\text{Ca}^{2+} > 3\%$, mettant en évidence une pollution des eaux par les évaporites affleurant au niveau du Djebel Djebissa. Par contre, sur les bordures, le rapport $\text{Sr}^{2+}/\text{Ca}^{2+}$ est inférieur à 1%, dans ce cas l'influence des évaporites est absente, entre les zones on note une baisse de la valeur du rapport celui ci atteint $\text{Sr/Ca}=2\%$ et moins, ce qui indique une vulnérabilité de moindre envergure. Cette étude permis de comprendre le déroulement du mécanisme de vulnérabilité par le biais d'acquisition de la salinité.

DARCY 95

A new susceptibility index to assess the aquifer vulnerability in regions with intensive and extensive agricultural activities

Ribeiro L.

CVRM – Instituto Superior Técnico Av. Rovisco Pais
1049-001 Lisbon, Portugal
nlrib@alfa.ist.utl.pt

Intensive agriculture requires large amounts of fertiliser, which induces groundwater contamination by nitrates.

DRASTIC is one of the most widely used groundwater vulnerability assessment methods. However in several case studies, this intrinsic method underestimates the vulnerability degree specially in what concerns the dilution capacity and the attenuating potential of the unsaturated zone of the aquifer. This is a consequence of some weakness in its methodology such as the redundancy of some parameters and the use of an arbitrary weight system in the calculation of the index.

The Susceptibility Index (SI) was developed with the intention of evaluating aquifer vulnerability to diffuse agricultural pollution, overcoming the fragilities of DRASTIC. This new method is an adaptation of the DRASTIC method, where three parameters were deliberately left out of its construction: soil (S), unsaturated zone (I) and hydraulic conductivity (C). A new parameter is considered land use (LU) abandoning the concept of a purely intrinsic vulnerability assessment method. The weight string for SI is also new and determined by a DELPHI team of Portuguese scientists

This new 5-parameter system method has a specific nature in the sense that integrates the contamination risk placed upon aquifers by agricultural activities.

SI was widely applied with enormous success in various case studies in Portugal (Ribeiro et al., 2003; Stigter et al. 2006) to assess the impact of irrigated agriculture on groundwater quality. This is clearly shown by comparing the obtained results with the spatial distribution of nitrate concentrations in the upper aquifers, confirming the superiority of the specific methods upon the intrinsic ones.

References

- Ribeiro L., Serra E., Paralta E., Nascimento J. 2003 - Nitrate Pollution in Hardrock Formations: Vulnerability and Risk Evaluation by Geomathematical Methods in Serpa-Brinches Aquifer (South Portugal) in J. Krázn, Z. Hrkal & J. Bruthans (eds) Proc of IAH International Conference on Groundwater in Fractured Rocks', 377-378, Prague, Czech Republic.
- Stigter T.Y., Ribeiro L., Carvalho Dill A.M.M. 2006 - Evaluation of an Intrinsic and a Specific Vulnerability Assessment Method in Comparison with Groundwater Salinisation and Nitrate Contamination Levels in Two Agricultural Regions in the South of Portugal Hydrogeology Journal, (14) pp. 79-99

DARCY 131

Vulnerability study of the Union Brewery water body

TRCEK Branka ¹, JUREN Andrej ²

¹ Geological Survey of Slovenia, Dimiceva ul. 14, SI-1000 Ljubljana, Slovenia,
branka.trcek@geo-zs.si

² Geosi d.o.o Geological Institute, Kebetova 24, SI-1000 Ljubljana, Slovenia, g
eosil@siol.net

Abstract

A study of groundwater flow and solute transport commenced in the area of the Union Brewery water body with the intention of a) assessing and predicting the movement of groundwater and urban contaminants through the unsaturated or/and saturated zone of the Pleistocene gravel aquifer and of b) analysing the risk of contaminant transport to drinking-water resources in the lower Pleistocene gravel aquifer. The monitoring was conducted in numerous piezometers as well as at the lysimeter, which has been constructed to control the impacts of industry and traffic on the gravel aquifer. The physico-chemical and isotopic properties of sampled groundwater have produced general information on the hydrodynamic functioning of the study area. Two important flow types were identified - lateral and vertical flow. The former has an important role in groundwater protection, while the latter is the main influence on contaminant transport towards the aquifer saturated zone.

Introduction

Groundwater from a Pleistocene alluvial gravel aquifer is an increasingly important drinking-water resource for the Ljubljana area (Slovenia). It is also an invaluable water resource for Union Brewery, which is located within a highly urbanised and industrialised area near the centre of Ljubljana and supplies quality groundwater of the lower gravel aquifer from 4 production wells (Fig. 1). Groundwater is bottled as source water and it is used for the beer and soft drinks production.

The lower gravel aquifer is bounded by an impermeable barrier from the upper gravel aquifer, which is, however, contaminated by the inorganic, organic and microbial pollution. Fortunately, this contaminated groundwater does not influence the present brewery production wells, owing to their successful reconstruction during the last decade. In order to protect the brewery drinking-water resources from pollution an extensive study of groundwater flow and solute transport commenced in the area of the Union Brewery water body with the intention of a) assessing and predicting the movement of groundwater and urban contaminants through the unsaturated or/and saturated zone of the Pleistocene gravel aquifer and of b) analysing the risk of contaminant transport to drinking-water resources in the lower Pleistocene gravel aquifer.

Flow and solute transport monitoring was conducted in numerous piezometers within the brewery and in its vicinity (some of them are illustrated in Fig. 1), as well as at the lysimeter (Fig. 1), which is a topic of this paper. The main goal of the lysimeter monitoring is to study possible contamination in the vicinity of the brewery and with that to evaluate the role of the unsaturated zone in protection of groundwater from the Pleistocene alluvial gravel aquifer.

Description of the study area

The urban lysimeter of Union Brewery was constructed adjacent to the brewery (Fig. 1). 42 boreholes were drilled into the right and left side of the 8.5 m deep construction (Fig. 2). To illustrate this, projections of boreholes in the right upper level wall are depicted in Figure 2. The right wall of the lysimeter, which is located under the industrial railway tracks, contains 36 boreholes that are up to 8 m long. They are distributed in six columns (1-6) and six levels (I-VI) at depths of 0.3, 0.6, 1.2, 1.8, 3.0 and 4.0 m (Figs. 2, 3). The boreholes are defined by their distribution: RI-1, RI-2,.....RVI-5, RVI-6.

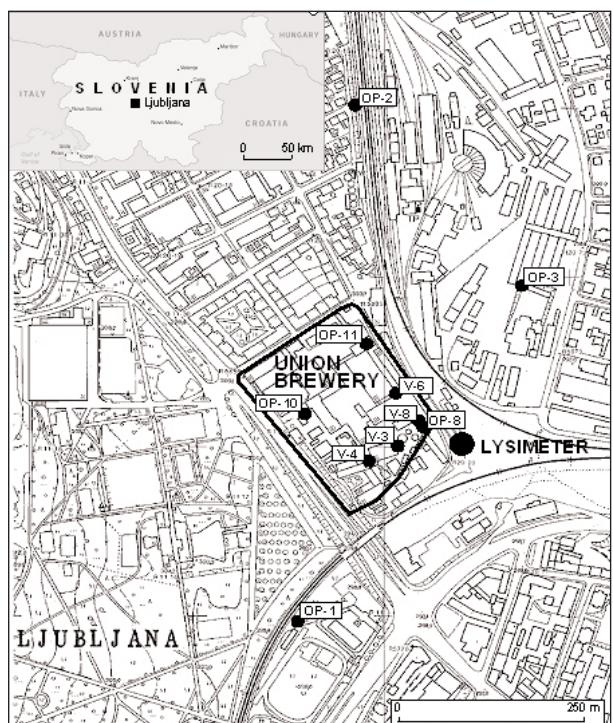


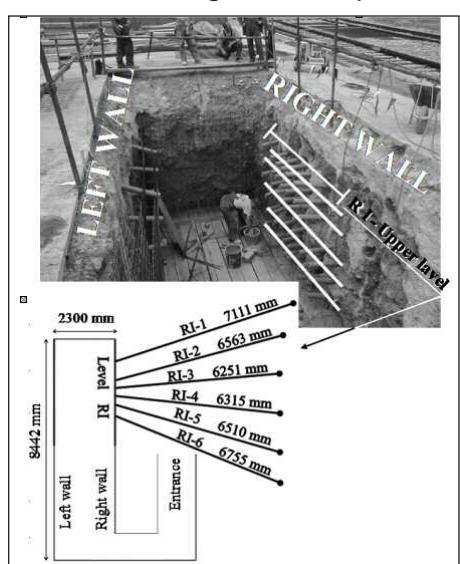
Figure 1: Study site (OP-X: piezometer, V-X: production well)

A further six boreholes were drilled beneath the asphalt surface into the left wall of the lysimeter (Fig. 2). They are distributed in six columns (1-6) and three levels (I-III) at depths of 0.60, 1.20 and 1.80 m. Hence, they are named referred to as LI-1, LI-2, LIII-5, LIII-6.

By the beginning of January 2003, the lysimeter was completely equipped with a UMS environmental monitoring system - the recording and sampling system. 15 tensiometers, 9 TDR probes and 21 suction cups were installed into the boreholes, as listed in Table 1. The boreholes penetrate four layers: sandy gravel, silt-sandy gravel, clayey silt-sandy silt with gravel grains and gravel with sand and silt. The upper three layers are not autochthonous; therefore they are called artificial layers. However, the fourth layer is autochthon and consists of river deposits. A detailed geological cross-section of the ends of the boreholes in the right wall of the lysimeter is presented in Figure 3.

Methods and techniques

The methodological concept of the research at the lysimeter (Berg et al. 2001 ; Fank et al.



1991 ; Klotz et al. 1999) is designed on a multi-parametric approach (Clark and Fritz 1997 ; Trcek and Juren 2004, 2005) that bases on the groundwater inorganic, organic and microbial composition, on the groundwater oxygen and hydrogen isotopic composition and on hydrodynamic parameters. Information obtained by each studied parameter completes each other and provides an insight into the flow and solute transport processes in the water body. For all that the sampling method, including the long-term or short-term sampling regime, is a part with the multi-parametric approach. The short-term sampling is important for the study of the fast vertical recharge (Seiler et al. 2000 ; Nimmo 2002 ; Trcek 2003).

Figure 2: Lysimeter construction with the projection of the upper right level boreholes RI-1-6 (modified after Juren et al. 2003)

Monitoring of flow and solute transport processes at the lysimeter commenced in June 2003. During the first year of research, continuous measurements of hydrodynamic parameters (capillary pressure and water content), of water balance and of physico-chemical water parameters (pH and electroconductivity) were carried out to obtain basic information on the study area. In addition, the monthly water sampling for analyses of the ^{18}O and ^2H isotopic composition was undertaken to establish additional information about the mixing processes and groundwater residence times in the unsaturated zone. Groundwater was sampled with suction cups installed at the end of the boreholes. A total of 18 sampling points were established on the right side of the lysimeter: RI-1 to RI-3, RII-1 to RII-3 and RIII-1 to RIII-3 (Tab. 1, Fig. 3), whereas on left side of the lysimeter only 3 sampling points were established: LI-4, LII-5 and LIII-6 (Tab. 1). In addition, precipitation was sampled near the entrance to the lysimeter.

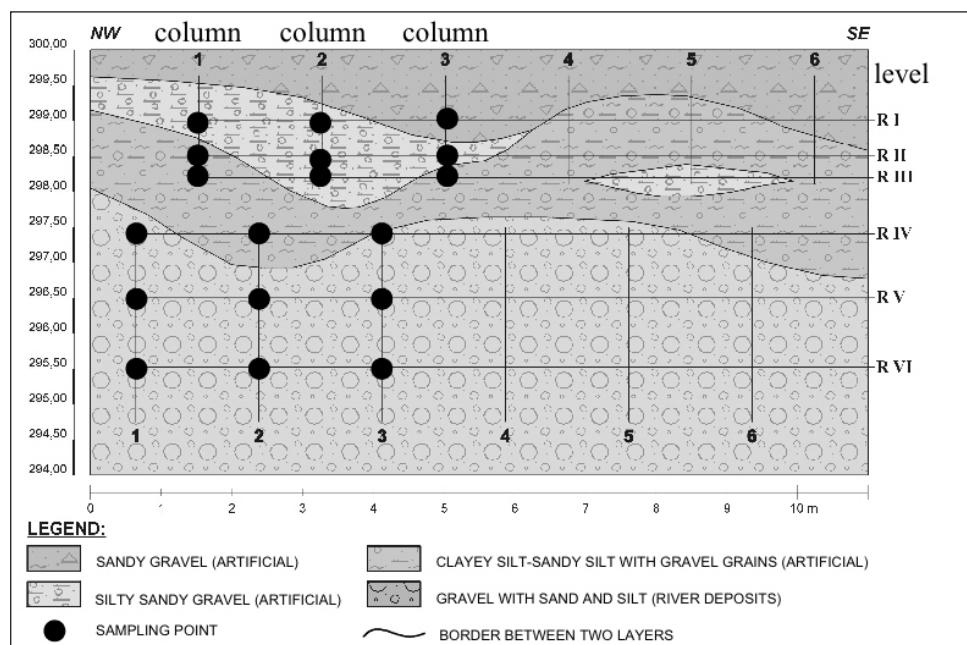


Figure 3: Geological cross-section on the right side of the lysimeter at the end of boreholes, with sampling points (modified after Juren et al, 2003)

Results

The water balance for the lysimeter sampling points during the first phase of the research is presented in Table 2. There is an absence of data for sampling points RIII-2 and RIII-3 for the first part of the monitoring period, because a proper measuring system was only established in April 2004. Nevertheless, it can be observed in Table 2 that these two sampling points discharged the highest volumes, and that on both, the right and left side of the lysimeter, the bulk of water is discharged to sampling points on level III. It is important to note that a low discharge occurs under the asphalt surface (LIII-6, since none of the other sampling points yield any drainage water at that period).

right side	column						left side	column					
	1	2	3	4	5	6		6	5	4	3	2	1
RI	■	■	■	□	○	○	LI		■○				□
RII	■	■	■	□	○	○	LII		■○				□
RIII	■	■	■	□	○	○	LIII	■○				□	
RIV	■	■	■	□	○	○							
RV	■	■	■	□	○	○							
RVI	■	■	■	□	○	○							

Table 1 Position of measuring probes installed in the lysimeter boreholes (■ - installed suction cups, □ - installed TDR probes, ○ - installed tensiometer

Figure 3 illustrates that the sampling points on level III are located near the contact between two structurally different layers: silt-sandy gravel and underlying clayey silt-sandy silt with gravel grains. The hydraulic conductivity of the upper layer is higher than that of the lower layer. Therefore it is presumed that the greater volumes discharged from level III result from the development of a lateral flow component.

	RII	RV	RI	RII	RIII	RIV	RVI	RI	Volume (ml)						Vol.(mm)
									RIII	RIV	RV	RVI	LIII	Precipi-tation	
10.7.03	280	340	86	41		70	19	455		110	45	160	5	57.7	
27.8.03	385	490	38	45		95	38	370		45	65	38		71.6	
17.9.03	175	175	21	20		50		220			40		38	44.5	
16.10.03	380	200	110	24		890	29	190		100	24	40	37	110.7	
12.11.03	190	180	100	20		60	55	180			20	30		121.4	
9.12.03	190		60	20		60		120					20	73.8	
20.1.04	280		20			80		90						150.3	
17.2.04	180	10	35	20		48		25		27	7	7	10	12.7	
25.3.04	230	30	190			50		40				35	20	122.5	
15.4.04	420		110		49936	620			75580	40			25	94.3	
12.5.04	190	23	25	27	79590	40		20	92550		20	35	5	64.8	
15.6.04	520	10	30	20	76880	510		110	136210	50	20	30	25	83.1	
13.7.04	210	40	100	20	81140	50		150	125330		30	30	15	133.0	
11.8.04	220	25	80	22	89320	70			132530		70	50	20	89.2	
total volume	3420	1485	825	237		2573	141	1820		372	241	375	185	1007.4	

Table 2: Water balance of the lysimeter sampling points

On the other hand volume of discharge from sampling points at the lower levels, particularly from RIV-2 (October 2003, April and June 2004).

The characteristics of the electroconductivity of sampled water are presented in Figure 5. On the right side of the lysimeter the parameter ranges from 180 to 615 mS/cm. Significantly higher values were measured on the left side of the lysimeter - up to 4000 mS/cm. These most probably result from winter contamination.

The lowest electroconductivity values in the lysimeter are connected with levels I and II, whereas the highest values are connected with level III (Fig. 5), which reflects the important role of the lateral flow component near this level.

In addition, Figure 5 also illustrates when and where the vertical flow component dominated. The vertical breakthrough of water from level III into level IV is particularly highlighted for April 04.

The $\delta^{18}\text{O}$ isotopic composition of sampled water is presented in Figures 6 and 7. The figures illustrate the parameter time-trends for groundwater of the lysimeter upper and lower levels, respectively. Precipitation values range between -4.1 and -15.2 ‰ with the mean value of -8.9 ‰ . Groundwater values vary between -4.5 and -14.7 ‰ , whilst the means of single sampling points are between -8 and -10.7 ‰ . The means that as well as the spread of $\delta^{18}\text{O}$ for the various lysimeter sampling points differ significantly. These differences most probably reflect different residence times of the seepage water. Comparison with precipitation indicates that the ranges of groundwater for the upper two levels (I and II) are highest, reflecting the intensive groundwater dynamics and short residence times (Fig. 6). On the other hand, the parameter variation is much more attenuated for the lysimeter lower levels (III, IV, V and VI), which reflects less intensive dynamics and longer groundwater residence times (Fig 7).

Peak values of $\delta^{18}\text{O}$ in Figures 6 and 7 indicate vertical flow and solute transport in the aquifer during the main hydrological events, i.e. in October 2003 and April 2004. For example, in April 2004, precipitation pushed low $\delta^{18}\text{O}$ water into the lower lysimeter levels (Fig. 7). It is presumed that these values may have resulted from snowmelt. The influences of snowmelt may be observed in the lysimeter upper levels one month earlier (Fig. 6).

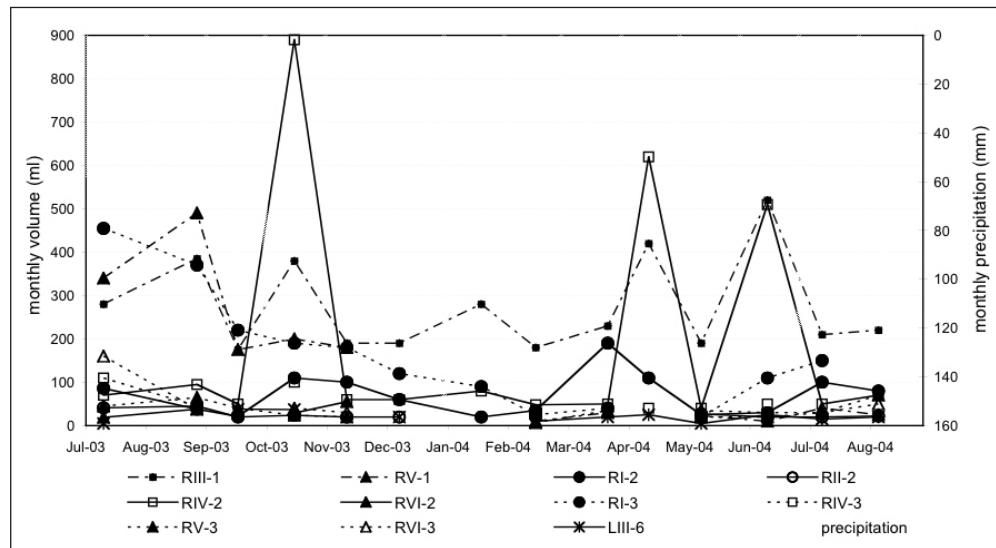


Figure 4: Monthly water volumes collected at the lysimeter sampling points

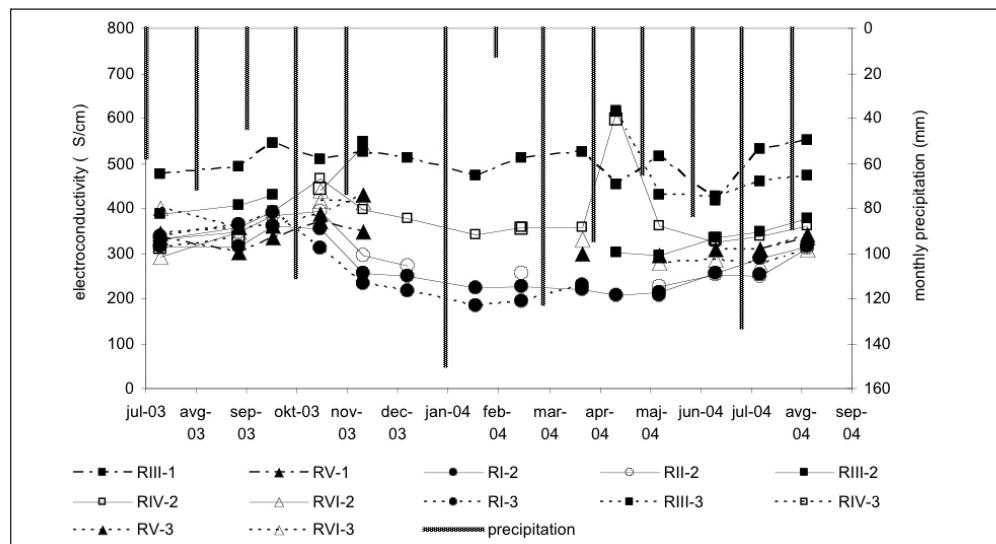


Figure 5: Time-trend plot of electroconductivity values for water sampled on the right side of the lysimeter beneath the industrial railway way tracks

Discussion and conclusions

The results of the first phase of the research at the lysimeter of Union Brewery have produced general information on the hydrodynamic functioning of the study area and on solute transport. Synthesis of one-year of monitoring data has revealed the basic characteristics of flow and solute/contaminant transport, since the main flow components, the flow hierarchy and the environmental response to the flow system are all indicated. Two important flow types were identified - lateral and the vertical flow. Lateral flow has an important role in the protection of groundwater from the Pleistocene alluvial gravel aquifer. However, the role of vertical flow is quite the opposite, because it is the main factor controlling contaminant transport towards the aquifer saturated zone. Hence investigation of the occurrence and frequency of such rapid recharge events represents one of the main themes of the next research phases. With this regard, monitoring of chlorides, heavy metals and herbicides has been established at the beginning of 2005 and the first tracing test was undertaken at the end of March 2005.

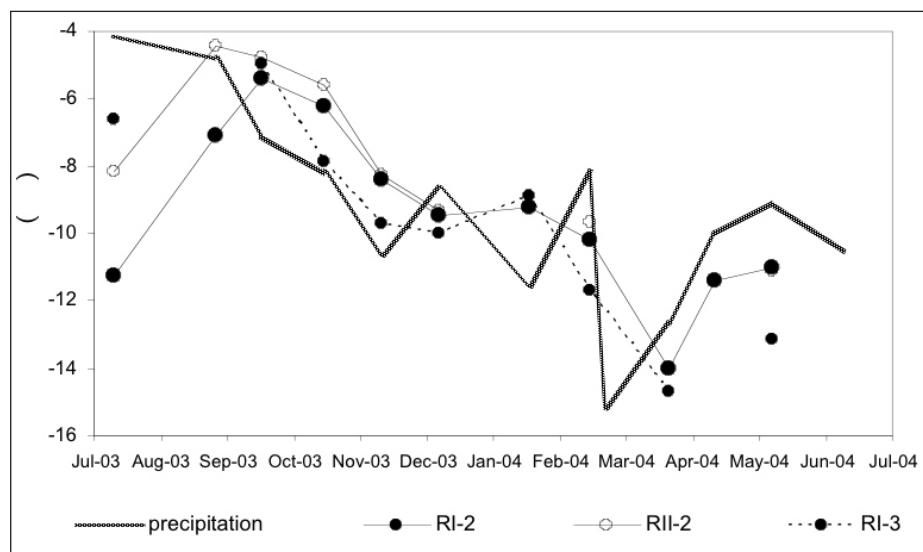


Figure 6: Time-trend plot of $\delta^{18}\text{O}$ values in water sampled from the lysimeter upper levels

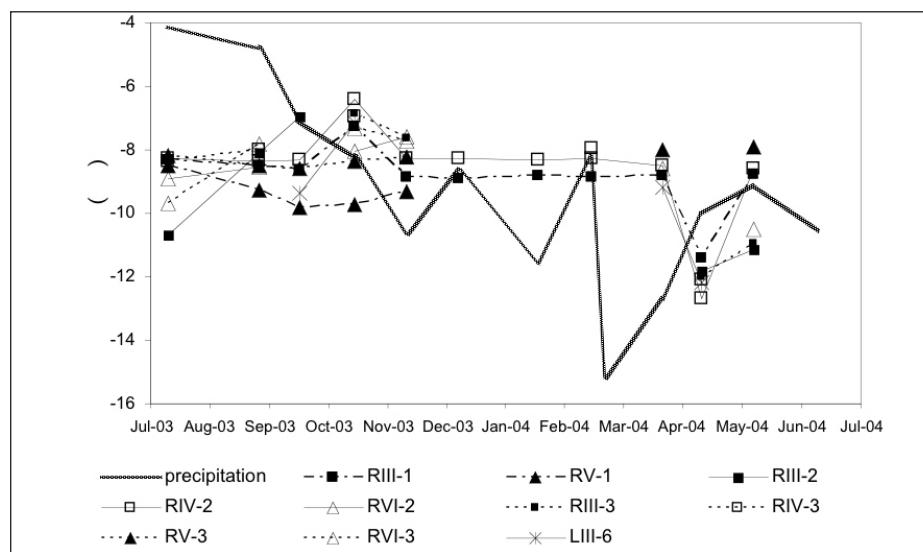


Figure 7: Time-trend plot of $\delta^{18}\text{O}$ values in water sampled from the lysimeter lower levels

Acknowledgement

The authors would like to acknowledge Union Brewery, Slovenian Research Agency and the European Commission under the Fifth Framework Program for the financial support of the researches.

References

- Berg W, āenāur Curk B, Frank J, Feichtinger F, Nützmann G, Papesch W, Rajner V, Rank D, Schneider S, Seiler KP, Steiner KH, Stenitzer E, Stichler W, Träek B, Vargay Z, Veseliā M & Zojer H (2001) Tracers in the unsaturated zone. *Steir. Beitr. Hydrogeol.* 52: 1-102.
- Clark ID & Fritz P (1997) Environmental isotopes in hydrogeology. Lewis Publishers, New York.
- Fank J, Ramspacher P & Zojer H (1991) Art der Sickerwassergewinnung und Ergebnisinterpretation. In: Bericht der BAL über die Lysimetertagung, Gumpenstein, 16-17 April 1991. BAL, Gumpenstein, 55-62.
- Juren A, Pregl M & Veseliā M (2003) Project of an urban lysimeter at the Union brewery, Ljubljana, Slovenia. RMZ-Materials and Geoenvironment 50/3: 153-156.
- Klotz D, Seiler KP, Scheunert I & Schroll R (1999) Die Lysimeteranlagen des GSF-Forschungszentrums fuer Umwelt und Gesundheit. In: Bericht ueber die 8. Lysimetertagung. BAL, Gumpenstein, 157-160.
- Nimmo JR (2002) What measurable properties can predict preferential flow? In: Proc.17th World Congress of Soil Science, Bangkok, 14-21 August 2002. International Union of Soil Science, Bangkok.
- Seiler KP, Loewenstein S & Schneider S (2000) The role of by-pass and matrix flow in the unsaturated zone for the groundwater protection. In: Sililo et al. (eds), Groundwater: Past Achievements and Future Challenges. Balkema, Rotterdam, 43-76.
- Träek B (2003) Epikarst zone and the karst aquifer behaviour, a case study of the Hubelj catchment, Slovenia. Geological Survey of Slovenia, Ljubljana, 100 pp.
- Träek B & Juren A (2004) Flow and solute transport monitoring at an urban lysimeter of Union brewery, Ljubljana, Slovenia. In: 32nd International Geological Congress, Florence, Italy, 20-28 August 2004. Florence, Italy, pp 458.
- Träek B & Juren A (2005) Hydrogeological investigations at an urban area of Union Brewery, Ljubljana, Slovenia. In: Eriksson E, Genc-fuhrman H, Vollertsen J, Ledin A, Hvittved-Jacobsen T, Mikkelsen PS (eds), 10th International Conference on Urban Drainage, 21-26 August 2005, Copenhagen, Denmark. Copenhagen, 8 pp.
- Träek B & Juren A (2005) Hydro-geochemical investigations at an urban lysimeter of Union brewery, Ljubljana, Slovenia. In: Marold B & Poppelbaum C (eds). In : Lysimetrie im Netzwerk der Dynamik von Ökosystemen: Bericht über die 11. Lysimetertagung, 5-6 April 2005 an der HBLFA Raumberg-Gumpenstein, (Bericht - BAL, 2005). Irdning, Höhere Bundeslehr-und Forschungsanstalt für Landwirtschaft Raumberg-Gumpenstein, 115-118.