

Document public

Expertise de certains résultats de l'étude sur les délais de renouvellement des eaux des captages prioritaires du bassin Rhône-Méditerranée

Rapport final

BRGM/RP-68722-FR

Février 2019



Expertise de certains résultats de l'étude AERMC sur les délais de renouvellement des eaux des captages prioritaires du bassin Rhône-Méditerranée

Rapport final

BRGM/RP-68722-FR
Février 2019

L. Gourcy, A. Henriot

Vérificateur :

Nom : B. Ladouche
Fonction : hydrogéochimiste
Date : 08/03/2019

Signature :



Approbateur :

Nom : F. Garrido
Fonction : Directeur Adjoint D3E
Date : 15/03/19

Signature :



Le système de management de la qualité et de l'environnement est certifié par AFNOR selon les normes ISO 9001 et ISO 14001.

Contact : qualite@brgm.fr

Mots-clés : âge des eaux, eaux souterraines, bassin Rhône Méditerranée

En bibliographie, ce rapport sera cité de la façon suivante :

Gourcy L., Henriot A. (2019) – Expertise de certains résultats de l'étude AERMC sur les délais de renouvellement des eaux des captages prioritaires du bassin Rhône Méditerranée. Rapport final. BRGM/RP-68722-FR, 58 p., 21 ill.

© BRGM, 2019, ce document ne peut être reproduit en totalité ou en partie sans l'autorisation expresse du BRGM.

Synthèse

Cette expertise réalisée à la demande de l'Agence de l'eau Rhône Méditerranée Corse (AERMC) vient en complément d'une étude de l'estimation du temps moyen de renouvellement de l'eau par datation à partir des CFC et SF₆ menée par antea®group pour l'Agence de l'eau. L'étude consistait en la réalisation de l'estimation des âges de 260 captages prioritaires en eau souterraine au titre du SDAGE 2016-2021 sur 2 campagnes par an en 2018 et 2019.

L'expertise réalisée par le BRGM vise à répondre aux attentes suivantes :

- Comprendre et valider une différence pour quelques points d'eau sur les âges apparents estimés en 2011, 2012, 2014 dans des études antérieures et les estimations 2017 et 2018 réalisées par antea®group,
- Comprendre et valider une apparente contradiction entre les temps de résidence/âge apparent estimés et les connaissances hydrogéologiques locales pour des points d'eau en contexte karstique et alluvial.

L'expertise a permis l'interprétation de l'estimation des âges apparents de 22 points d'eau répartis sur tout le bassin Rhone-Mediterranee utilisant les mêmes paramètres d'entrée. Les points d'eau à dater sont tous situés dans des contextes alluvionnaires ou karstiques. Ces deux contextes présentent comme particularité la possibilité de différents flux d'âge distincts et, pour les alluvions, de conditions de réduction locales. La datation par les gaz CFC et SF₆ est, de part ces contextes, plus délicates.

De même les gammes de concentrations se situent presque toutes dans des gammes pour lesquelles il existe une ambiguïté entre la phase d'augmentation des gaz dans l'atmosphère (avant le protocole de Montréal) et la diminution des concentrations du fait de la réduction de l'usage des CFC. Si la totalité des traceurs ne peut être utilisée du fait de contamination ou dégradation alors un doute reste sur l'estimation final des temps de renouvellement.

Ainsi on a cherché à utiliser d'autres paramètres chimiques, simple d'accès, afin de pouvoir confirmer les gammes d'âge obtenus par utilisation des traceurs gazeux. Si les données des éléments majeurs dissous (dont Ca et Mg) semblent peu prometteurs du fait d'un rapide rééquilibrage eau-roche au sein de l'aquifère, la variabilité de la température semble être un bon indicateur d'une certaine rapidité de renouvellement de la composante récente de l'écoulement souterrain des eaux souterraines. Des investigations supplémentaires sont à prévoir si ce point devait être éclairci.

L'utilisation des pesticides, pour des taux de détection et taux de dépassement d'une valeur (dans le cas présent 0,1 µg.l⁻¹) en tenant compte des périodes d'usage des pesticides semble intéressante. Toutefois, dans le cadre de l'expertise, l'absence de connaissance sur les pratiques spécifiques des AAC étudiées, est une limite à une interprétation qui pourrait être plus fine et contextualisée.

Enfin, un chapitre a été rédigé afin d'explicitier les concepts les plus généraux permettant d'estimer et de décrire, par exemple, le temps qu'il faut à une molécule d'eau (ou un ensemble de molécules d'eau) pour parcourir l'ensemble du trajet entre la recharge et son point de mesure (source, puits, forage), ainsi qu'à donner des notions élémentaires sur les termes de temps de résidence moyen, distribution de gammes d'âge, âge apparent, temps de résidence, etc.

Sommaire

1. Objectifs de l'étude	9
2. Les notions d'âge CFC, la notion « d'âge de l'eau »	11
2.1. TERMINOLOGIE ET CONCEPTS	11
2.1.1. Notion d'âge.....	11
2.1.2. Autres notions.....	12
2.2. FONCTIONNEMENT HYDROGEOLOGIQUE ET INFORMATIONS FOURNIES PAR LES TRACEURS GAZEUX.....	16
2.2.1. Prendre en compte l'hétérogénéité d'un système, la variabilité spatiale et temporelle.....	16
2.2.2. Comparaison à des modèles, comparaison à d'autres techniques.....	17
2.3. NOTION D'AGE APPARENT ET FONCTIONNEMENT HYDRODYNAMIQUE	18
2.4. RECOMMANDATIONS.....	20
3. Difficultés de l'utilisation des gaz dissous pour l'estimation des âges apparent des eaux souterraines	22
3.1. CONTAMINATION.....	22
3.1.1. Contamination du milieu.....	22
3.1.2. Origine géogénique des gaz dissous	22
3.1.3. Contamination de l'échantillon	23
3.2. DEGRADATION.....	23
3.3. EXCES D'AIR	23
3.4. DEGAZAGE	25
3.5. DIFFICULTES PARTICULIERES POUR LES EAUX TRES JEUNES	25
3.6. IMPORTANCE DE LA PRISE EN COMPTE DES DIFFERENTES PROCESSUS AFFECTANT LA CONCENTRATION EN GAZ DISSOUS DANS L'ESTIMATION DES AGES.....	26
4. Analyse des données et réinterprétation.....	29
4.1. LES POINTS D'EAU CONCERNES.....	29
4.2. CONDITIONS D'INTERPRETATION DES DONNEES.....	29
4.2.1. Analyse des paramètres physico-chimiques	29
4.2.2. Analyse des modèles choisis et fonctionnement hydrogéologique	31

4.2.3. Chronique des gaz dissous dans l'air	34
4.2.4. Conditions de réalisation des interprétations des gaz dissous en vue de datation 35	
4.2.5. Choix des modèles à utiliser	36
4.2.6. Estimation des âges et incertitudes	37
5. Recherche d'autres indicateurs	38
5.1. ANALYSE STATISTIQUE DE LA REPRESENTATIVITE DES POINTS D'EAU AU SEIN DE L'ENTITE BDLISA	38
5.1.1. Description des données	38
5.1.2. Description des tests statistiques.....	38
5.1.3. Présentation des résultats	40
5.2. ETUDE DE PARAMETRES INDICATEURS INDIRECTS D'AGES DES EAUX ET DE FONCTIONNEMENT HYDROGEOLOGIQUE	42
5.2.1. Les éléments chimiques dissous	42
5.2.2. Les pesticides.....	42
5.2.3. La température	43
6. Synthèse par point d'eau.....	45
6.1. LAIVES – PUIITS DE LA VERNELLE	45
6.2. VAIRE-ARCIER – SOURCE D'ARCIER	45
6.3. ISSANS – SOURCE DE LA BEAUMETTE	45
6.4. MACENANS – FONTAINE DU CRIBLE	46
6.5. SAINT-DIZIER L'EVEQUE – SOURCE DU VAL.....	46
6.6. GRANDVILLARS – PUIITS DE GRANDVILLARS	47
6.7. VILLIERS-LES-APREY – SOURCE VILLE-BAS BAISSSEY.....	47
6.8. BAISSSEY – SOURCE CHEMIN DE PERROGNEY	47
6.9. LEUCHEY – SOURCE DU BOIS BAGNEUX.....	48
6.10. GENLIS – PUIITS DE GENLIS.....	48
6.11. VILLIERS-LES-APREY – SOURCE VILLE-HAUT BAISSSEY	49
6.12. AISEREY – PUIITS DE LA RACLE	49
6.13. TAVAUX – PUIITS DE RECEPAGE	49
6.14. BAISSSEY – SOURCE LES VERNES.....	50
6.15. CHAMPLITTE – SOURCE DU VIVIER	50

6.16.	BONLIEU-SUR-ROUBION – PUIITS DES REYNIERES.....	51
6.17.	VAUVERT – PUIITS DES BANLENES	51
6.18.	MONTBELLET – PUIITS 2.....	51
6.19.	REDESSAN – PUIITS MAS DE CLERC	52
6.20.	CASES DE PENE – FORAGE DE CASES DE PENE	52
6.21.	AUREL – SOURCE DE LA NESQUE.....	53
6.22.	SERMERIEU – PUIITS DE SERMERIEU	53
6.23.	COMMENTAIRES SUR LES RECALCULS DES POINTS SELECTIONNES 53	
7.	Conclusions.....	55
8.	Bibliographie	57

Liste des illustrations

Illustration 1 :	Représentation de la notion de temps de renouvellement, reposant sur le rapport du flux entrant sur le volume total du système. Tiré de (Suckow 2014).....	12
Illustration 2 :	Principe d'adéquation entre un type de fonction de transfert et un modèle d'écoulement au sein d'un aquifère. (PFM : piston flow model, EM : exponential model, DM : dispersiv model, et différentes combinaisons de ces modèles unitaires).	14
Illustration 3 :	Comparaison du temps de résidence simulé à l'aide d'un modèle numérique (ordonnées) et du temps de résidence moyen obtenu par le biais des traceurs gazeux (abscisses). Mise en évidence du biais d'interprétation de « l'âge » par le seuil moyen des traceurs gazeux.	17
Illustration 4 :	Exemple d'échantillon (carré bleu) avec concentrations en CFC-113 contaminée (à gauche) et concentration en CFC-11 a priori contaminée (à droite) – les différentes droites noires, bleues et vertes correspondent à différents modèles (mélange binaire, piston, exponentiel)	22
Illustration 5 :	Exemple de variation des concentrations en gaz dissous selon l'excès d'air (sans correction d'air à gauche et correction d'air de 2 mg.kg ⁻¹ à droite)	24
Illustration 6 :	Chroniques de CFC et SF ₆ dans l'atmosphère et droites en pointillées correspondant à un échantillon d'eau	25
Illustration 7 :	Exemple d'échantillons à diverses périodes (croix vertes) avec concentrations en CFC-113 vs CFC-11 et SF ₆ vs CFC-12 – les différentes droites noires, rouges et bleues correspondent à différents modèles (respectivement mélange binaire, exponentiel et piston).....	26
Illustration 8 :	Schéma de réalisation de l'estimation des âges apparent des eaux souterraines par traceurs chimiques.....	30
Illustration 9 :	Configurations hydrogéologiques simplifiées pour lesquelles le modèle type piston peut être utilisé.....	31

Illustration 10 : Configurations hydrogéologiques simplifiées pour lesquelles le modèle type mélange exponentiel peut être utilisé	32
Illustration 11 : Configuration hydrogéologique simplifiée pour laquelle le modèle type piston-exponentiel peut être utilisé	32
Illustration 12 : Configuration hydrogéologique simplifiée pour laquelle le modèle type exponentiel partiel peut être utilisé	32
Illustration 13 : Configurations hydrogéologiques simplifiées pour lesquelles le modèle type dispersion peut être utilisé	33
Illustration 14 : Configurations hydrogéologiques simplifiées pour lesquelles le modèle type mélange binaire peut être utilisé	34
Illustration 15 : Courbes de référence des concentrations dans l'air des gaz CFC et SF6 à la station de Mace Head (lignes continues) et Hémisphère Nord (pointillés), ALE/GAGE/AGAGE (Prinn et al., 2000 ; Prinn et al., 2016)	35
Illustration 16 : Concentrations en CFC-11, CFC-12, CFC-113 en 2011, 2017 hautes eaux et basses eaux à Laives	36
Illustration 17 : légende des figures synthétisant les résultats des tests d'indépendance des échantillons.	40
Illustration 18 : Détails des informations représentés sur les boîtes à moustaches, permettant d'interpréter les différentes informations reportées sur les figures, en particulier la méthodes de regroupement (Conover-Iman).	40
Illustration 19 : Résultat du tests de Kruskal-Wallis et Conover Iman pour l'entité BDLISA 505AA02 et le calcium	41
Illustration 20 : Résultat du tests de Kruskal-Wallis et Conover Iman pour l'entité BDLISA 515AB03 et le magnésium	41
Illustration 21 : Concentrations en CFC-113 et CFC-11 des points d'eau de l'entité BDLISA 139AO05, à gauche pour 2014 et à droite pour 2017 (les courbes correspondent aux modèles piston en bleu, exponentiel en rouge et mélange binaire en noir)	48

1. Objectifs de l'étude

Cette expertise vient en complément d'une étude de l'estimation du temps moyen de renouvellement de l'eau par datation à partir des CFC et SF₆ menée par antea®group pour l'Agence de l'eau Rhône Méditerranée Corse. L'étude consistait en la réalisation de l'estimation des âges de 260 captages prioritaires en eau souterraine au titre du SDAGE 2016-2021 sur 2 campagnes par an en 2018 et 2019.

Cette expertise vise à répondre aux attentes suivantes :

- Comprendre et valider une différence pour quelques points d'eau sur les âges apparents estimés en 2011, 2012, 2014 dans des études antérieures et les estimations 2017 et 2018 réalisées par antea®group,
- Comprendre et valider une apparente contradiction entre les temps de résidence/âge apparent estimés et les connaissances hydrogéologiques locales pour des points d'eau en contexte karstique et alluvial.

Afin de répondre à ces questions il a été proposé de :

- Préciser les difficultés d'ordre techniques et méthodologiques de l'utilisation des gaz dissous pour l'estimation des âges apparents des eaux souterraines d'aquifères alluviaux et karstiques,
- Reprendre l'ensemble des données de gaz dissous (CFC et SF₆) des 22 points d'eau concernés, analyser la cohérence des informations et reprendre l'ensemble des estimations d'âge apparent en utilisant une méthode et des paramètres d'entrée identiques,
- Evaluer la possibilité d'utiliser d'autres indicateurs dans une approche simple et systématique permettant de valider les estimations de temps de résidence réalisées par analyse de CFC/SF₆,
- Rédiger un chapitre court et didactique expliquant les notions d'âges CFC et permettant aux acteurs du territoire d'utiliser les données de manière appropriée.

2. Les notions d'âge CFC, la notion « d'âge de l'eau »

Déterminer « l'âge de l'eau » est une demande très souvent formulée par les gestionnaires de la ressource en eau, les donneurs d'ordre et les parties prenantes. Cela recouvre en réalité des besoins davantage opérationnels que d'amélioration des connaissances scientifiques. Cette demande masque en effet des impératifs bien plus pragmatiques, souvent relatives au besoin de protéger efficacement une ressource en eau de contaminants, et aux notions qui en découlent : temps de latence entre la mise en place d'une mesure et ses effets, inertie d'un système ou capacité d'un système à rester dans un état donné, ou à l'inverse, capacité d'un système à tendre vers un 'meilleur' état plus ou moins rapidement.

Pour tous ces cas, une estimation de « l'âge de l'eau » en un point est évidemment une aide précieuse. Mais ce terme revêt des notions et des considérations tellement variées qu'il porte très rapidement à confusion sur ce qui est réellement décrit, mesuré ou déduit.

Ce chapitre vise à expliciter les concepts les plus généraux permettant d'estimer et de décrire, par exemple, le temps qu'il faut à une molécule d'eau (ou un ensemble de molécules d'eau) pour parcourir l'ensemble du trajet entre la recharge et son point de mesure (source, puits, forage), ainsi qu'à donner des notions élémentaires sur les termes de temps de résidence moyen, distribution de gammes d'âge, âge apparent, temps de résidence, etc.

2.1. TERMINOLOGIE ET CONCEPTS

Cette section s'appuie très largement sur les travaux de Suckow (2014) qui décrivent de façon claire et documentée différents concepts retrouvés dans la littérature scientifique.

2.1.1. Notion d'âge

La notion d'âge s'applique très bien à l'échelle d'un individu. Il est courant de parler de l'âge d'un bâtiment, d'une voiture, d'une personne. Dans un tel cas, l'âge est une mesure du temps qui sépare un événement A d'un événement B. Pour une personne par exemple, le temps qui sépare sa naissance de la date du jour.

A l'échelle d'une population, la notion d'âge s'applique en revanche très mal. En poursuivant le précédent exemple, si l'on considère une salle (une population) de mille personnes, avec des âges variés, il est évidemment absurde de parler de l'âge de la population dans la salle.

Pour décrire l'âge de la population, il serait en revanche possible d'utiliser des estimateurs tels que la médiane ou la moyenne, et d'autres descripteurs tels que l'écart type, l'écart interquartiles, le type de distribution, etc.

Dans le cas de l'eau, en particulier de l'eau souterraine, il est primordial de se souvenir que le flux collecté en point d'échantillonnage ne représente rien d'autre qu'une population de molécules d'eau. Avoir accès à « l'âge » de ses molécules d'eau est donc en réalité le principal enjeu, et cela relève de deux principaux écueils :

- i) il est naturellement impossible d'accéder à « l'âge » de chacune des molécules d'eau ;
- ii) la mesure de « l'âge » des molécules d'eau ne repose que sur des méthodes indirectes : ce sont des 'signaux' portés par les atomes composants la molécule d'eau (l'hydrogène (H) dans le cas du tritium et du deutérium par exemple), ou des 'signaux'

associés : gaz dissous dans l'eau, marqueurs portés par les atomes des ions dissous (^{14}C par exemple).

La conséquence directe des deux points précédents est que :

- i) il n'est que possible d'avoir accès à des estimateurs de « l'âge de la population » (médiane, moyenne, écart type, etc.),
- ii) il est indispensable de garder en tête les principes de chacune des méthodes pour savoir ce qu'elles sont en capacité de décrire,
- iii) l'acquisition du signal porté par un autre médium que la molécule d'eau elle-même doit être comprise (« âge » du traceur), et cette signature peut être différente de celle de la molécule d'eau (« âge » de l'eau).
- iv) c'est le plus souvent un ensemble d'indices et de méthodes qui conduit à mieux cerner des gammes 'd'âges', de processus d'acquisition du signal analysé, de processus de transfert et de transport des flux d'eau dans un hydrosystème.

2.1.2. Autres notions

Si la notion d'âge est peu discriminante, d'autres terminologies peuvent avantageusement venir en remplacement. Ces terminologies et concepts doivent être pensés en relation à une méthode. Les paragraphes suivants en sont une description.

Le temps de renouvellement

Cette notion est souvent invoquée en référence à l'usage d'un traceur chimique. Le concept repose sur le principe de continuité de la masse. Au cours du temps, et le long d'une ligne de flux, il n'y a ni perte ni gain de masse de traceur. Le temps de renouvellement est calculé comme étant le rapport du flux incident sur le volume total du système (Maloszewski et Zuber, 1994).

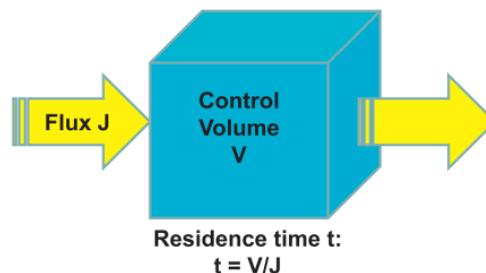


Illustration 1 : Représentation de la notion de temps de renouvellement, reposant sur le rapport du flux entrant sur le volume total du système. Tiré de (Suckow 2014)

En généralisant, il est possible d'approximer cette notion comme étant le temps théorique nécessaire à remplacer l'ensemble du volume d'eau mobile d'un aquifère.

Suckow fait cependant remarquer que la notion de temps de renouvellement ne permet pas de décrire le fait qu'il existe des trajets de longueurs différentes au sein du volume total du système, et donc des temps de trajets plus ou moins courts. En fonction de la typologie des aquifères considérés (lithologie, type de porosité, anisotropie, hétérogénéité, etc.), des 'chemins de l'eau' plus ou moins homogènes, et donc plus ou moins rapides sont à attendre.

Le temps de séjour moyen/médian, et distribution des gammes d'âges

Cette notion repose sur l'approximation de la distribution des temps de séjour par une fonction mathématique, pour laquelle il est possible de calculer un estimateur tel que la médiane ou la moyenne. Dans le détail la méthode s'appuie sur le fait qu'il est possible de relier la concentration en un traceur au temps t et en un point d'un système aquifère (idéalement son exutoire) à sa concentration incidente au temps $t-i$. Cette opération est possible en considérant la relation (1) qui décrit le fait que la concentration mesurée $C_{out}(t)$ est une fonction de convolution de l'ensemble des concentrations incidentes $C_{in}(t')$, pondérées par une fonction de transfert $g(t - t')$. La prise en compte de la décroissance radioactive est possible dans les cas appropriés ($e^{-\lambda(t-t')}$).

$$C_{out}(t) = \int_{-\infty}^t C_{in}(t') \cdot g(t - t') \cdot e^{-\lambda(t-t')} dt' \quad (1)$$

Pour pouvoir comprendre la structuration de la distribution des âges, il est donc nécessaire de pouvoir reproduire les concentrations mesurées à l'aide de modèles.

Différentes fonctions transferts sont utilisées, mais les plus courantes sont les fonctions piston (PFM, piston flow model), exponentielles (EM, exponential model), dispersives (DM, dispersiv model) et gamma, ou des combinaisons de celles-ci (**Erreur ! Source du renvoi introuvable.**).

Si les différences entre ces différentes fonctions de transfert peuvent paraître secondaires en premier abord, ou du ressort du modélisateur en charge de l'interprétation des résultats, il n'en est rien.

L'impact des différentes fonctions de transfert est de deux ordres :

- i) d'une part, du point de vue numérique, où le choix d'un modèle de fonction de transfert plutôt qu'un autre est un paramètre influençant fortement la qualité de l'ajustement des paramètres du modèle aux observations ;
- ii) d'autre part, et c'est sans doute le plus important, l'utilisation de l'une ou l'autre des fonctions de transfert doit pouvoir relever d'une justification physique. Une homologie entre les fonctions de transfert et des typologies de fonctionnement d'aquifère est à trouver dans les travaux de Maloszewski et Zuber notamment (Maloszewski et Zuber 1994, 1996). Il faut garder à l'esprit que les fonctions de transfert (des modèles mathématiques) ne sont que des approximations des processus ayant prise au sein de l'hydrosystèmes, et que ces outils ne peuvent reproduire toute la complexité, l'hétérogénéité des systèmes naturels. Une certaine distanciation reste donc possible, et tout écart au modèle reste explicable. Mais la démarche principale doit rester de se placer dans le cas où le choix d'une fonction de transfert reste explicable physiquement.

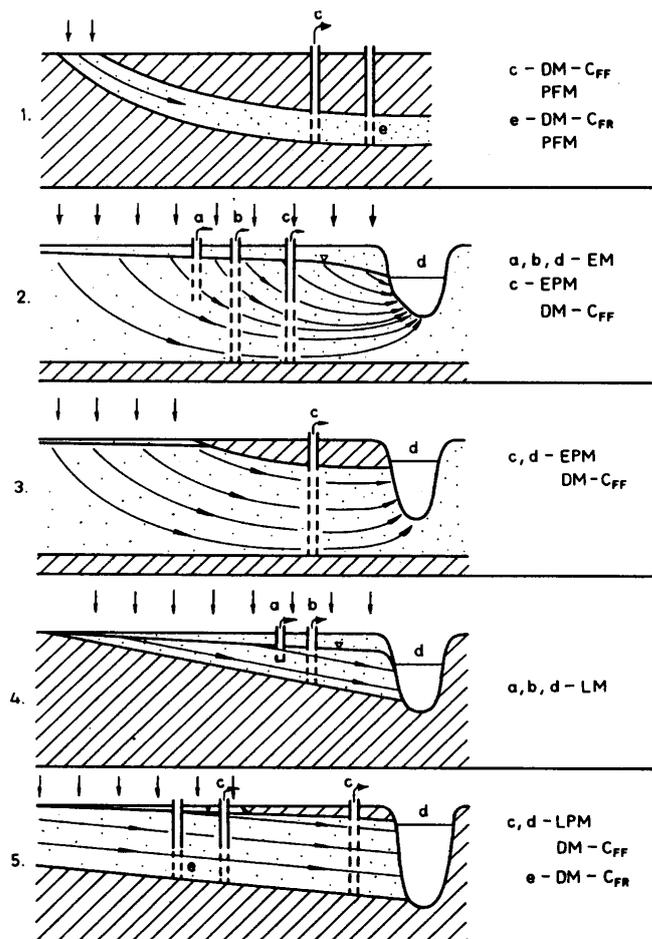


Illustration 2 : Principe d'adéquation entre un type de fonction de transfert et un modèle d'écoulement au sein d'un aquifère. (PFM : piston flow model, EM : exponential model, DM : dispersiv model, et différentes combinaisons de ces modèles unitaires).

Les différentes fonctions de transfert proposées (PFM, EM, DM, etc.) possèdent toutes des paramètres propres. La phase de modélisation des concentrations mesurées (observations) consiste donc, une fois la fonction de transfert déterminée, aussi au choix des paramètres caractéristiques des fonctions de transfert.

Le temps de séjour moyen, enfin, peut être calculé moyennant la connaissance de la fonction de transfert la plus appropriée et de ses paramètres caractéristiques. Mais plus encore, la fonction de transfert choisie permet de renseigner sur la distribution des gammes d'âges, ou pour dire autrement, de la contribution relative de chacune des différents âges à la signature finale. Il est également possible d'utiliser d'autres métriques : médiane, paramètre de dispersion, etc.

L'homologie entre les modèles et les processus montre la participation de plusieurs mécanismes :

- la typologie de l'aquifère : affleurant/sous couverture
- l'impact de la recharge : localisée ou généralisée sur l'ensemble de l'aquifère
- l'impact des conditions de captage du flux : puits complet/incomplet, et dans le cas de puits incomplet, horizon capté

Sans trop entrer dans le détail, il faut retenir les grands principes suivants :

- le modèle piston (ou Dirac) suppose un transport sans échange (ni mélange ni dispersion) le long des lignes de courant. Le signal entré dans le système est seulement translaté d'un certain nombre d'unité de temps (une éventuelle prise en compte de décroissance radioactive est cependant possible). C'est l'analogie du transport d'un flux dans un tube, qu'il est difficile de trouver dans la nature. Cela peut être une bonne approximation cependant pour des temps de séjour très faibles (quelques années).
- le modèle exponentiel traduit le fait de capter des lignes de courants de différentes longueurs à l'endroit de l'échantillonnage, sans mélange entre elles. Il faut davantage de temps à une ligne de courant très grande (recharge située loin du puits), qu'à une ligne de courant très petite (recharge à côté du puits) pour parvenir jusqu'au puits. L'eau échantillonnée au puits sera donc un mélange de molécules d'eau ayant parcouru ces différentes lignes de courant. La fonction de répartition entre ces différentes particules d'eau est la fonction exponentielle.
- Le modèle dispersif enfin, rend compte de l'étalement des temps de séjour au point d'échantillonnage, cela traduit le fait que les molécules d'eau d'âges différents se mélangent le long d'une ligne de courant. Une ligne de courant pouvant se comprendre selon le plan (et dans n'importe quelle direction du plan) ou selon la verticale. Toutefois, le modèle dispersif généralement utilisé et proposé par Maloszewski et Zuber (1994) ne considère que la dispersion longitudinale.

D'autre part, il convient de noter que cette représentation en coupe masque le fait que les écoulements sont souvent tridimensionnels, et qu'une part de la variabilité peut venir d'une participation plus ou moins forte de lignes de courant latérales (Weissmann et al. 2002).

La date de fermeture du système : l'âge du traceur ou âge apparent

Dans le cadre de l'utilisation des traceurs gazeux, le principe général est le suivant :

L'eau acquiert sa 'signature' au moment où elle est en équilibre avec l'air. Ce signal est considéré comme étant conservé au cours du trajet de l'eau (Happell et al. 2003), et c'est ce signal que l'on cherche à capturer lors de l'échantillonnage.

Il faut cependant bien comprendre que l'interprétation de ce signal n'est pas toujours directe. Plusieurs raisons à cela :

- la méthode connaît un certain nombre de limites : l'hypothèse de conservation du signal des gaz n'est pas toujours vérifiée : dégradation, oxydation, enrichissement (Happell et al. 2003; Hinsby et al. 2007),
- le signal enregistré par les concentrations en gaz correspond au dernier moment où l'eau a été en équilibre avec l'air, ou date de fermeture du système. La fermeture du système peut intervenir à des moments divers. Le cas le plus documenté, et le plus évident est le cas des fortes épaisseurs de zone non saturée que les molécules d'eau mettent un certain temps à traverser (Engesgaard et al. 2004). Durant tout le temps de transfert à travers la zone non saturée, le système restant ouvert, l'eau est en permanence à l'équilibre avec l'air de la zone non saturée (ZNS) et la méthode ne permet pas de documenter facilement ce temps de transfert à travers la ZNS. L'âge de l'eau et l'âge du traceur sont, dans ce cas de figure, potentiellement assez différents : l'âge théorique de l'eau étant plus élevé que l'âge calculé sur la base des traceurs.

2.2. FONCTIONNEMENT HYDROGEOLOGIQUE ET INFORMATIONS FOURNIES PAR LES TRACEURS GAZEUX

2.2.1. Prendre en compte l'hétérogénéité d'un système, la variabilité spatiale et temporelle

L'aquifère homogène, isotrope, de volume connu et en régime permanent représente l'aquifère idéalisé pour décrire en termes simples les principes nécessaires à la compréhension de l'acquisition du signal en gaz. Dans la nature, de nombreux paramètres éloignent les objets d'étude de cet aquifère idéal.

Variabilité spatiale

La structure des aquifères, pour commencer, peut être plus ou moins complexe : géométries des dépôts, compartimentation (fracturation, fissuration), nature des dépôts en eu même : intercalation, stratigraphie, ou karstification. Cela signifie que des chemins d'écoulements préférentiels sont à attendre, venant s'ajouter à des écoulements de bases. Il peut également être considéré que deux types de porosité supportent les écoulements à travers le milieu (cas de la craie par exemple).

Nous retiendrons en particulier l'exemple du karst, pour lequel l'usage couplé du SF₆ et CFC-12 (Delbart et al. 2014) permet de montrer l'existence de flux rapides (quelques mois) venant s'ajouter à un écoulement de base dont l'âge apparent est estimé à plusieurs dizaines d'années. Dans cet exemple, les auteurs montrent que l'usage des marqueurs hydrogéochimiques (ions majeurs) ne permet pas de mettre en évidence l'écoulement lent. L'analyse couplée des différents traceurs (CFCs, SF₆, ³H, ³H/He, ¹⁴C, ⁸⁵Kr, ³⁹Ar, pH, température, ions majeurs), des processus d'acquisition du signal (excès d'air notamment), le choix des fonctions de transfert et la justification de leur pertinence, met en évidence la complexité du fonctionnement de cet aquifère, et notamment permet de prouver l'importance de la contribution de l'écoulement lent (flux de base), et de la remobilisation d'eau peu mobile lors d'évènements de recharge (charges hydrauliques élevées).

L'utilisation des traceurs gazeux (en association avec d'autres) permet ainsi de montrer que l'hétérogénéité de la structure, c'est-à-dire sa variabilité dans le plan et dans la verticale, et donc du fonctionnement, ne peut pas être appréhendé par les approches classiques (marqueurs géochimiques notamment), et que cette approche apporte un éclairage nouveau dans la compréhension de la structure et du fonctionnement de l'aquifère.

Variabilité temporelle

Les approches explicitées précédemment sont toutes inféodées au fait que l'aquifère fonctionne en régime établi. L'impact de la perturbation du régime établi par des actions diverses (pompages principalement) est difficile à prendre en compte. Le plus souvent, et en ne considérant qu'une période de temps réduite, cet effet peut être négligé. Si on s'intéresse en revanche à des périodes de temps longues, ou à une successions d'analyses séparées dans le temps par de longues période, cet effet peut, en revanche, ne pas être négligeable.

Un exemple pour des aquifères karstiques à nouveau (Long et Putnam 2009) permet de montrer que l'impact des sollicitations de l'aquifère par pompage n'est pas négligeable, et que sa prise en compte permet d'expliquer de façon correcte la signature en gaz observée aux différents puits.

Dans ce cas, les modèles utilisés doivent être adaptés, et les modèles mathématiques prenant en compte les effets transitoires doivent être utilisés (fonction de transfert dédiées).

Enfin, il est intéressant de noter dans ces travaux que l'analyse de sensibilité des différents paramètres conduit à montrer, dans ce cas précis, qu'un des gaz (CFC-113) n'est pas pertinent dans l'analyse.

2.2.2. Comparaison à des modèles, comparaison à d'autres techniques

L'âge des particules vs l'âge des traceurs

Une façon d'accéder à « l'âge de l'eau » est de pouvoir construire un modèle numérique de l'aquifère. En essayant de reproduire les processus dominants dans l'aquifère et au moyen d'approximation sur la géométrie, les flux, les paramètres du milieu, il est possible (le plus souvent) d'obtenir une simulation des processus ayant cours dans l'aquifère, et de leur distribution spatiale : recharge, contribution au débit des sources ou des rivières, alimentation des puits/forages, etc. Cela permet aussi d'estimer le temps nécessaire à une particule d'eau entrant dans le système à rejoindre un point de captage (un puit ou une source par exemple).

Dans le cas où un tel modèle est disponible, il est intéressant de comparer les 'âges' obtenus à travers le modèle, et ceux obtenus par les moyens habituels d'interprétation des traceurs gazeux. Des travaux ayant procédé de la sorte (Weissmann et al. 2002) pour un aquifère alluvial et montrent que les différences peuvent être extrêmement fortes, et ce d'autant plus que les temps de résidence moyen sont forts.

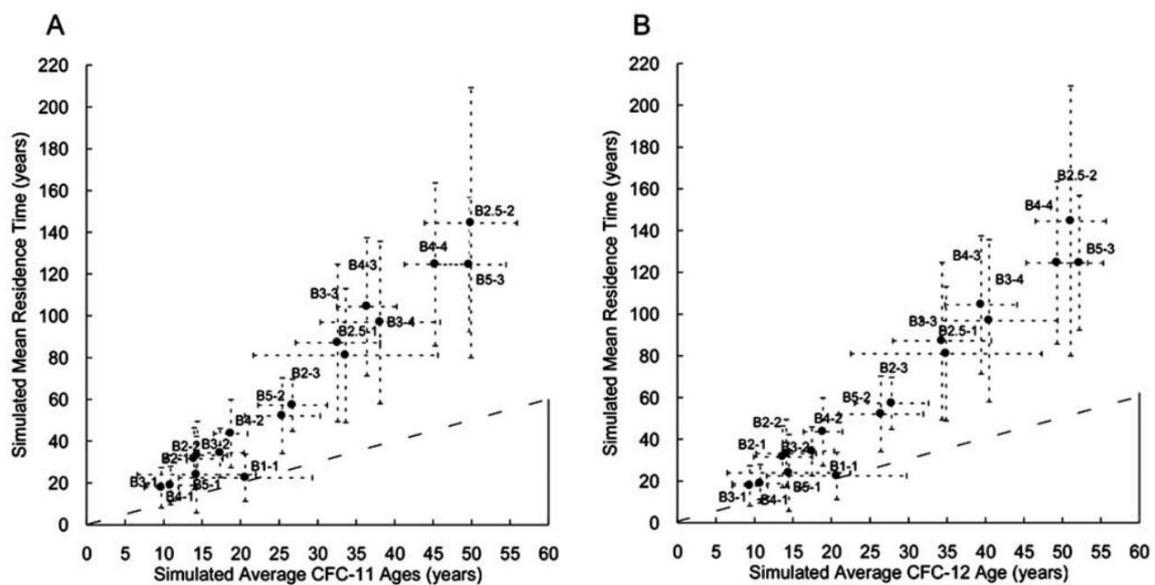


Figure 9. Simulated mean groundwater residence times plotted against mean simulated CFC-based groundwater ages from the 10 realizations for (a) CFC-11 and (b) CFC-12. The error bars show the ranges of simulated groundwater residence times and CFC ages for each of the 10 realizations.

Illustration 3 : Comparaison du temps de résidence simulé à l'aide d'un modèle numérique (ordonnées) et du temps de résidence moyen obtenu par le biais des traceurs gazeux (abscisses). Mise en évidence du biais d'interprétation de « l'âge » par le seuil moyen des traceurs gazeux.

Parmi les facteurs explicatifs de cette apparente incohérence, les principaux semblent être i) les différences de vitesses de circulation dans les différentes parties de l'aquifère en raison de sa

complexité entraînant une vaste distribution de temps de séjour qu'il est difficile de traduire avec l'usage (et l'interprétation) des traceurs gazeux d'une part, ii) le fait que les CFC's ne permettent pas de mettre en évidence des eaux 'vieilles' (eaux infiltrées avant que les concentrations dans l'air ne soient significatives), iii) le fait que le modèle ne puisse reproduire des écoulements très rapides ('by pass' ou court-circuit) potentiellement faibles en flux, mais ayant une concentration élevée en gaz.

Encore une fois, l'usage de ces traceurs est porteur d'information. Mais cette information doit être prise dans un contexte de connaissance plus général, de manière à bien comprendre ce qu'elle apporte, et ce que n'apporte pas, l'usage des traceurs gazeux.

L'utilisation des traceurs hydrochimiques

Le temps de résidence moyen ou les distributions de temps de séjour peuvent être comparés à des connaissances sur les concentrations en paramètres hydrochimiques (Beyer et al. 2016). Très souvent, la signature hydrochimique des aquifères est la plus documentée : données nombreuses et relativement peu onéreuse à acquérir, facilité à spatialiser l'information, etc. Cette connaissance *a priori* sert le plus souvent de base pour comprendre le fonctionnement des aquifères.

Cependant, à elle seule, l'hydrochimie ne permet pas de renseigner facilement sur les temps de résidence moyen, ou la distribution des temps de séjour. Les réactions vis-à-vis de la matrice sont effectuées en général très vite à l'équilibre (cinétiques variant de quelques minutes à quelques semaines suivant les éléments considérés, (Delbart et al. 2014) et quantifier ces échanges nécessite des moyens d'investigations importants.

Une utilisation couplée en revanche montre des résultats intéressants (Beyer et al. 2016). Cela permet de mieux contraindre les gammes d'âges proposées, ainsi que de présenter des pistes de compréhension de l'acquisition de la minéralisation : vitesses et processus d'altération, meilleure compréhension de la recharge, etc, notamment pour essayer de déterminer la signature hydrochimique des différentes composantes du flux (composantes rapide et lente par exemple).

2.3. NOTION D'ÂGE APPARENT ET FONCTIONNEMENT HYDRODYNAMIQUE

En résumé des différents processus et concepts décrits dans les chapitres ci-dessus, il est nécessaire de distinguer les « âges » fournis par les outils géochimiques des âges dynamiques.

Age géochimique/âge d'un traceur

Il est fait référence à l'âge des eaux souterraines mais en fait c'est le traceur environnemental (tritium, CFC, SF₆) qui est daté. Savoir si l'âge du traceur peut être appliqué à l'eau dans lequel le traceur est dissous dépend de comment le traceur suit le mouvement de l'eau et dans quelles mesures des processus tels que les mélanges, la dégradation, la sorption, la dispersion, la diffusion lors du transfert de l'eau affectent les concentrations des CFC dans l'eau. L'âge déterminé est un âge CFC ou âge apparent ou âge modélisé car il se base sur certaines considérations. L'âge de l'eau n'est univoque que dans le cas où aucun mélange a lieu, si l'eau se déplace comme dans un tuyau (modèle du type piston). Ce cas d'écoulement piston ne s'applique que dans le cas de certains aquifères captifs. Dans la plupart des contextes hydrogéologiques, les eaux se mélangent dans l'aquifère. Ainsi on devrait systématiquement parler d'âge modélisé car il est toujours nécessaire d'utiliser des modèles simplifiés (lumped parameters) pour définir les distributions d'âge (mélange binaire, exponentiel, de dispersion,...).

Ainsi, la connaissance d'un âge apparent n'implique pas la connaissance d'un temps de résidence d'une eau. Il s'agit donc d'évaluer les limites des modèles d'estimation de temps de résidence existants. La comparaison avec des modèles hydrodynamiques de type discrétisés, globaux ou de boîte noire développés sur les différents systèmes aquifères étudiés peut permettre de réaliser cette critique.

Contrairement à un traceur artificiel qui ne donnent une information que sur les zones transmissives d'un aquifère, les traceurs « naturels » intègrent toutes les recharges et tous les mélanges (avec les eaux anciennes peu mobilisées par exemple), tant en zone saturée que dans l'épikarst dans le cas des aquifères karstiques.

Approche hydrodynamique (âge modélisé)

Une connaissance spatialisée des différents paramètres : i , H , K , ω ,... modélisé à l'aide de la loi de Darcy du principe de conservation de masse et des équations de transport (D , α_L et α_T) est nécessaire pour obtenir le champ de vitesse en d'un système non fracturé. L'âge est trouvé par analogie au transport de soluté. L'équation d'advection-dispersion est généralement combinée avec les vitesses de flux simulés pour estimer le taux de transport des solutés et la description statistique des âges des eaux souterraines. Toutefois les conductivités hydrauliques des matériaux géologiques sont grandement variables et les modèles de prédictions sont ainsi sujet à un fort degré d'incertitude (Chambers et al., 2018). De plus, la méthode de dépistage des particules (particule-tracking) utilisée en modélisation maillée comme les modèles à paramètres localisés (lumped parameters) utilisés pour les traceurs chimiques sont basés sur l'hypothèse que les traceurs individuels non réactifs sont transportés avec les molécules d'eau. Ainsi la combinaison des deux approches serait idéale.

Comparaison des deux approches

Plusieurs publications et thèses se sont attachés à étudier ces deux concepts en parallèle et à les comparer (voir Eberts et al., 2012). Il en résulte un certain nombre de différences. Les écarts sont dû à :

- la difficulté à obtenir des données en quantité et représentatives,
- incertitudes dans les techniques existantes,
- complexité des flux et du transport et phénomènes de mélange associés,
- l'hétérogénéité des aquifères,
- temps de transfert dans la zone non saturée,
- Les traceurs utilisés pour la datation ne font pas partie intimement de la molécule d'eau (exception ^3H), mais ils constituent des solutés.

Exemples pour des aquifères karstiques

Blavoux et al. (1979) montre la variabilité des teneurs en tritium (et donc des âges apparents) pour les eaux de sources d'un système karstique du Jura entre la période de fonte des neiges et l'été. La baisse des teneurs en tritium indique l'importance de la participation de l'eau de fonte des neiges très jeunes à l'écoulement de crues. Les variations de tritium entre printemps et été sont proportionnelles à l'importance des apports météoriques rapides. Ces variations à l'exutoire (sources) sont entraînées par les variations des temps de séjour moyen des eaux dans le système karstique.

Les travaux de C. Delbart (2013) dans un aquifère karstique de Bourgogne mettent très bien en évidence les variations d'âge des eaux en lien à la re/mobilisation dans le temps de corps d'eau d'âges différents. De plus, une approche physico-chimique/isotopiques et une approche dynamique ont été mises en œuvre. Différents types d'écoulement lent ont pu être mis en évidence, des écoulements lents au sein de la zone non saturée, des transferts de masse retardés par rapport au transfert de pression. La variabilité saisonnière des temps de résidence a été mis en évidence par utilisation de traceurs physico-chimiques (conductivité, température, ions dissous majeurs). L'étude a montré une large gamme d'âge des temps de résidence de l'eau souterraine allant de quelques heures lors de pics de crue jusqu'à quelques années (29 ans âges CFC-12/SF₆) au niveau de l'écoulement de base. Dans cette thèse les résultats de l'étude géochimique et isotopique sont cohérents avec l'étude hydrodynamique réalisée à partir du traitement du signal.

Le traitement du signal effectué sur les données piézométriques et débitométriques a démontré la présence deux grands types d'écoulements : les écoulements rapides (temps de réponse inférieur à quelques jours) et les écoulements lents (temps de résidence supérieur à quelques mois).

L'étude des traceurs géochimiques et isotopiques a permis de distinguer au sein des écoulements rapides, 3 grands types d'écoulement : des transferts d'eau de surface très rapides (quelques heures), des transferts d'eau de surface un peu plus lent quelques jours à quelques semaines, des transferts rapides d'eau avec remobilisation d'eau stockée dans l'épikarst par effet de piston ou mélange.

Une autre thèse combinant les approches hydrochimiques et hydrodynamiques dans un système karstique de Dordogne (Lopez, 2009) montre également que les transferts de pressions dans l'épikarst sont très rapides (1 à 2 jours) alors que les vitesses de circulation restent lentes et le fonctionnement du système en transfert de masse (transit) est plus à rapprocher d'un milieu fissuré que d'un milieu karstique.

2.4. RECOMMANDATIONS

Lorsqu'il s'agit d'utiliser les traceurs gazeux comme outils de datation, plusieurs recommandations peuvent être formulées.

D'une manière générale, et en préambule, il convient de rappeler que la compréhension des processus affectant l'acquisition du signal des gaz est évidemment primordiale : paramètres influençant la solubilisation des gaz, leur dégradation etc.

Les processus affectant leur transport, et notamment l'effet de l'hétérogénéité au sein des aquifères doit être gardé en mémoire. Dans un milieu naturel, il est donc difficile de parler d'âge de l'eau, terme qui ne peut pas traduire la distribution des différents âges. Il est possible en revanche de parler de temps de résidence moyen, et de préciser le type de la distribution des âges. Pour cela, plusieurs types de modèles analogues sont disponibles : piston (ou dirac), exponentiel, dispersif, ou des combinaisons de ces modèles. La bonne compréhension des processus de transport que tentent d'approximer ces modèles est indispensable. Pour aller plus loin dans la compréhension des modèles, il peut être intéressant de consulter les travaux de (Turnadge et Smerdon 2014). Un point de vigilance particulier est à maintenir pour le modèle piston qui ne devrait être utilisé que dans des cas bien circonscrits.

Le choix du modèle reste une étape importante. Il convient de pouvoir justifier l'utilisation d'un modèle de transfert sur la base d'éléments de structure et de fonctionnement connu. Dans

l'hypothèse où cela n'est pas évident, cela peut être le point de départ pour des investigations supplémentaires permettant cette étape.

Enfin, l'utilisation des gaz comme estimateurs du temps de séjour doit se faire comme un outil supplémentaire à un panel de méthodes et de techniques permettant de comprendre la structure et le fonctionnement d'un aquifère. Le couplage aux outils de l'hydrochimie notamment peut être de nature à confirmer ou infirmer l'existence de certains processus au sein de l'aquifère. Cela permet dans tous les cas de mieux documenter l'acquisition de la signature hydrochimique, de faire la part entre les écoulements rapides et des écoulements plus lents, de comprendre l'effet de la recharge, ou de mieux la documenter. Dans un certain nombre de cas, et pour de nombreux auteurs, analyser les données comme un ensemble conduit à censurer une partie des analyses, en raison de contaminations, de dégradations, etc. portant sur les concentrations en gaz. Cette étape est souvent le moyen de produire une analyse plus vraisemblable, et pour des incertitudes réduites.

3. Difficultés de l'utilisation des gaz dissous pour l'estimation des âges apparent des eaux souterraines

3.1. CONTAMINATION

3.1.1. Contamination du milieu

On repère les échantillon contaminés du fait de valeurs sortant largement du rang de valeurs attendues (Illustration 4). La contamination se fait par flux ou apports atmosphériques et provenant de sites et sols pollués, industries ou décharges – généralement en milieu urbain ou péri-urbain – Facile à détecter – les valeurs sont éliminées dès le début de la phase d'estimation des âges apparent – tous les gaz sont concernés – le SF₆ principalement du fait de transformateurs électriques.

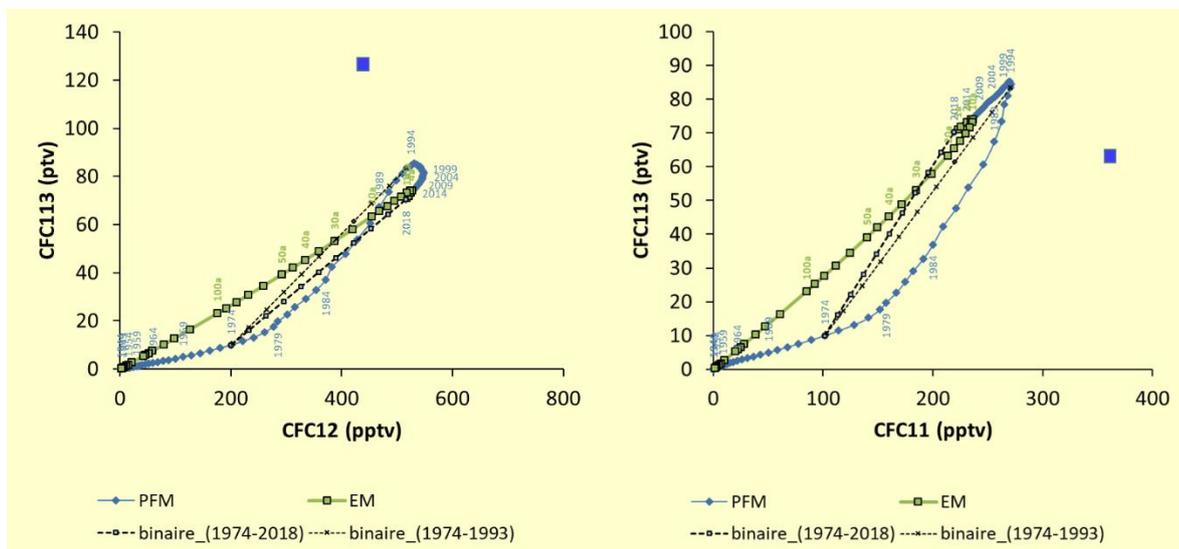


Illustration 4 : Exemple d'échantillon (carré bleu) avec concentrations en CFC-113 contaminée (à gauche) et concentration en CFC-11 a priori contaminée (à droite) – les différentes droites noires, bleues et vertes correspondent à différents modèles (mélange binaire, piston, exponentiel)

3.1.2. Origine géogénique des gaz dissous

Pour le SF₆, il existe un possible apport terrigène en milieu sédimentaire ou riche en Fluor ou Soufre qui serait plus généralisé que la possible contamination anthropique de ce gaz. On ne dispose pas de données pour les aquifères en France.

Internationalement, la présence SF₆ a été mis en évidence de nombreuses fois dans des contextes granitiques et volcanique. Quelques publications (Busenberg and Plummer, 2000 ; Darling et al., 2012 ; von Rohden et al., 2010) notent des concentrations élevées également dans des formations dolomitiques aux USA, Chine, Angleterre.

3.1.3. Contamination de l'échantillon

Du fait d'un apport involontaire d'air soit au moment du prélèvement ou du fait de la conception du point de prélèvement, la concentration en gaz dissous va être différente de celle de la nappe et va se rapprocher des valeurs actuelles. Les concentrations en gaz CFC et SF₆ dans l'air étant très élevées en comparaison des concentrations dans les eaux souterraines anciennes, une faible contamination (en volume) peut entraîner un important changement de concentrations dans les eaux. Ce type de contamination est plus difficile à détecter que la contamination du milieu puisque les concentrations mesurées resteront plausibles. Les âges estimés seront trop jeunes. L'expérience montre que la contamination se fait rarement au moment du prélèvement mais est le plus souvent dû à la configuration du point de prélèvement. Un ré-échantillonnage amènera alors à la même contamination. Pour y échapper, et lorsque c'est possible, il est nécessaire de trouver un autre point d'accès à l'aquifère.

3.2. DEGRADATION

Lorsque le milieu est réducteur (totalement, partiellement ou localement), du fait de la dégradation microbienne il y a diminution des concentrations en CFC – Le CFC11 est plus « sensible » que le CFC12 – les faibles teneurs en oxygène dissous (O₂) et les potentiels d'oxydo-réduction (Eh) faibles voire négatifs sont des indicateurs de possibles dégradations – Il peut y avoir également sorption des CFC lorsque le milieu est riche en carbone organique (en milieu alluvial notamment) par ordre de sensibilité CFC12 < CFC11 < CFC113 – Le CFC12 est le moins sensible à dégradation – Le SF₆ n'est pas impacté par les processus géochimiques.

Les paramètres directs de l'évaluation des conditions redox sont la teneur en oxygène dissous et le potentiel d'oxydo-réduction (Eh). Ces deux paramètres sont délicats à mesurer sur site. Pour l'O₂ dissous du fait de la difficulté de stabilisation de ce paramètre et des conditions de prélèvements pouvant affecter cette valeur, pour l'Eh, les sondes utilisées mesurent une moyenne d'un grand nombre de couples redox. Ces données sont donc perfectibles. Pour l'étude on a regardé les valeurs minimales de ces deux paramètres et lorsqu'elles étaient basses on a considéré qu'il y avait potentiellement, au niveau du point d'eau, des conditions redox pouvant avoir amené à une dégradation d'un ou plusieurs gaz.

Afin de pouvoir valider cette information on a regardé également les indicateurs indirects de milieux réducteurs, concentrations élevées en fer et manganèse, valeurs très basses (inférieures à la LQ) pour le nitrate. La présence d'ammonium ou de N₂ est aussi un indicateur de conditions réductrices au niveau du point d'eau.

La colonne « dégradation possible » du tableau de synthèse reprend l'ensemble de ces informations et signale par « oui » un processus possible de dégradation au sein de l'aquifère ou zone non saturée est possible (mais pas forcément le jour/période du prélèvement) et « non » signale une absence de dégradation (condition réductrice peu probable au sein de l'aquifère). L'absence d'information dans le tableau de synthèse reflète des situations non univoques ou pour lesquelles il est difficile de conclure.

3.3. EXCES D'AIR

L'excès d'air décrit le processus selon lequel une quantité de gaz additionnelle est dissoute dans l'eau lors des épisodes de recharge, Une augmentation rapide de la pression hydraulique due à la montée du niveau piézométrique peut induire la formation d'un « excès d'air » (Wilson and McNeill, 1997) correspondant à la dissolution de bulles d'air dans l'eau sous une pression supérieure à la pression atmosphérique. En termes simple, tout se passe comme si de petite

bulles d'air restaient prisonnières dans l'eau au moment où l'eau pénètre dans la zone saturée. Ces petites bulles d'air vont par la suite être entièrement dissoute dans l'eau, et l'ensemble du gaz qu'elles contiennent est solubilisé dans l'eau. Cette quantité de gaz dissout, additionnel, n'est pas du tout en lien avec les paramètres contrôlant habituellement la concentration en gaz dans l'eau en milieu ouvert (paramètres influençant la constante de Henry). Il est possible d'estimer la quantité d'air en excès grâce aux concentrations en gaz rares (en particulier Ne et Ar) lorsqu'elles sont mesurées.

L'excès d'air est un phénomène commun, la formation d'excès d'air est favorisée par les remontées rapides et importante de la nappe qui limitent l'évacuation de ces bulles d'air par rééquilibrage avec l'atmosphère de la zone d'infiltration du sol et/ou de la zone non saturée des systèmes karstiques. Il est dépendant de la fluctuation saisonnière du niveau de nappe et de la porosité et fracturation de la matrice. Durant la recharge on a une dissolution en excès par rapport aux calculs théoriques de dissolution des gaz dans l'eau. L'excès d'air concerne très fortement le SF₆ et dans une moindre mesure le CFC-12. Les 2 autres gaz du fait de leur plus faible solubilité sont peu sensibles à cet effet.

Ce processus a été implicitement pris en compte dans les études BRGM de 2011, 2012 et 2014 en lorsque les concentrations en SF₆ paraissaient trop élevées (Gourcy et Lopez, 2012 ; Gourcy et al., 2013 ; Gourcy, 2014). L'approche méthodologique est la suivante : lorsque les concentrations en gaz montrent des divergences entre les CFC avec le SF₆, une des raisons possible est la non prise en compte de l'excès d'air. On teste alors divers excès d'air et regarde si on obtient une meilleure convergence des âges CFC avec un excès d'air plus ou moins élevé.

L'excès d'air a été calculé dans l'étude ANTEAGROUP à l'aide des gaz dissous Ne et Ar. Ce sont les concentrations en SF₆ corrigées de cet excès d'air qui ont été fournis dans le fichier Excel de synthèse fourni par l'Agence.

Dans l'exemple de l'illustration 5, l'âge SF₆ dans le cas d'un aquifère décrit par le modèle piston serait de 2012 sans correction d'excès d'air et de 2008 avec correction d'air de 2 mg.l⁻¹.

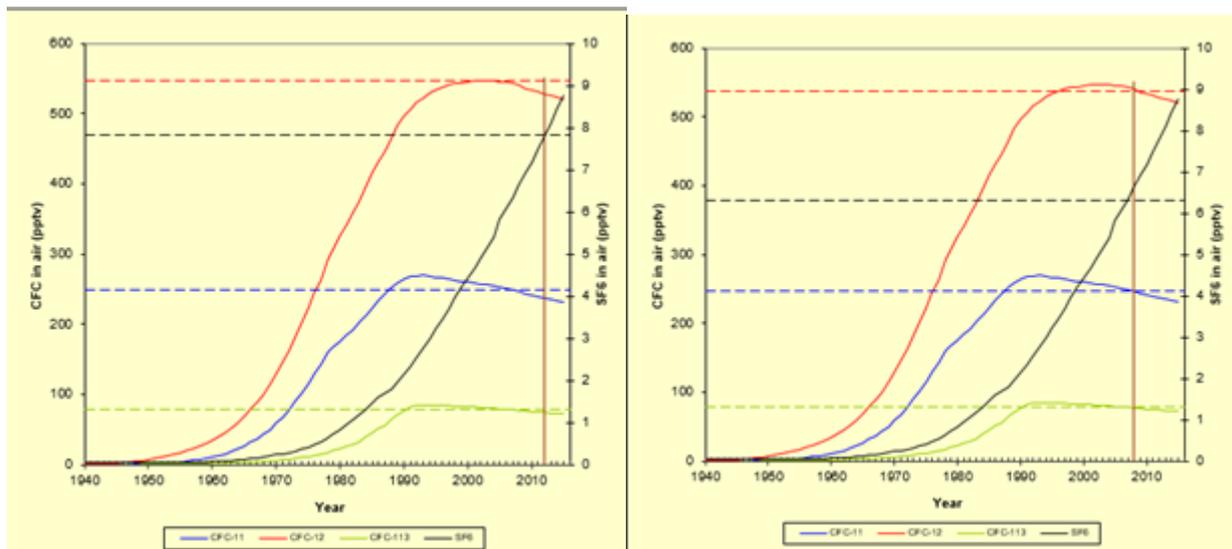


Illustration 5 : Exemple de variation des concentrations en gaz dissous selon l'excès d'air (sans correction d'air à gauche et correction d'air de 2 mg.kg⁻¹ à droite)

3.4. DEGAZAGE

A l'inverse de l'excès d'air il existe également des phénomènes de dégazage. La production de gaz biogénique en sub-surface (comme le CH_4 en milieu réducteur ou N_2 en terrains agricoles ou l'apport de CO_2 d'origine profonde (le cas échéant)) change la répartition entre phases aqueuses mobiles et phases gazeuses. Ainsi les gaz dissout peuvent rejoindre la phase gazeuse en partie ou totalement, et donc « disparaître » de l'eau échantillonnée par la suite. Ceci affecte essentiellement le SF_6 . Les CFC peuvent toutefois également être affecté par le phénomène. Si l'on ne considérait que ce gaz pour les calculs et que l'on ne tiendrait pas compte de l'effet de dégazage alors les âges apparents estimés seraient trop élevés.

L'effet de dégazage n'a pas été pris en compte dans les études de 2011, 2012, 2014, 2017 et 2018. Par contre, lorsque l'on ne détecte pas d'excès d'air, ou que le calcul à partir des concentrations en gaz nobles amène à un excès d'air « négatif » on pourrait supposer qu'un dégazage est possible. Ceci pourrait éventuellement et uniquement concerner les points Vaire-Arcier et Mancenans pour 2017.

3.5. DIFFICULTES PARTICULIERES POUR LES EAUX TRES JEUNES

Les concentrations en CFC dans l'atmosphère ont augmenté régulièrement depuis la date de première production de CFC en 1928 jusqu'à la mise en application du protocole de Montréal signé en 1987 (IAEA, 2006). A partir de cette date, l'arrêt de la production et de l'utilisation a provoqué une stagnation puis une diminution des teneurs atmosphériques du CFC-11, CFC-12 et CFC-113, respectivement en 1994, 2001 et 1996. Depuis cette date, les concentrations de ces trois gaz continuent de diminuer. Les concentrations en SF_6 quant à elle sont strictement croissantes depuis les années 50 environ.

Aussi, pour les CFCs, une valeur de concentration peut être associée à deux dates possibles (effet d'une 'courbe en cloche').

Comme la méthode de datation consiste à comparer la concentration en gaz dans l'échantillon avec les concentrations de gaz dans l'atmosphère, à une concentration donnée dans l'eau peut correspondre deux dates ayant présentées des concentrations identiques dans l'atmosphère. La situation est dite équivoque.

L'illustration 6 montre que l'âge CFC-12 pourrait être 1993 ou 2013, l'âge CFC-11 1988 ou 2009 et l'âge CFC-113 1990 ou 2010. Il y a univocité pour les âges SF_6 .

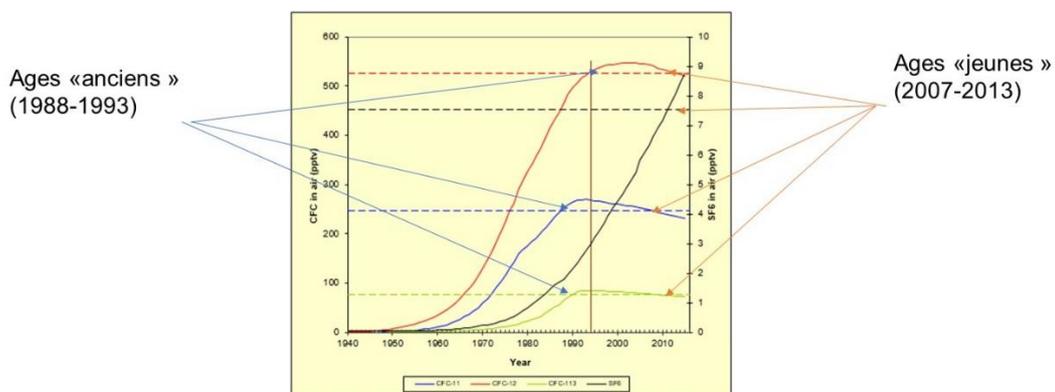


Illustration 6 : Chroniques de CFC et SF_6 dans l'atmosphère et droites en pointillées correspondant à un échantillon d'eau

La donnée SF_6 peut permettre de trancher (pas de décroissance des concentrations) ainsi que la « compatibilité des âges CFC », si au préalable, l'effet de l'excès d'air a été pris en compte. En effet on peut obtenir des âges CFC jeunes avec une faible variabilité et des âges « vieux » montrant de fortes différences ou inversement étant donné que les trois courbes n'évoluent pas de la même manière à la croissance et à la diminution.

3.6. IMPORTANCE DE LA PRISE EN COMPTE DES DIFFÉRENTS PROCESSUS AFFECTANT LA CONCENTRATION EN GAZ DISSOUS DANS L'ESTIMATION DES ÂGES

Une des difficultés de la datation par les gaz dissous est que les processus décrits ci-dessus (difficultés et limitations de la méthodes) peuvent se cumuler. Ainsi, sur un point d'eau, on peut à la fois avoir une contamination en CFC-12, une dégradation du CFC-113 et un excès d'air affectant le SF_6 . C'est pourquoi il est nécessaire d'utiliser plusieurs traceurs. Malgré cela il est quelque fois difficile de trancher si on se trouve face à une contamination en un gaz ou en dégradation en un autre gaz lorsque les 4 gaz utilisés ne concordent pas en termes d'âge. L'utilisation de graphes binaires, permettant de comparer les gaz entre eux est une méthode intéressante pour permettre d'évaluer les possibles contamination et dégradation. Dans l'exemple de l'illustration 7, le premier graphe montre la valeur mesurée en CFC-113 vs CFC-11 et le deuxième le SF_6 vs CFC-12.

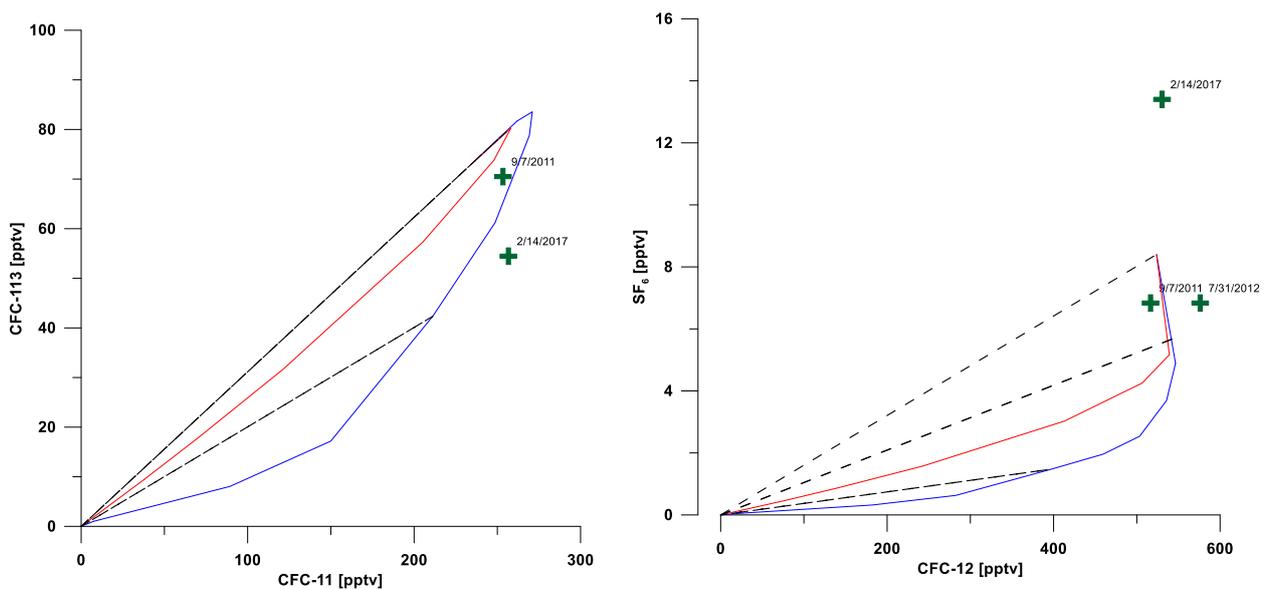


Illustration 7 : Exemple d'échantillons à diverses périodes (croix vertes) avec concentrations en CFC-113 vs CFC-11 et SF_6 vs CFC-12 – les différentes droites noires, rouges et bleues correspondent à différents modèles (respectivement mélange binaire, exponentiel et piston)

Sur la figure de droite on note que l'échantillon du 14 février 2017 est nettement contaminé en SF_6 . Il est donc relativement facile de ne pas tenir compte de cette valeur lors de l'estimation des âges. Sur la figure de gauche, pour ce même point il y a possible contamination en CFC-11 ou dégradation du CFC-113. La validation de l'une ou l'autre de ces hypothèses doit être prise au regard des conditions physico-chimiques au point d'eau et des autres gaz dissous.

Certains gaz sont plus sensibles à la dégradation, d'autres à la contamination. On dispose également d'indicateurs de milieu (réducteur) favorable à la dégradation.

Ainsi, pour l'estimation des âges, le BRGM préfère valider les gaz à utiliser avant de passer à la phase de calcul des âges apparents plutôt que d'estimer après coup parmi divers âges estimés pour un même point d'eau lequel est le plus « crédible » au vue du contexte hydrogéologique et de l'ensemble des datations.

Cette phase de validation repose sur l'analyse des diagrammes binaires notamment.

4. Analyse des données et réinterprétation

4.1. LES POINTS D'EAU CONCERNES

Les points pour lesquels une ré-interprétation a été opérée sont répartis tels que :

- 12 points d'eau pour lesquels les datations divergent entre les estimations 2011, 2012 ou 2014 et les estimations de l'étude ANTEAGROUP de 2017/2018 (points A),
- 7 points d'eau avec âges « apparents » ne correspondant *a priori* pas au fonctionnement hydrogéologique local connu (points B),
- 3 points de datations divergentes et d'âges *a priori* ne correspondant pas au fonctionnement hydrogéologique local connu (points A + B).

Au total ce sont donc 22 points d'eau qui sont concernés par cette expertise. Ces points sont localisés dans des alluvions pour 9 d'entre eux et dans des formations calcaires karstifiées pour les 13 autres points et répartis sur tout le bassin Rhône-Méditerranée.

On dispose de plusieurs séries de données correspondant à des prélèvements à diverses périodes pour chacun des points sélectionnés. On note deux prélèvements pour les points d'eau à Aurel, Montbellet, Vauvert et Bonlieu-sur-Roubion. Ces points du groupe B n'ont été prélevés qu'en 2017 et 2018. On note deux prélèvements également pour le point d'eau de Villiers-Les-Aprey/source-ville-haut classé dans le groupe A des points d'eau.

On dispose de 4 prélèvements à des périodes différentes pour les points d'eau de Champlitte/source du Vivier et Sermerieu/puits de Sermerieu.

Pour les autres points d'eau on dispose de 3 données de gaz dissous à des périodes différentes comprises entre 2011 et 2018.

En tout ce sont donc 63 séries de données correspondant à 22 points d'eau qui ont été traitées dans le cadre de cette expertise.

4.2. CONDITIONS D'INTERPRETATION DES DONNEES

4.2.1. Analyse des paramètres physico-chimiques

Le principe de datation des eaux se base sur un schéma simple (Illustration 8). Un prélèvement d'eau est réalisé en évitant les contacts avec l'atmosphère. Les échantillons sont envoyés au laboratoire afin d'analyser les concentrations en gaz dissous dans l'eau (concentrations données en pico ou femtomoles.l⁻¹). Il convient ensuite d'exprimer ses concentrations en 'équivalent atmosphère', c'est-à-dire calculer la concentration de l'air qui était en contact avec l'eau lorsque la mise à l'équilibre s'est opérée. Ce sont ces concentrations qu'il conviendra de comparer avec les mesures de concentrations en gaz dans l'atmosphère, à des stations de référence et mesurées depuis plusieurs dizaines d'années à diverses localisations du globe.

La dissolution des gaz dans l'eau est contrôlée par différents paramètres : température, pression atmosphérique, salinité. La part relative de ces paramètres et leur influence est exprimée par la loi de solubilisation des gaz, dite loi de Henry. Les concentrations dans l'air sont généralement exprimées comme un rapport : volume du gaz en question/ volume total, dont l'unité est le pptv (partie par milliard (trillions en anglais) volumique).

Les différents termes de la loi de Henry peuvent soit être mesurés, soit être estimés. Pour mémoire, il faut noter que ces paramètres correspondent aux paramètres au moment de la recharge. Si le lieu et le moment de la recharge sont mal connus, cela introduit une incertitude supplémentaire dans l'interprétation. A l'inverse, cela peut aussi conduire à mieux cerner les endroits probables où la recharge prend lieu.

La pression atmosphérique est calculée à partir de l'altitude moyenne de la recharge. La température et salinité de l'eau à la recharge peuvent être estimées comme la température et salinité de l'eau prélevée. Dans le cas d'étude aucun point d'eau ne présente de salinité élevée et ce paramètre peut donc être négligé, comme c'est très généralement le cas pour les eaux souterraines.

L'altitude moyenne de recharge a été reprise des données de l'étude ANTEAGROUP du fait de la validation de ces paramètres par les experts de l'Agence de l'eau. Une variation de 100m de cette valeur entraîne, pour un modèle de type exponentiel simple, une variation de l'âge apparent des eaux souterraines de moins d'un an. Etant donné les connaissances hydrogéologiques sur les secteurs des points d'eau étudiés on considère que cette incertitude est faible par rapport aux autres incertitudes citées plus loin.

Le facteur température joue de manière significative sur l'estimation des âges. Par exemple, pour une différence de température de 1° et un modèle exponentiel simple, une différence de 2/3 ans est facilement observée. Cet écart est très variable suivant les gammes d'âges et le modèle pris en compte. Dans un premier temps la température estimée par ANTEAGROUP à partir de l'altitude moyenne de recharge a été retenue afin de permettre une ré-analyse uniforme des données. Toutefois, l'étude des autres paramètres physico-chimique a révélé pour certains points une forte variabilité temporelle de la température de l'eau ? (jusqu'à 18°C d'écart entre le centile10 et le centile90 d'une chronique). L'analyse croisée des données de piézométrie et de température (voir chapitre 5) montre également un très faible déphasage entre ces deux paramètres. Dans ces conditions il semble pertinent de considérer la température de l'eau au moment du prélèvement comme la température moyenne de l'eau de recharge à point. Les deux calculs ont été réalisés et les différences d'âges apparents sont indiqués dans les fiches récapitulatives.

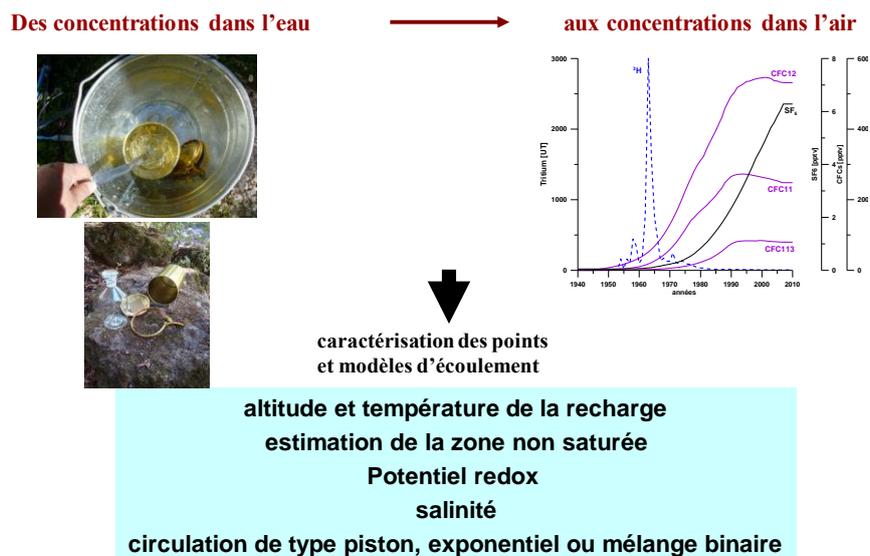


Illustration 8 : Schéma de réalisation de l'estimation des âges apparents des eaux souterraines par traceurs chimiques

4.2.2. Analyse des modèles choisis et fonctionnement hydrogéologique

Un modèle de circulation de l'eau de la recharge jusqu'à un exutoire (captage) doit également être choisi pour permettre l'estimation des âges apparents. Dans des conditions idéales un modèle maillé 3D devrait être établi pour chaque captage. Pour un travail à petite échelle incluant un grand nombre de points on préférera utiliser des modèles simplifiés, en particulier les modèles paramétriques. On dispose ainsi de plusieurs types de modèles simples, suivant la fonction de transfert considérée, pour les estimations de la distribution des âges et âges moyens.

Modèle piston (PFM) – Le modèle piston assume un trajet du traceur de la zone de recharge au point de prélèvement sans dispersion hydrodynamique ni mélange. Ce modèle peut être utilisé si la dispersion est faible, les vitesses de moyenne de flux importantes ou une distance entre recharge et point de prélèvement courte. Les deux cas de l'illustration 9 peuvent être considérés comme piston ; forages de faible profondeur et courte crépine dans un aquifère libre ou captage en aquifère confiné.

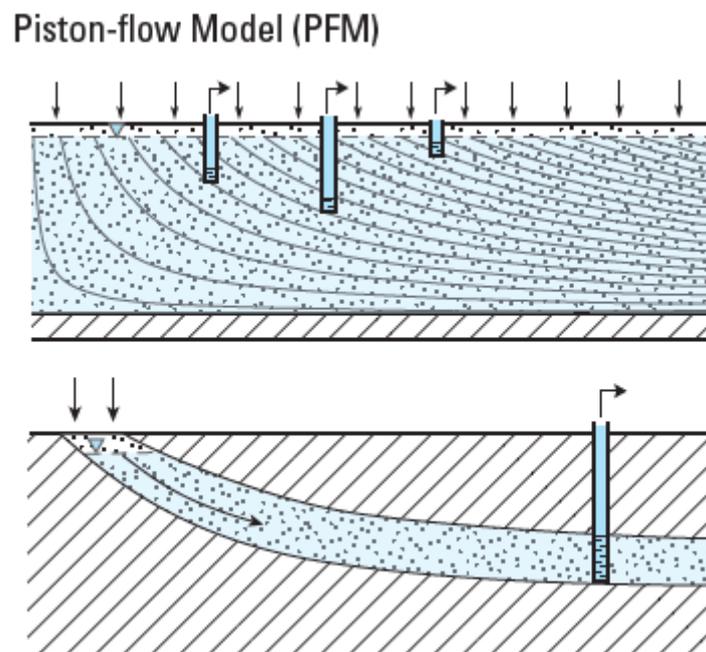


Illustration 9 : Configurations hydrogéologiques simplifiées pour lesquelles le modèle type piston peut être utilisé

Modèle mélange exponentiel (EMM) - Ce modèle est applicable à des aquifères libres homogènes d'épaisseur constante recevant une recharge de manière uniforme. Cette situation amène une stratification verticale des âges avec croissance logarithmique de 0 au niveau piézométrique à très important (~infini) à la base de l'aquifère (Illustration 10). Ce modèle est approprié pour un captage captant toute la colonne d'eau ou des aquifères déchargeant en rivière ou au niveau de sources.

Exponential Mixing Model (EMM)

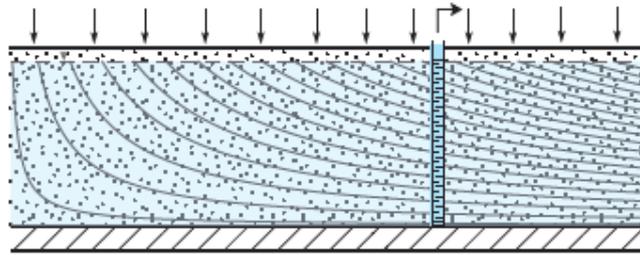


Illustration 10 : Configurations hydrogéologiques simplifiées pour lesquelles le modèle type mélange exponentiel peut être utilisé

Modèle piston-exponentiel (EPM) – Ce modèle décrit un aquifère avec 2 parties d'écoulements différentes, une première de type exponentiel (dans la zone de recharge de l'aquifère) puis une autre de type piston (Illustration 11) en passant en zone plus captive par exemple (ce modèle est caractérisé par 2 paramètres, l'âge moyen et le ratio x^*/x).

Exponential Piston-Flow Model (EPM)

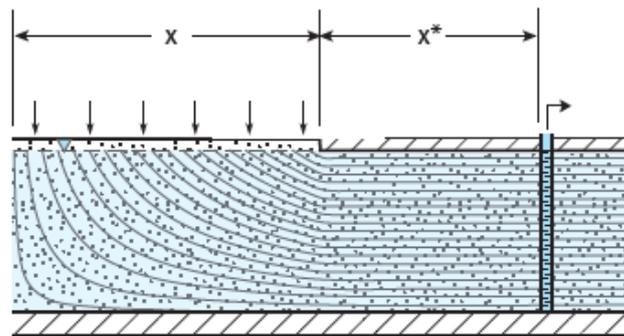


Illustration 11 : Configuration hydrogéologique simplifiée pour laquelle le modèle type piston-exponentiel peut être utilisé

Modèle exponentiel partiel – Ce modèle est utilisé pour les mêmes types d'aquifère que présentés pour le modèle mélange exponentiel mais est utilisé seulement lorsque la partie la plus profonde de l'aquifère est captée (crépine positionnée plutôt à la base de la colonne d'eau). Cette configuration est commune pour des captages AEP (Illustration 12) en nappe libre. Ce modèle est caractérisé par 2 paramètres, l'âge moyen et le ratio z^*/z

Partial Exponential Model (PEM)

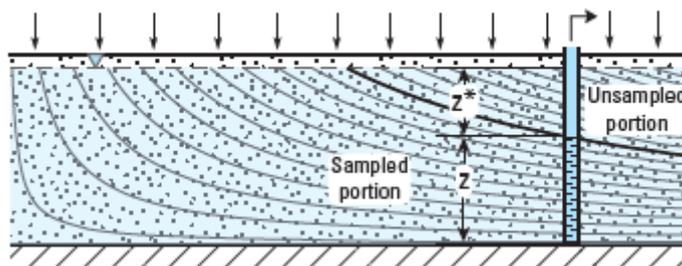


Illustration 12 : Configuration hydrogéologique simplifiée pour laquelle le modèle type exponentiel partiel peut être utilisé

Modèle dispersion – Le modèle dispersion se base sur une solution d'une équation unidimensionnelle d'advection-dispersion pour un media semi fini avec une injection instantanée et une détection le long des lignes de flux. Le modèle de dispersion a deux paramètres ; l'âge moyen et la dispersion. Le modèle s'applique à un grand nombre de configurations hydrogéologiques (Illustration 13). Il peut s'appliquer à des cas similaires à ceux du modèle piston (figure du haut) ou exponentiel piston vues plus haut et à d'autres cas plus complexes.

Dispersion Model (DM)

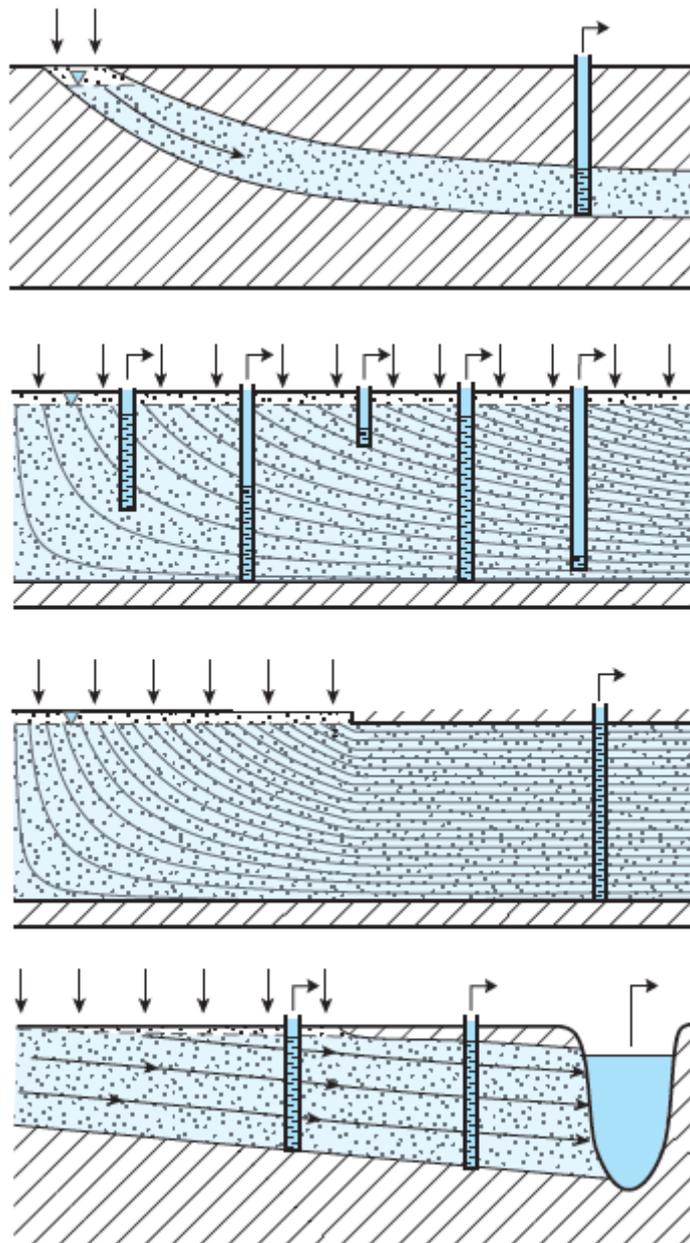


Illustration 13 : Configurations hydrogéologiques simplifiées pour lesquelles le modèle type dispersion peut être utilisé

Modèle de mélange binaire – Ce modèle décrit un mélange de deux composants, chacun pouvant avoir une configuration hydrogéologique différente. Le modèle de mélange est approprié pour des captages exploitant l'eau de deux niveaux hydrogéologiques/ aquifères différents (B) ou

avec une interception d'une partie d'eau d'âge significativement différent (A) (Illustration 14). Noter que la configuration du cas (B) est interdite en France depuis plusieurs années.

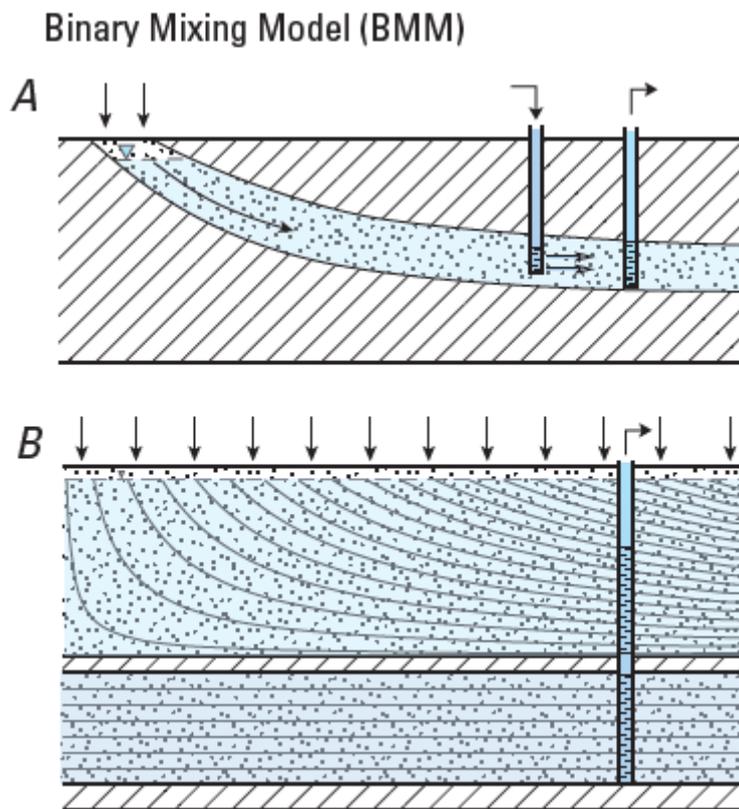


Illustration 14 : Configurations hydrogéologiques simplifiées pour lesquelles le modèle type mélange binaire peut être utilisé

4.2.3. Chronique des gaz dissous dans l'air

Les gaz anthropiques CFCs et SF₆ ont une évolution atmosphérique connue depuis 1910. Ces chroniques retracent l'évolution des concentrations en gaz dans l'air atmosphérique. Ces chroniques constituent les fonctions d'entrées des modèles théoriques précédemment présentés. Cela décrit les concentrations avec lesquelles l'eau a été à l'équilibre lors de la recharge. C'est à ces chroniques que l'on cherche à comparer les concentrations atmosphériques équivalentes (exprimées en pptv) mesurées dans les échantillons d'eau.

Les concentrations atmosphériques sont variables entre l'hémisphère nord et l'hémisphère sud du fait des centres historiques de production anthropique des gaz. A l'échelle de l'hémisphère nord, la variation des concentrations mesurées aux différentes stations de mesure est faible. ANTEAGROUP a utilisé les données de la station théorique de l'hémisphère nord (données du réseau CMDL/NOAA traitées par l'USGS), le BRGM utilise les données de la station de Mace Head issues du réseau ALE/GAGE/AGAGE (Prinn et al., 2000 ; Prinn et al., 2016). La différence entre ces deux chroniques est faible (Illustration 15) et n'entraîne pas de variation d'âge apparent. A noter que les valeurs avant 1975 sont identiques puisqu'estimées à partir de différentes sources d'informations, les stations de mesures n'existant pas encore.

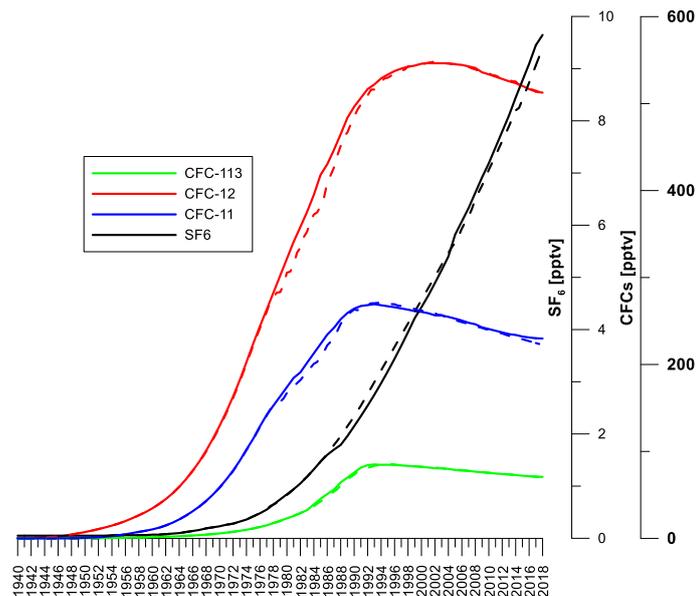


Illustration 15 : Courbes de référence des concentrations dans l'air des gaz CFC et SF₆ à la station de Mace Head (lignes continues) et Hémisphère Nord (pointillés), ALE/GAGE/AGAGE (Prinn et al., 2000 ; Prinn et al., 2016)

4.2.4. Conditions de réalisation des interprétations des gaz dissous en vue de datation

La réinterprétation des données 2011, 2012, 2014, 2017 et 2018 a été faite à partir des résultats bruts d'analyses des CFC-11, CFC-12 et CFC-113. Pour le SF₆, les données 2017 et 2018 corrigés de l'excès d'air ont été utilisés. La donnée d'excès d'air n'est pas disponible pour les prélèvements 2011, 2012 et 2014. Les données d'excès d'air de 2017 et 2018 pour un même point sont fortement variables et il n'est donc pas possible d'estimer l'excès d'air *a posteriori*. Un excès d'air minimum et maximum a été testé de manière systématique pour les données 2011, 2012 et 2014. Les résultats les plus cohérents avec les CFC ont été retenus.

Les mêmes paramètres de température, altitude, salinité ont été retenus et, dans la mesure du possible, le même modèle conceptuel interprétatif (modèle piston, modèle exponentiel ou modèle de mélange binaire).

La première étape de la réinterprétation a consisté à analyser l'évolution des concentrations en gaz dissous dans l'eau pour les différents prélèvements (concentrations en pmol/l et fmol/l pour le SF₆). Cette analyse se fait donc sans a priori de température de recharge ou d'altitude ni de modèle conceptuel de comportement hydrogéologique.

Selon l'évolution des gaz dans l'air (Illustration 15), une diminution (~post 1994) ou augmentation (pré 1990) dans le temps des concentrations en gaz est attendue. Si l'on prend l'exemple de Laives (Illustration 16) pour un âge estimé par ANTEAGROUP de 20-30 ans, on s'attendrait à une augmentation des concentrations en gaz dissous entre la datation de 2011 et celle de 2017 et une très faible variation entre les hautes eaux (HE) et les basses eaux (BE) de 2017 pour un âge qui n'évoluerait pas saisonnièrement. L'analyse des gaz bruts montre une baisse des concentrations entre 2011 et 2017 pour les CFC-11 et CFC-12 ce qui est attendu pour des eaux post 2000. La forte variabilité des concentrations des deux prélèvements de 2017 et le sens d'évolution différent entre les 3 gaz laissent penser soit à une variabilité saisonnière, soit (et/ou) à une contamination ou dégradation d'un des gaz.

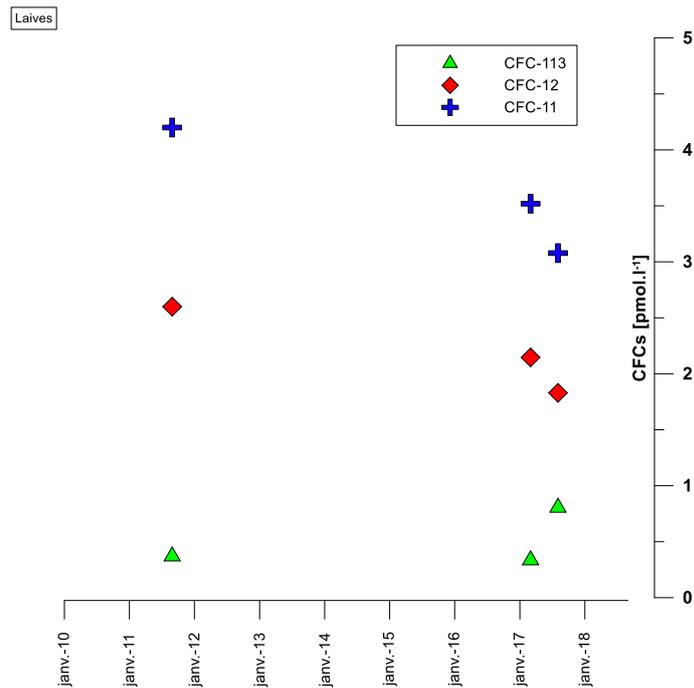


Illustration 16 : Concentrations en CFC-11, CFC-12, CFC-113 en 2011, 2017 hautes eaux et basses eaux à Laives

Ce type de diagnostic a été réalisée sur chaque point de prélèvement en étape préliminaire au recalcul des âges apparents. A cette étape du travail aucune donnée n'est éliminée puisqu'il n'est pas possible d'identifier le/les traceurs pouvant poser problème et de déterminer la nature du processus impliqué (dégradation, pollution, dégazage).

4.2.5. Choix des modèles à utiliser

Le choix du modèle à utiliser pour l'interprétation peut se faire uniquement sur la base des connaissances hydrogéologiques. Pour un captage implanté dans un système alluvial d'épaisseur homogène et rechargé de manière uniforme, dont la crépine est positionnée à la base du système (cf. Illustration 12), un modèle exponentiel partiel (PEM) serait à privilégier (la connaissance de l'épaisseur de la zone noyée et les caractéristique des crépines de l'ouvrage sont nécessaires au préalable) . Mais il n'est pas toujours simple de relier un mode de fonctionnement très simplifié à un aquifère complexe même avec de bonnes connaissances hydrogéologiques du site d'étude.

La deuxième possibilité est de choisir ou tout au moins valider le choix du modèle en utilisant les informations apportées par les gaz dissous. En effet, si les 4 gaz anthropiques dissous sont utilisables (pas de contamination et pas de dégradation), on obtiendra un âge unique si l'on a sélectionné le bon modèle. L'utilisation des autres modèles montreraient des divergences plus ou moins importantes entre les âges estimés pour chacun des gaz. Dans le cadre de cette expertise, la difficulté est que les contextes hydrogéologiques des systèmes étudiés (systèmes alluviaux, karstiques) sont favorables à des contaminations, des phénomènes de mélanges avec des eaux jeunes et des processus de dégradation (surtout en milieu alluvial). Ainsi on dispose rarement de 4 gaz pour valider le modèle conceptuel interprétatif. Les gaz retenus pour l'estimation des âges sont indiqués dans le tableau de synthèse.

Dans la plupart des cas on dispose de peu de gaz pour réaliser l'estimation des âges. Dans le cadre de cette expertise, on a le plus souvent privilégié les divers modèles exponentiels (EMM et

PEM) et défavoriser le modèle de mélange binaire car ce modèle conceptuel est plus délicat à utiliser lorsque l'on ne dispose pas de l'information des 4 gaz

4.2.6. Estimation des âges et incertitudes

En considérant d'une part, les informations des gaz qui ont été jugés pertinents et d'autre part, le modèle conceptuel qui permet de décrire au mieux le fonctionnement hydrogéologique du système étudié, il est possible d'estimer un âge apparent (ou âge CFC) pour chacun des points et chacune des périodes de mesure.

Le choix du modèle conceptuel peut être important dans l'interprétation des résultats. Pour des mêmes gaz considérés comme fiables, les âges apparents sont d'un même ordre de grandeur quelques soit le modèle choisi.

Dans certain cas, l'interprétation est rendue délicate. Il est possible certaines fois d'hésiter entre la sélection de 2 gaz (SF_6 et CFC-12 par exemple) et un âge x et la sélection des deux autres gaz (CFC11 et CFC113 par exemple) et un âge y . Les différences d'âges x et y dans ces conditions peuvent alors être de plusieurs dizaines d'années. Cette configuration est possible et a été rencontrée à plusieurs reprises sur quelques-uns des sites de cette étude.

On peut toujours proposer un âge apparent même lorsque l'on ne dispose que d'un seul traceur « utilisable ». Dans ces conditions l'incertitude est forte car on pourrait également imaginer que le traceur retenu est soit contaminé soit dégradé. Dans ce contexte (1 seul gaz utilisable) l'estimation des âges apparents est réalisée à l'aide des concentrations des chroniques atmosphériques ce qui revient implicitement à considérer que le système est décrit par un modèle piston

Pour l'estimation des « âges apparents » les températures et altitude moyenne de recharge ont été considéré comme fiables. Les autres incertitudes prises en compte sont :

- le nombre de traceurs utilisables : si on ne dispose que d'un traceur fiable alors l'incertitude sera élevée,
- la divergences des âges apparents : il est possible de disposer de 3 ou 4 traceurs utilisables mais avec de fortes divergences d'âges. Si on dispose de peu d'information sur de possibles contamination ou dégradation alors l'incertitude sera également élevée,
- la variabilité saisonnière des paramètres : si on note de fortes variations des concentrations de gaz entre les HE et BE de 2017 ou HE de 2018 ceci indique une dynamique rapide donc des eaux jeunes ou des contaminations possibles d'origine diverses. L'indice de confiance de la datation dans ce cas est faible.

5. Recherche d'autres indicateurs

5.1. ANALYSE STATISTIQUE DE LA REPRESENTATIVITE DES POINTS D'EAU AU SEIN DE L'ENTITE BDLISA

L'objectif de cette analyse est d'évaluer, pour le captage considéré, la représentativité de la gamme d'âge proposée par datation au regard des informations disponibles sur le fonctionnement hydrogéologique de la masse d'eau/entité BDLISA. En particulier, l'analyse cherche à identifier si le point (captage) bénéficie de conditions particulières pour son alimentation qui pourraient expliquer le fait qu'il soit peu représentatif des délais de renouvellement des eaux de l'entité sur lequel il est situé. Pour mémoire, les entités BDLISA correspondent à des ensembles aquifères homogènes dont les limites en plan et dans la coupe sont connus, ainsi qu'un certain nombre d'attributs : potentiel aquifère, type de porosité notamment.

5.1.1. Description des données

Les données utilisées pour réaliser les analyses sont des données de qualité des eaux souterraines, des données de hauteurs d'eau souterraine et des métadonnées associées à l'ensemble de ces points. Les données sont issues de la base de données ADES, interrogée en novembre 2018.

Pour réaliser les analyses statistiques, des approches spécifiques ont été développées sous le logiciel de statistiques libre R, en utilisant des méthodes statistiques éprouvées.

Pour voir si les points sélectionnés sont représentatifs de l'entité BDLISA à laquelle ils sont rattachés, les tests non-paramétriques de variances (Kruskal-Wallis et Conover-Iman), permettant de détecter l'appartenance d'un échantillon à une population, ont été réalisés sur l'ensemble des points disponibles pour les entités BDLISA des points de l'expertise. Cela représente un total potentiel de 664 qualitomètres, 22 piézomètres et 10 stations faisant à la fois l'objet de mesures piézométriques et de qualité. Un certain nombre de stations ne comportant aucune mesure dans ADES, le nombre de qualitomètre sélectionné a été réduit à 507 stations disposant de données de qualité et 29 stations disposant de données piézométriques, réparties sur l'ensemble des 16 entités BDLISA concernées par l'expertise.

5.1.2. Description des tests statistiques

Procédure de comparaison des échantillons : Kruskal-Wallis

La description technique des tests statistiques présentée ci-dessous provient de l'aide du logiciel xlstat (<https://www.xlstat.com/fr/solutions/fonctionnalites/test-non-parametrique-sur-k-echantillons-independants-test-de-kruskal-wallis>).

Le test de Kruskal-Wallis est un test non paramétrique à utiliser lorsque vous êtes en présence de k échantillons indépendants, afin de déterminer si les échantillons proviennent d'une même population ou si au moins un échantillon provient d'une population différente des autres.

Le test de Kruskal-Wallis est souvent utilisé comme une alternative à l'ANOVA dans le cas où l'hypothèse de normalité n'est pas acceptable. Il permet de tester si k échantillons ($k > 2$) proviennent de la même population, ou de populations ayant des caractéristiques identiques, au

sens d'un paramètre de position (le paramètre de position est conceptuellement proche de la médiane, mais le test de Kruskal-Wallis prend en compte plus d'information que la position au seul sens de la médiane).

Procédure de comparaison multiples : Conover-Iman

Si la p-value issue du test de Kruskal-Wallis est telle que l'on doit rejeter l'hypothèse H_0 , alors au moins un échantillon (ou groupe) est différent d'un autre ($p\text{-value} < 0,05$). Afin d'identifier quels échantillons sont responsables du rejet de l'hypothèse nulle (H_0), il est possible d'utiliser une procédure de comparaisons multiples.

Pour le test de Kruskal-Wallis trois méthodes de comparaisons multiples sont proposées :

- Dunn (1963) : propose une méthode basée sur la comparaison des moyennes des rangs, ces derniers étant ceux utilisés pour le calcul du K, en utilisant une distribution normale asymptotique pour la différence standardisée de la moyenne des rangs.
- **Conover et Iman** (1999) : proche de la méthode de Dunn, cette méthode utilise une distribution de Student. Elle correspond à un test de Student réalisé sur les rangs.
- Steel-Dwass-Critchlow-Fligner (1984) : cette méthode, plus complexe mais recommandée par Hollander (1999), nécessite le recalcul des rangs pour chaque combinaison deux à deux des échantillons. La statistique W_{ij} est calculée pour chaque combinaison.

Regroupement des échantillons

Pour regrouper les qualitomètres entre eux, c'est la méthode de Conover et Iman qui est utilisée.

Attention: cette méthode est appliquée dès lors que la p-value issue du Kruskal-Wallis est inférieure ou égale à 0,05. Cependant, selon les points, les valeurs mesurées peuvent correspondre à des limites de quantification (LQ), pouvant différer d'une mesure à l'autre en fonction de la méthode de quantification utilisée. Il faut être attentif au nombre de mesures hors LQ disponibles (information au-dessus du cadre dans l'alignement de chaque boxplot) et aux différentes limites de quantifications repérées sur les graphiques par des lignes horizontales en pointillés gris.

Les deux niveaux de regroupement sont:

- niveau 1 (lettres minuscules): à chaque individu (qualitomètre) est attribué une lettre (ici 9 individus donc de « a » à « i »). Si l'individu « a » est considéré par la méthode de Conover et Iman comme faisant partie de la même population que l'individu « b », alors les deux individus seront identifiés comme « ab ». Si l'individu « c » est à la fois considéré comme différent de « a » et de « b », il sera identifié comme « c ». Ce premier niveau permet de visualiser le résultat détaillé du test pour tous les individus
- niveau 2 (lettres majuscule): ce deuxième niveau vise simplement à créer les groupes d'individus tels que rassemblés par le premier niveau, sans se soucier du détail du niveau 1. Ainsi, en reprenant l'exemple donnée pour le niveau 1, les individus regroupés « ab » seront identifiés comme faisant partie du groupe « A », et l'individu identifié comme « c » sera identifié comme faisant partie du groupe « B ».

Légende des figures

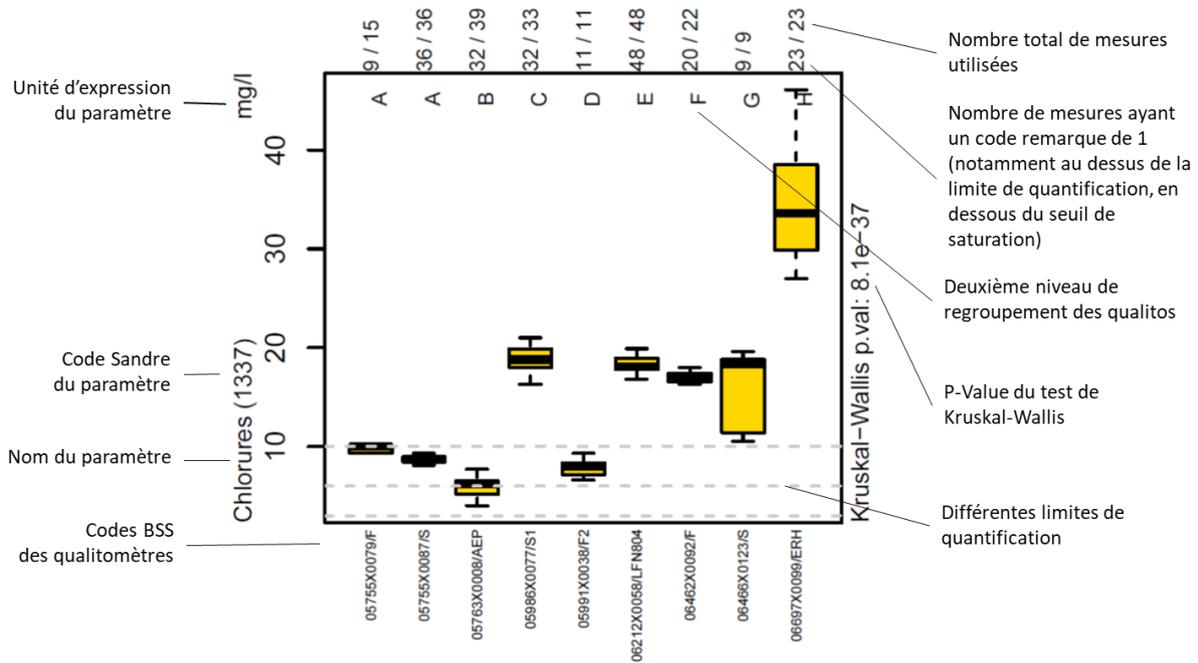


Illustration 17 : légende des figures synthétisant les résultats des tests d'indépendance des échantillons.

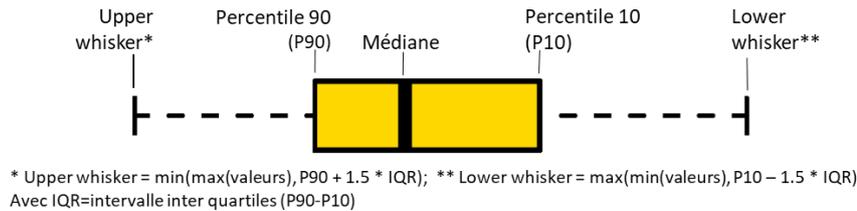


Illustration 18 : Détails des informations représentés sur les boites à moustaches, permettant d'interpréter les différentes informations reportées sur les figures, en particulier la méthodes de regroupement (Conover-Iman).

5.1.3. Présentation des résultats

La totalité des résultats est disponible dans le dossier électronique fournie à l'Agence. Quelques résultats sont présentés ci-dessous à seuls fins d'illustrer les propos. L'information apportée par cette approche a été ajoutée à chacune des fiches des points d'eau.

Sur l'illustration 19, on montre que pour l'entité BDLISA 505AA02, 7 points d'eau ont été recensés. Pour l'élément calcium, le point de l'expertise 05278X1003/CC correspond à un fonctionnement de type F, chacun des points de l'entité ayant un comportement différent pour cet élément à l'exception du type E correspondant à 2 points d'eau. Les points de l'alluvions du Doubs aval et graviers du "Saint-Côme" de la plaine Saône-Doubs ont donc un comportement hydrogéochimique différents.

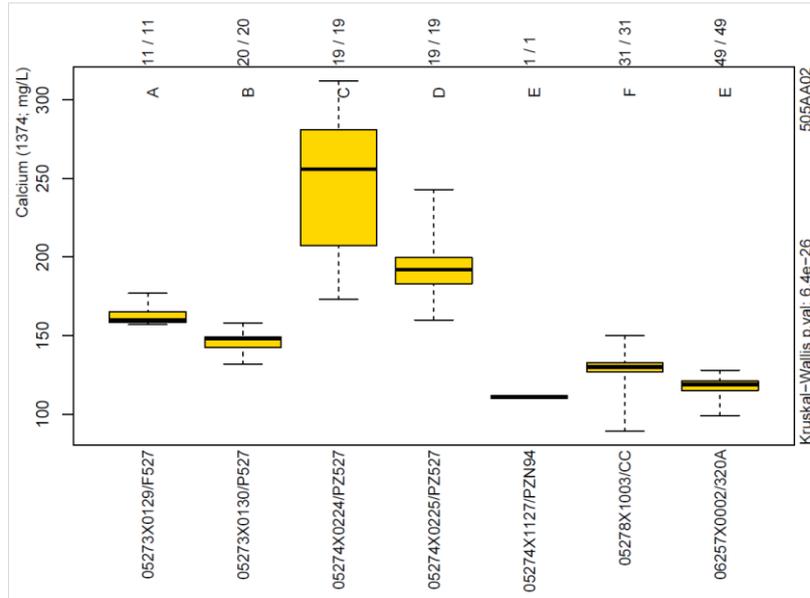


Illustration 19 : Résultat du tests de Kruskal-Wallis et Conover Iman pour l'entité BDLISA 505AA02 et le calcium

Pour l'entité 515AB03 et le magnésium (Illustration 20), le point de l'expertise 04741X0028/S a un comportement similaire à 04737X0012/S (lettre A) et différent des autres points de la masse d'eau. Cette entité correspond à des calcaires jurassiques du Jura septentrional avec comportement hétérogène hydrogéochimiquement.

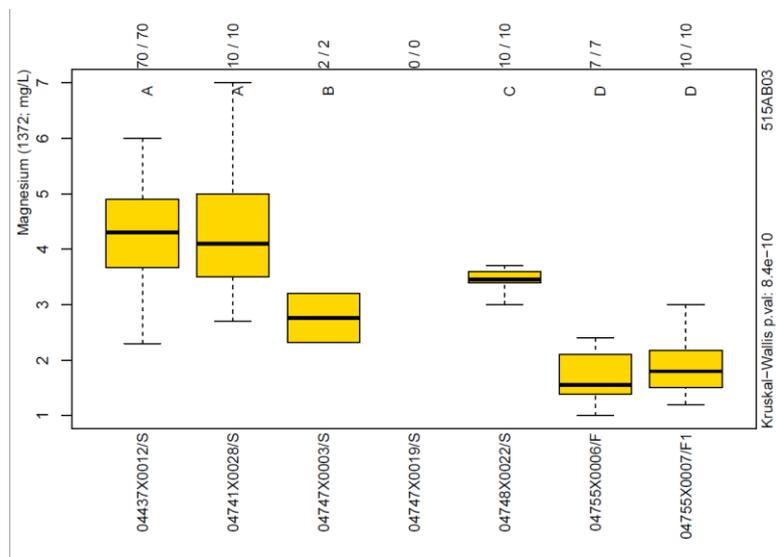


Illustration 20 : Résultat du tests de Kruskal-Wallis et Conover Iman pour l'entité BDLISA 515AB03 et le magnésium

5.2. ETUDE DE PARAMETRES INDICATEURS INDIRECTS D'AGES DES EAUX ET DE FONCTIONNEMENT HYDROGEOLOGIQUE

L'objectif est d'évaluer si le comportement hydrogéologique déduit du comportement des paramètres chimiques (paramètres les plus souvent mesurés, a priori conductivité, ions majeurs (dont nitrates)) et piézométriques complémentaires (variations saisonnières, pics...) permet de confirmer/infirmer les âges calculés à partir des gaz dissous.

5.2.1. Les éléments chimiques dissous

L'étude de la variabilité temporelle des éléments dissous a un même point a été réalisée dans l'optique de voir dans quelle mesure il était possible d'utiliser cette information pour confirmer une variation temporelle des âges apparents.

On a retenu des paramètres d'origine géogénique afin de ne tenir compte que des temps de séjours (échanges eau-roche) et dilution par des eaux de pluies ou rivières. Afin d'écartier toute origine anthropique des variations chimiques le sulfate, le chlorure, le nitrate, le sodium, le potassium ont été écartés. De même la conductivité, mélange de l'ensemble des paramètres géogéniques et anthropiques, n'a pas été retenue. Les paramètres a priori les moins influencés par des apports anthropiques sont le calcium et le magnésium. Le rapport Ca/Mg (en mg/l) a également été calculé. Les données sont reportées dans le tableau de synthèse. Le calcium et le magnésium, dans les contextes hydrogéologiques concernées, proviennent essentiellement des roches carbonates (calcaires, dolomie). Le rapport entre Ca et Mg dépend de la composition de la roche mère mais également de possibles processus d'échanges Ca-Mg lors de la réprécipitation de la calcite ou d'une substitution isomorphique au niveau des argiles des formations alluviales par exemple. L'augmentation des concentrations en magnésium peut être reliée à l'augmentation des temps de séjour du fait de ce jeu de cycles de réprécipitation/dissolution des espèces minérales privilégiant la mise en solution du magnésium et la précipitation du calcium (Brenot, 2013).

Pour certains points d'eau on ne dispose pas de ces données analysées le jour du prélèvement des eaux en vue de datation. Ces paramètres ne sont généralement pas variables significativement d'un prélèvement à l'autre. Ceci est dû au fait que l'équilibre chimique des eaux de recharge avec les eaux en place et les roches se fait rapidement (quelques jours à quelques semaines). Ces indicateurs ne semblent donc pas pertinents pour les gammes d'âges concernées (de 5 à 30 ans environ).

En effet le rapport Ca/Mg a pu être utilisé comme indicateur de temps de résidence pour des eaux d'âges plus contrastées, comme par exemple dans la nappe de la molasse du Bas-Dauphiné (Brenot, 2013) avec des âges allant de <1950 à l'actuelle.

5.2.2. Les pesticides

Un calcul systématique du taux de quantification et du taux de quantification au-dessus de 0,1 µg.l⁻¹ a été réalisé. L'information que l'on souhaitait tirer de cette donnée était de pouvoir de manière indirecte confirmer les modèles de fonctionnement et une présence importante d'eau « jeune ». La forte présence de pesticides jeunes pour un modèle de type piston et des eaux « anciennes » paraît peu compatible. Par contre, l'absence de pesticides ne peut pas être interprétée puisque l'on ne considère pas les pressions (application de pesticides sur l'AAC concernée). Dans certains cas (voir chapitre 6) il a été possible de tirer de l'information de cette approche, même si, une des limites forte est l'absence de connaissance sur les pesticides appliquées sur les AAC des captages.

5.2.3. La température

Deux traitements statistiques ont été réalisés sur le paramètre température ; les calculs de quantiles et moyenne afin d'évaluer la variabilité de ce paramètre au point et la corrélation croisée entre la température et la piézométrie (lorsqu'un piézomètre est disponible sur l'entité BDLISA concernées. Ainsi ont été reportés dans le tableau final un indicateur de la variabilité de la température (faible pour $<2,5^{\circ}\text{C}$, moyen entre $2,5$ et $4,5^{\circ}\text{C}$, forte entre $4,5^{\circ}$ et 6°C et très forte $>8^{\circ}\text{C}$) et les données sur le coefficient de corrélation et le déphasage entre température et niveau piézométrique. Les variations de températures sont généralement saisonnières. Pour un point, de forts écarts de température sont notés mais sont difficiles à interpréter. L'indication « pic » a été renseignée dans le tableau de synthèse.

Lorsque l'on observe une variation saisonnière de température de 8° à un point d'eau, ceci indique que la part d'eau jeune est importante. Dans ce cas on a recalculé les âges apparents en prenant une température moyenne de recharge correspondant à la valeur mesurée lors du prélèvement. On ne note pas de relation entre le temps de déphasage entre température et piézométrie et l'importance de la variabilité des températures.

6. Synthèse par point d'eau

Ce chapitre a pour objectif de synthétiser l'information complémentaire (approche statistique, indicateurs) et la proposition finale d'âge des eaux pour chacun des points étudiés. Cette information est complémentaire de celle disponible dans le fichier Excel joint au rapport et qui indique plus spécifiquement la variabilité des âges selon la période de prélèvement, les gaz utilisés, les modèles choisis, les incertitudes associées, ...

6.1. LAIVES – PUIITS DE LA VERNELLE

Alluvions – entité BDLISA 760AF19 - 05796X0046/AEP – Aire d'alimentation de captage (AAC) de 12,67 km²

Représentativité hydrogéochimique spatiale : entité hétérogène

Variabilité temporelle des paramètres hydrogéochimiques : variabilité forte température

Autres traceurs : présence de pesticides anciens et actuels – fort taux de quantification et valeurs > 0,1 mg.l⁻¹

Données ANTEAGROUP : Age interprété : 26-28 ans ± 8 ans - modèle exponentiel

Gamme d'âges recalculés : 11 ans en 2011 à 18-24 ans en 2017/2018 – avec un modèle exponentiel (EMM)

Remarque : modèle exponentiel compatible avec les autres traceurs – variabilité temporelle des âges apparents

6.2. VAIRE-ARCIER – SOURCE D'ARCIER

Calcaires karstifiés et fissurés – Entité BDLISA 515AF01 - 05031X0054/S – AAC de 101km²

Représentativité hydrogéochimique spatiale : un seul point sur l'entité

Variabilité temporelle des paramètres hydrogéochimiques : forte variabilité Mg, moyenne pour la température, déphasage piézomètre et température de 174j

Autres traceurs : présence de pesticides anciens et actuels – fort taux de quantification

Données ANTEAGROUP : Age interprété : 20% < 5 ans - modèle de mélange binaire

Gamme d'âges recalculés : 9 ans en 2011 et 17-20 ans pour 2017 avec un - modèle EPM

Remarque : variabilité temporelle et modèle conceptuel interprétatif compatible avec autres traceurs

6.3. ISSANS – SOURCE DE LA BEAUMETTE

Calcaires karstifiés et fissurés – Entité BDLISA 515AB03 - 04437X0012/S– AAC de 17,6 km²

Représentativité hydrogéochimique spatiale : hétérogénéité sur l'entité

Variabilité temporelle des paramètres hydrogéochimiques : faible variation de la température, pas de déphasage piézomètre-température

Autres traceurs : présence de pesticides anciens et actuels – fort taux de quantification

Données ANTEAGROUP : Age : 26 ans \pm 5 ans par modèle piston

Gamme d'âges recalculés : 6-8 ans en 2011 et 2012 avec un modèle exponentiel – difficulté pour dater les eaux en 2017 car différences d'âges entre traceurs

Remarque : variabilité temporelle et modèle compatible avec autres traceurs – Ambiguïté des âges en 2017

6.4. MACENANS – FONTAINE DU CRIBLE

Calcaires karstifiés et fissurés – Entité BDLISA 515AB03 - 04741X0028/S – AAC de 14,75 km²

Représentativité hydrogéochimique spatiale : hétérogénéité sur l'entité

Variabilité temporelle des paramètres hydrogéochimiques : faible variation de la température, déphasage piézométrie-température de 10 jours

Autres traceurs : très peu de données

Données ANTEAGROUP : Age : 28-31 ans \pm 3 ans - modèle piston

Gamme d'âges recalculés : 5-7 ans en 2012 avec un modèle piston – 16-18 ans datation 2017 en EPM

Remarque : Datation 2017 plus fiable

6.5. SAINT-DIZIER L'EVEQUE – SOURCE DU VAL

Calcaires karstifiés et fissurés – Entité BDLISA 515AB01 - 04752X0012/S – AAC de 5,1 km²

Représentativité hydrogéochimique spatiale : 1 seul point sur l'entité

Variabilité temporelle des paramètres hydrogéochimiques : faible variation de la température, et Ca-Mg

Autres traceurs : pesticides anciens et actuels mais peu de données

Données ANTEAGROUP : Age : 26-28 ans \pm 14 ans - modèle piston

Gamme d'âges recalculés : 5-6 ans en 2012 avec un modèle exponentiel – 10-16 ans datation 2017 en EMM

Remarque : Variation temporelle des âges

Il n'est pas sûr que ce soit le même point d'eau qui ait été prélevé en 2011 et 2017

6.6. GRANDVILLARS – PUIITS DE GRANDVILLARS

Alluvions – Entité BDLISA 760AB19 - 04446X0060/P – surface de l'AAC non connue

Représentativité hydrogéochimique spatiale : bonne représentativité

Variabilité temporelle des paramètres hydrogéochimiques : très forte variation de la température

Autres traceurs : pesticides anciens et métabolites de pesticides actuels

Données ANTEAGROUP : Age : 50% eau < 5 ans - modèle de mélange binaire

Gamme d'âges recalculés : 6 – 13 ans avec un modèle exponentiel

Remarque : Tests avec température variable mais les estimations restent très incertaines

6.7. VILLIERS-LES-APREY – SOURCE VILLE-BAS BAISSÉY

Calcaires karstiques – Entité BDLISA 139AO05 - 04077X0025/SAEP2 – AAC de 0,57 km²

Représentativité hydrogéochimique spatiale : hétérogénéité

Variabilité temporelle des paramètres hydrogéochimiques : forte variation de la température – déphasage température/piézométrie de 100j

Autres traceurs : présence AMPA et isoproturon (métabolite et récent)

Données ANTEAGROUP : Age : 24-29 ans ± 15 - modèle piston

Gamme d'âges recalculés : 4-8 ans en 2014, 7-15 ans en HE 2017 et 16-21 ans en BE 2017 avec un modèle exponentiel – gamme d'âge important du fait incompatibilité entre traceurs

Remarque : Modèle piston possible également car très petite AAC – Variabilité saisonnière des âges – Age plus importants en basses eaux qu'en hautes eaux

6.8. BAISSÉY – SOURCE CHEMIN DE PERROGNEY

Calcaires karstiques – Entité BDLISA 139AO05 - 04077X0029/SAEP4 – AAC de 0,57 km²

Représentativité hydrogéochimique spatiale : hétérogénéité

Variabilité temporelle des paramètres hydrogéochimiques : forte variation de la température

Autres traceurs : présence isoproturon – très peu de mesures

Données ANTEAGROUP : Age : 24 ± 15 ans - modèle piston

Gamme d'âges recalculés : 4-9 ans en 2014, 8-14 ans en HE 2017 et 16-21 ans en modèle BE 2017 avec un modèle exponentiel - rang d'âge important du fait incompatibilité entre traceurs

Remarque : Variabilité saisonnière des âges – Age plus importants en basses eaux qu'en hautes eaux – Identique point eau 04077X0025/SAEP2

6.9. LEUCHEY – SOURCE DU BOIS BAGNEUX

Calcaires karstiques – Entité BDLISA 139AO05 - 04077X0030/SAEP5 – AAC de 0,26 km²

Représentativité hydrogéochimique spatiale : hétérogénéité

Variabilité temporelle des paramètres hydrogéochimiques : variation moyenne de la température – déphasage entre température et piézométrie de 100 jours

Autres traceurs : fort taux de quantification de pesticides d'usage ayant démarré il y a qqs dizaines d'années

Données ANTEAGROUP : Age : 35 à 50% eau <5 ans - modèle de mélange binaire

Gamme d'âges recalculés : 4-9 ans en 2014, 15 ans en HE 2017 et 15-34 ans en BE 2017 avec un modèle exponentiel

Remarque : Malgré une certaine divergence entre les âges donnés par les divers traceurs il est évident qu'il y a une variabilité saisonnière des âges. 2014 est d'âges plus récent. Ceci se note directement à partir des concentrations en gaz dissous également. Ceci est valable pour tous les points de l'entité hydrogéologique 139AO05 (Illustration 21).

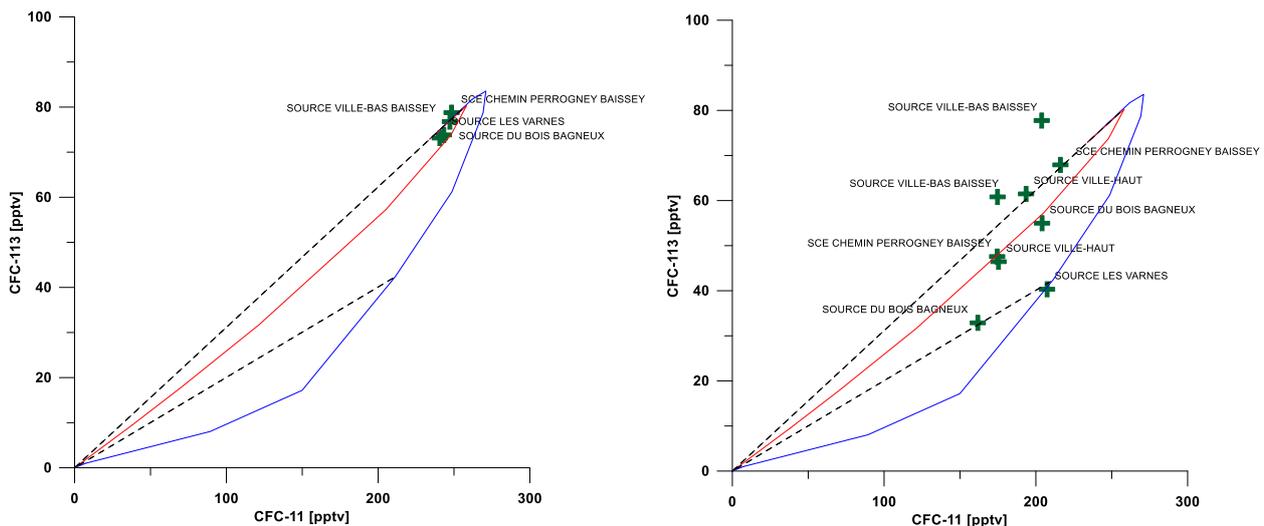


Illustration 21 : Concentrations en CFC-113 et CFC-11 des points d'eau de l'entité BDLISA 139AO05, à gauche pour 2014 et à droite pour 2017 (les courbes correspondent aux modèles piston en bleu, exponentiel en rouge et mélange binaire en noir)

6.10. GENLIS – PUIITS DE GENLIS

Alluvions – Entité BDLISA 760AF09 - 05003X0005/AEP – AAC de 3,45 km²

Représentativité hydrogéochimique spatiale : représentatif

Variabilité temporelle des paramètres hydrogéochimiques : Très forte variation de température – déphasage température/piézométrie de 20 jours

Autres traceurs : taux de quantification élevé pour imidaclopride d'usage à partir de 1992 mais pas d'usages grandes cultures

Données ANTEAGROUP : Age : 85% eau de 10 ans - modèle de mélange binaire

Gamme d'âges recalculés : 9-15 ans avec un modèle exponentiel

Remarque : des températures de recharge correspondant aux températures à la date du prélèvement ont été testées. Dans ce cas on note un âge plus jeune pour 2012 que pour 2017

6.11. VILLIERS-LES-APREY – SOURCE VILLE-HAUT BAISEY

Calcaires karstiques – Entité BDLISA 139AO05 - 04077X0037/SAEP – AAC de 0,21 km²

Représentativité hydrogéochimique spatiale : hétérogénéité

Variabilité temporelle des paramètres hydrogéochimiques : variation moyenne de la température – déphasage température/piézométrie de 170 jours

Autres traceurs : absence de micropolluants >LQ

Données ANTEAGROUP : Age : 29 ± 5 ans - modèle piston

Gamme d'âges recalculés : 12-17 ans en HE2017 et 15-21 ans en BE 2017 en modèle exponentiel

Remarque : Le modèle piston est possible en n'utilisant que 2 traceurs et donnerait un âge d'une trentaine d'année – eaux relativement anciennes avec part d'eau jeune faible

6.12. AISEREY – PUIITS DE LA RACLE

Alluvions anciennes – Entité BDLISA 760AF13 - 05006X0004/PUIITS – AAC de 8 km²

Représentativité hydrogéochimique spatiale : 1 seul point sur l'entité

Variabilité temporelle des paramètres hydrogéochimiques : faible variation de température mais quelques pics

Autres traceurs : Fort taux de quantification de pesticides actuels et métabolites

Données ANTEAGROUP : Age : 21 ans ± 5 ans - modèle exponentiel

Gamme d'âges recalculés : 9-16 ans avec un modèle exponentiel

Remarque : variabilité des âges CFC pour 2017 et forte incertitude sur datation de 2012. Modèle exponentiel compatible avec forte présence de micropolluants. Sans doute arrivée rapide d'une part d'eau récente expliquant des pics de température et présence de métolachlore à concentrations > 0,1 µg.l⁻¹ (by pass ?)

6.13. TAVAUX – PUIITS DE RECEPAGE

Alluvions – Entité BDLISA 505AA02 - 05278X1003/CC – AAC de 6,8 km²

Représentativité hydrogéochimique spatiale : hétérogénéité

Variabilité temporelle des paramètres hydrogéochimiques : forte variation de température – possible influence du cours d'eau – déphasage entre température et piézométrie de 100 jours

Autres traceurs : Fort taux de quantification de pesticides actuels et métabolites + molécules > 0,1 µg.l⁻¹.

Données ANTEAGROUP : Age : 20% eau < 5 ans - modèle de mélange binaire

Gamme d'âges recalculés : 24-26 ans en BE 2017 et 9-16 ans en HE 2017 avec un modèle exponentiel

Remarque : variabilité saisonnière des âges en 2017 compatible avec des apports variables d'eau de surface – De même l'impossibilité de datation pour BE 2017 et forte incertitude sur datation de 2012. Modèle exponentiel compatible avec forte présence de micropolluants. Sans doute arrivée rapide d'une part d'eau expliquant des pics de température et présence de métolachlore à concentrations > 0,1 µg.l⁻¹.

6.14. BAISSEY – SOURCE LES VERNES

Calcaires karstiques – Entité BDLISA 139AO05 - 04077X0004/SAEP1 – AAC de 0,29 km²

Représentativité hydrogéochimique spatiale : hétérogénéité

Variabilité temporelle des paramètres hydrogéochimiques : variation moyenne de la température – déphasage température et piézométrie de 80 jours

Autres traceurs : Fort taux de quantification de pesticides et dépassement de 0,1 µg.l⁻¹ pour des molécules d'usage ancien (1974) et toujours actuel

Données ANTEAGROUP : Age : BE2017 20% eau <5 ans et HE2017 75% eau <5 ans - modèle de mélange binaire

Gamme d'âges recalculés : 5-10 ans en 2014, 16-21 ans en HE 2017 et 19-29 ans en BE 2017 en modèle exponentiel

Remarque : Variabilité saisonnière des âges – Age plus importants en basses eaux qu'en hautes eaux 2014

6.15. CHAMPLITTE – SOURCE DU VIVIER

Calcaires karstiques – Entité BDLISA 513AC00 - 04402X0005/S – AAC de 29,5 km²

Représentativité hydrogéochimique spatiale : hétérogénéité

Variabilité temporelle des paramètres hydrogéochimiques : variation moyenne de la température – déphasage température et piézométrie de 80 jours – variabilité du calcium

Autres traceurs : Fort taux de quantification de plusieurs pesticides et taux de dépassement de 0,1 µg.l⁻¹ pour quelques molécules actuelles et métabolites

Données ANTEAGROUP : Age : 25 ± 14 ans - modèle piston

Gamme d'âges recalculés : 5-12 ans en BE 2011, 14-19 ans en BE 2017, 10-14 ans en HE 2017 et 16-21 ans en HE 2018 en modèle exponentiel

Remarque : Une variation saisonnière des âges est possible mais étant donné l'incertitude des âges ceci ne peut être démontré.

6.16. BONLIEU-SUR-ROUBION – PUIITS DES REYNIERES

Alluvions – Entité BDLISA 750BE00 - 08663X0050/P – AAC de xx km²

Représentativité hydrogéochimique spatiale : représentatif (mais seulement 3 points)

Variabilité temporelle des paramètres hydrogéochimiques : forte variation de la température – déphasage température et piézométrie de 126 jours

Autres traceurs : Quelques pesticides détectés – présence de sous-produits de la chloration (pb possibles avec CFC)

Données ANTEAGROUP : Age : 14 ± 11 ans - modèle exponentiel

Gamme d'âges recalculés : 8-16 ans - modèle PEM

Remarque : Difficulté de datation pourrait être due en partie à la chloration.

6.17. VAUVERT – PUIITS DES BANLENES

Alluvions – Entité BDLISA 647AA01 - 09914X0039/P – AAC de 30,3 km²

Représentativité hydrogéochimique spatiale : hétérogénéité

Variabilité temporelle des paramètres hydrogéochimiques : forte variation de la température

Autres traceurs : Taux de quantification élevée de pesticides et métabolites anciens (interdiction <2003)

Données ANTEAGROUP : Age : 20 ± 12 ans - modèle piston

Gamme d'âges recalculés : 6-22 ans – modèle exponentiel

Remarque : Pesticides anciens uniquement – modèle piston possible mais EPM donne meilleur âge si l'on considère le CFC-11 uniquement – 15-22 ans

6.18. MONTBELLET – PUIITS 2

Alluvions – Entité BDLISA 760AA10 - 06027X0015/AEP – AAC de 8,7 km²

Représentativité hydrogéochimique spatiale : moyennement

Variabilité temporelle des paramètres hydrogéochimiques : variation moyenne de la température – déphasage température et piézométrie de 179 jours – influence cours d'eau possible

Autres traceurs : Taux de quantification élevé de pesticides et métabolites anciens (interdiction <2003) et métolachlore ESA

Données ANTEAGROUP : Age : 15 à 35% eau <5 ans - modèle de mélange binaire

Gamme d'âges recalculés : plus de 50% d'eau de plus de 25 ans - modèle de mélange binaire

Remarque : le fait de n'avoir pas de pesticides actuels pourrait soit être dû à l'absence d'usage (ou réduction) soit absence ou faible part d'eau jeune. On favorisera un modèle mélange sans part d'eau <5 ans

6.19. REDESSAN – PUIITS MAS DE CLERC

Alluvions – Entité BDLISA 647AA01 - 09653X0235/S1 – AAC de 5,3 km²

Représentativité hydrogéochimique spatiale : hétérogénéité

Variabilité temporelle des paramètres hydrogéochimiques : faible variation de la température – déphasage température et piézométrie de 113 jours

Autres traceurs : Taux de quantification élevé de pesticides et métabolites anciens (interdiction <2004)

Données ANTEAGROUP : Age : 46 ± 20 ans - modèle exponentiel

Gamme d'âges recalculés : 29-34 ans pour HE 2018, 15-16 ans BE2018 et BE 2011 de 7 ans - modèle exponentiel

Remarque : Forte incertitude car ce ne sont pas les mêmes gaz utilisés pour les différentes périodes. Possible variabilité saisonnière mais difficile à confirmer du fait des difficultés de datation.

6.20. CASES DE PENE – FORAGE DE CASES DE PENE

Calcaires karstifiés – Entité BDLISA 681AM00 - 10903X0026/PENE – AAC de 19,2 km²

Représentativité hydrogéochimique spatiale : moyennement représentatif

Variabilité temporelle des paramètres hydrogéochimiques : faible variation de la température – déphasage température et piézométrie de 74 jours – variabilité du calcium moyenne – alimentation cours d'eau possible

Autres traceurs : Taux de quantification élevé de pesticides et métabolites anciens (interdiction <2004)

Données ANTEAGROUP : Age : 28 ± 3 ans - modèle piston

Gamme d'âges recalculés : 7 – 15 ans – modèle piston

Remarque : Age plus jeunes qu'estimation ANTEAGROUP sans doute du fait de favoriser les concentrations l'adéquation traceurs atmosphériques/traceurs de l'eau à la baisse des concentrations en CFC dans l'atmosphère. Le SF₆ ne permet pas de trancher.

6.21. AUREL – SOURCE DE LA NESQUE

Calcaires karstifiés – Entité BDLISA 565AF01 - 09165X1006/HY – AAC de 1,6 km²

Représentativité hydrogéochimique spatiale : hétérogénéité

Variabilité temporelle des paramètres hydrogéochimiques : variation moyenne de la température

Autres traceurs : Taux de quantification élevé d'un métabolite de pesticide interdit depuis 2009

Données ANTEAGROUP : Age : 75% d'eau < 5 ans - modèle de mélange binaire

Gamme d'âges recalculés : 17 – 20 ans avec modèle exponentiel

Remarque : L'âge de la part d'eau « jeune » est plutôt estimé à plus de 10 ans en utilisant le modèle mélange. Ceci serait plus en adéquation avec l'absence de molécules d'usage actuel

6.22. SERMERIEU – Puits DE SERMERIEU

Alluvions – Entité BDLISA 760AA12 - 07241X0014/483D – AAC de 4,2 km²

Représentativité hydrogéochimique spatiale : hétérogénéité

Variabilité temporelle des paramètres hydrogéochimiques : variation moyenne de la température – déphasage entre température et piézométrie de 103 jours – variabilité moyenne du calcium

Autres traceurs : Taux de quantification moyen à faible pour des molécules anciennes et métabolites – présence de métolachlore ESA

Données ANTEAGROUP : Age : 40 ± 10 ans – modèle exponentiel

Gamme d'âges recalculés : 13 – 29 ans pour les eaux de 2018 et 8-17 ans pour les eaux de 2011 et 2012 avec un modèle exponentiel

Remarque : Le recalcul donne des âges plus jeunes sans doute du fait de l'utilisation des concentrations post protocole de Montréal. La variabilité saisonnière ne peut être confirmée du fait du rang d'âge important pour chacune des estimations

6.23. COMMENTAIRES SUR LES RECALCULS DES POINTS SELECTIONNES

On note souvent une différence d'âges apparents entre la campagne de 2011 et celles de 2017 et 2018. Des conditions hydrogéologiques différentes pourraient expliquer ces différences d'âges. En France il existe peu de suivi à long termes d'âge des eaux. Toutefois, le suivi d'une point d'eau de Martinique montre cette évolution saisonnière des âges apparents (Gourcy, non publié). Une simple corrélation entre le niveau d'eau (ou l'IPS indicateur piézométrique standard) et l'âge ne peut toutefois pas être fait. L'âge est plus le reflet d'un état hydrogéologique général (hautes eaux, basses eaux à l'échelle annuelle ou interannuelle, ou niveau bas à l'échelle de plusieurs années, variabilité des sollicitations, etc.).

Les traceurs chimiques sont peu utilisables du fait du faible nombre de données disponibles et de la forte incertitude sur les données chimiques (une incertitude de 10% pour un paramètre à faible concentration comme le magnésium est attendue).

L'utilisation de la présence de molécules (comme les pesticides) d'usage uniquement ancien ou récente semble une bonne piste de travail. Toutefois il est nécessaire de confronter les données d'autorisation et interdiction d'usage (ce qui a été utilisé dans cette étude, source <http://matphyto.acta-informatique.fr/Accueil>) avec les usages réels sur les AAC. Ceci permettrait d'affiner les périodes d'utilisation et donc de mieux confronter les données de concentration et détection dans les eaux souterraines avec les modèles et gamme d'âge proposés.

On note un fort déphasage entre la température et la piézométrie pour des eaux souterraines dont la part jeune est faible.

Pour deux points d'eau on note une différence de gamme d'âge entre l'étude ANTEAGROUP et cette expertise. Le choix des âges lorsqu'on se retrouve dans la position ambiguë de la croissance ou la décroissance des concentrations de gaz dans l'atmosphère en sont sans doute la raison.

Pour les autres points d'eau, si l'on se réfère aux estimations initiales (colonne AR du tableau de synthèse), les âges recalculés sont en accord avec les estimation ANTEAGROUP.

Dans l'étude ANTEAGROUP, les estimations initiales et leurs incertitudes sont ensuite traduites en un âge « moyen » puis classées en grandes catégories. Ces deux étapes augmentent fortement l'incertitude de l'estimation des âges d'autant plus que les différents types d'âges, correspondant aux différents modèles sont également moyennés. Ainsi, pour un point d'eau avec fonctionnement hydrogéologique de type mélange, 75% d'eau de moins de 5 ans devient un « âge apparent » de 15-20 ans. De même, pour un point d'eau avec fonctionnement de type exponentiel, 14 ± 11 ans devient un « âge apparent » de 10-15 ans. On pourrait proposer, une fois les gaz utilisables sélectionnés en utilisant le modèle le plus approprié au contexte hydrogéologiques, estimer les gammes d'âges en utilisant un seul et unique modèle (modèle exponentiel par exemple). Ceci permettrait de rendre les âges plus comparables entre eux. Dans tous les cas, du point de vue de la méthode, il est préférable de procéder à un choix éclairé de la fonction de transfert utilisée, certains types de fonction de transfert étant destinés à des configurations d'aquifères bien identifiées.

Diverses études de recherche appliquée se sont penchées sur le problème de mettre sur un même pied des âges provenant de modèles différents. Dans le cadre de l'étude des AAC il serait peut-être important de mettre en avant l'importance de la part d'eau jeune (actuel).

De même il convient de prendre en compte la variabilité saisonnière, traduisant le fait qu'à certaines périodes, la part relative d'eaux jeunes par rapport à un flux moins rapide peut être significative.

7. Conclusions

L'expertise a permis l'interprétation de l'estimation des âges apparents de 22 points d'eau sur tout le bassin Rhône–Méditerranée utilisant les mêmes paramètres d'entrée. Les points d'eau à dater sont tous situés dans des contextes alluvionnaires ou karstiques. Ces deux contextes présentent comme particularité la possibilité de différents flux d'âge différents et, pour les alluvions, de conditions de réduction locales. La datation par les gaz CFC et SF₆ est, de part ces contextes, plus délicates.

De même, les concentrations des gaz anthropiques dissous se situent presque toutes dans des gammes pour lesquels il existe une ambiguïté d'interprétation entre la phase d'augmentation des gaz dans l'atmosphère (avant le protocole de Montréal) et la diminution des concentrations du fait de la réduction de l'usage des CFC. Si la totalité des traceurs ne peut être utilisée du fait de contamination ou dégradation alors un doute subsiste sur l'estimation final des temps de renouvellement.

Ainsi on a cherché à utiliser d'autres paramètres chimiques, simple d'accès, afin de pouvoir confirmer les gammes d'âge obtenus par utilisation des traceurs gazeux. Si les données des éléments majeurs dissous (dont Ca et Mg) semblent peu prometteurs du fait d'un rapide rééquilibrage eau-roche au sein de l'aquifère, la variabilité de la température semble être un bon indicateur d'une certaine rapidité de renouvellement de la part jeune des eaux souterraines. Des investigations supplémentaires seraient à prévoir pour permettre d'aller plus loin dans l'utilisation de ce paramètre.

L'utilisation des pesticides, pour des taux de détection et taux de dépassement d'une valeur (dans le cas présent 0,1 µg.l⁻¹) en tenant compte des périodes d'usage des pesticides semble intéressante. Toutefois, dans le cadre de l'expertise, l'absence de connaissance sur les pratiques spécifiques des AAC étudiées, constitue une limite à une interprétation qui pourrait être plus fine et contextualisée.

Dans des contextes délicats comme des eaux relativement récentes avec de nombreuses possibilités de contamination et/ou dégradation des gaz dissous, le travail initial de sélection des gaz les plus fiables est primordial avant de passer à la phase d'estimation des âges apparents.

La question de la représentation sur un même plan d'âge apparents correspondant à des fonctionnements hydrogéologiques différents doit également être posé. On pourrait proposer, une fois les gaz utilisables sélectionnés en utilisant le modèle le plus approprié au contexte hydrogéologiques, estimer les gammes d'âges en utilisant un seul et unique modèle (modèle exponentiel par exemple) de sorte à interpréter les concentrations en gaz associées à un point. Ceci permettrait de rendre les estimation d'âges apparent plus comparables entre eux entre les différentes campagnes de mesures.

L'analyse des différentes campagnes de prélèvements dans le temps, entre 2011, 2012, 2014, 2017 et 2018, montre indéniablement une variabilité du signal capturé. Il n'est pas toujours facile de conclure sur les raisons de cette variabilité du fait des limitations inhérentes à la méthode d'interprétation des traceurs gazeux : dégradation, contamination, part de l'excès d'air etc... En revanche, l'hypothèse que des effets de non stationnarité s'impriment sur le signal mesuré est très plausible. Lorsque la distribution des temps de séjour décrit une participation importante de lignes de courant 'rapides' (cas du modèle exponentiel) c'est-à-dire présentant de fortes

concentrations en gaz, la variabilité des conditions hydrauliques peut expliquer une variabilité forte du signal mesuré. Lorsque les lignes de courant rapides contribuent beaucoup au flux : concentrations en gaz plus fortes. Lorsqu'elles contribuent moins : signature de lignes de courant plus 'longues' : concentrations plus faibles.

Toutes les interprétations conduites l'ont été selon l'hypothèse de conditions hydrauliques caractéristiques d'un état permanent. Des modèles prenant en compte des effets 'transitoires', notamment en raison d'évolution des volumes captés pourraient être mis en œuvre. Cela repose évidemment sur une connaissance assez fine des sollicitations au cours des années passées, ou à des méthodes de reconstitution de ces volumes.

Sur la méthode enfin, il faut noter que l'estimation des 'âges' de l'eau repose en général sur un ensemble d'indices. La structure de l'aquifère d'une part, qu'il est possible de traduire par le choix d'une ou plusieurs fonctions de transfert équivalente. Le fonctionnement d'autre part, qui doit décrire le lieu et la modalité de la recharge, les type d'écoulements et leur éventuelle diversité, et les processus d'acquisition de la minéralisation, et des contaminants.

Ces sont ces indices qui doivent permettre d'élaborer un modèle conceptuel cohérent, que les méthodes d'estimation de « l'âge de l'eau » viendront préciser. Il s'agit ainsi d'essayer de broser un ensemble cohérent, prenant en compte l'ensemble des éléments : type d'écoulement et choix d'une fonction de transfert, acquisition de la minéralisation, variabilité du signal, etc.

8. Bibliographie

- Beyer M., Jackson B., Daughney C., Morgenstern U., Norton K.** (2016). Use of hydrochemistry as a standalone and complementary groundwater age tracer. *Journal of Hydrology* 543:127-44.
- Blavoux B., Burger A., Chauve P., Mudry J.** (1979) – Utilisation des isotopes du milieu à la prospection hydrogéologique de la chaîne karstique du Jura. *Revue de géologie dynamique et de géographie physique*. Vol 1 (4) :295-306.
- Brenot A.** (2013). Acquisition de connaissances sur la nappe de la molasse pour le département de l'Isère (38). Phase 2 - Acquisition de nouvelles connaissances et synthèse. Rapport final. BRGM/RP-62154-FR
- Busenberg E., Plummer L.N.** (2000) - Dating young groundwater with sulphurhexafluoride – Natural and anthropogenic sources of sulphurhexafluoride, *Water Resour. Res.* Vol. 36, 3011-3030.
- Chambers L.A., Goody D.C., Binley A.M.** (2018) – Use and application of CFC-11, CFC-12, CFC-113 and SF₆ as environmental tracers of groundwater residence time: a review. *Geoscience Frontiers*, xx, 1-10.
- Darling W.G., Goody D.C., MacDonald A.M., Morris B.L.** (2012) – The practicalities of using CFCs and SF₆ for groundwater dating and tracing. *Applied Geochemistry*, 22, 1688-1697.
- Delbart C.** (2013) - Variabilité spatio-temporelle du fonctionnement d'un aquifère karstique du Dogger : suivis hydrodynamiques et géochimiques multifréquences ; traitement du signal des réponses physiques et géochimiques. Thèse de l'Université Paris Sud - Paris XI.
- Delbart C., Barbecot F., Valdes D. et al.** (2014). Investigation of young water inflow in karst aquifers using SF₆-CFC-3H/He-85Kr-39Ar and stable isotope components. *Applied Geochemistry* 50:164-76.
- Eberts S.M., Bohlke J.K., Kauffman I.J., Jurgens B.C.** (2012) – Comparison of particule-tracking and lumped-parameter age-distribution models for evaluating vulnerability of production wells to contamination. *Hydrogeology Journal*, 20, 263-282.
- Engesgaard P., Højberg A.L., Hinsby K. et al.** (2004). Transport and Time Lag of Chlorofluorocarbon Gases in the Unsaturated Zone, Rabis Creek, Denmark. *Vadose Zone Journal* 3(November 2015):1249
- Gourcy L., Lopez B.** (2012) - Estimation des tendances d'évolution des concentrations en nitrates et datation des eaux souterraines sur le bassin Rhône-Méditerranée. Rapport BRGM/RP-61123-FR
- Gourcy L., Lopez B., Baran N., Surdyk N.** (2013) – Estimation des tendances d'évolution des concentrations en nitrate et pesticides des eaux souterraines sur le bassin Rhône-Méditerranée. Rapport final. BRGM/RP-62461-FR, 261 p.
- Gourcy L.** (2014) – Interprétation des données de CFC et SF₆ pour la datation des eaux de 6 sources de Haute-Marne. Rapport BRGM/RP-63524-FR. 18 p.

Happell J.D., Price R.M., Top Z., Swart P.K. (2003). Evidence for the removal of CFC-11, CFC-12, and CFC-113 at the groundwater-surface water interface in the Everglades. *Journal of Hydrology* 279(1-4):94-105

Hinsby K., Højberg A.L., Engesgaard P. et al. (2007). Transport and degradation of chlorofluorocarbons (CFCs) in the pyritic Rabis Creek aquifer, Denmark. *Water Resources Research* 43(10):1-15.

IAEA (2006) – Use of Chlorofluorocarbons in hydrology: A guidebook. STI/PUB 1238, IAEA, Vienna.277p.

Long A.J., Putnam L.D. (2009). Age-distribution estimation for karst groundwater: Issues of parameterization and complexity in inverse modeling by convolution. *Journal of Hydrology* 376(3-4):579-88.

Lopez B. (2009) – Le processus de transfert d'eau et de dioxyde de carbone dans l'épikarst. Thèse de l'Université de Bordeaux I. 349p.

Maloszewski P., Zuber A. (1996). Manual on mathematical models in isotope hydrology ». *International Atomic Energy Agency Technical Report*

Maloszewski P., Zuber A. (1994). Manual on lumped parameter models used for the interpretation of environmental tracer data in groundwaters. *International Atomic Energy Agency Technical Report*

Prinn R. G., Weiss R.F., Krummel P.B et al. (2016), The ALE / GAGE AGAGE Network, Carbon Dioxide Information Analysis Center (CDIAC), Oak Ridge National Laboratory (ORNL), U.S. Department of Energy (DOE).

Prinn R. G., Weiss R.F., Fraser P.J. et al. (2000), A history of chemically and radiatively important gases in air deduced from ALE/GAGE/AGAGE, *J. Geophys. Res.*, 105(D14), 17751-17792. Website: <http://agage.mit.edu>.

Suckow A. (2014). The age of groundwater - Definitions, models and why we do not need this term. *Applied Geochemistry* 50:222-30

Turnadge C., Smerdon B.D. (2014). A review of methods for modelling environmental tracers in groundwater: Advantages of tracer concentration simulation. *Journal of Hydrology* 519(PD):3674-89

von Rohden C., Kreuzer A., Zongyu C., Aeschbach-Hertig W. (2010). Accumulation of natural SF₆ in the sedimentary aquifers of the North China Plain as a restriction on groundwater dating. *Isotopes Environ. Health Studies* 46, 279–290.

Weissmann G.S., Zhang Y., LaBolle E.M., Graham E.F. (2002). Dispersion of groundwater age in an alluvial aquifer system. *Water Resources Research* 38(10).

Wilson G. B., McNeill G. W. (1997). Noble gas recharge temperatures and the excess air component. *Appl. Geochem.*12(6), 747–762.



Centre scientifique et technique
Direction Eau, Environnement, Ecotechnologies
3, avenue Claude-Guillemin
BP 36009 – 45060 Orléans Cedex 2 – France – Tél. : 02 38 64 34 34
www.brgm.fr