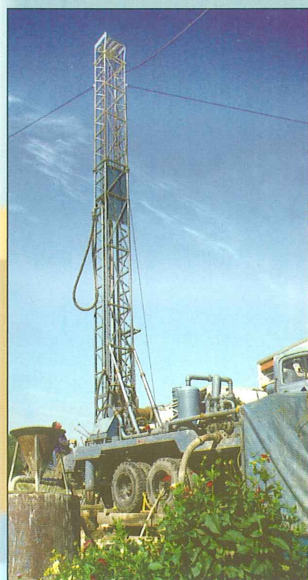


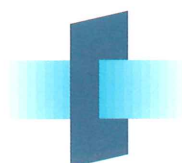


Valorisation des méthodes isotopiques pour les questions pratiques liées aux eaux souterraines

Isotopes de l'oxygène et de l'hydrogène

David Etcheverry

Berichte des BWG, Serie Geologie – Rapports de l'OFEG, Série Géologie – Rapporti dell'UFAEG, Serie Geologica
No 2 – Berne, 2002



Bundesamt für Wasser und Geologie **BWG**
Office fédéral des eaux et de la géologie **OFEG**
Ufficio federale delle acque e della geologia **UFAEG**
Uffizi federal per aua e geologia **UFAEG**
Federal Office for Water and Geology **FOWG**

Eidgenössisches Departement für Umwelt, Verkehr,
Energie und Kommunikation
Département fédéral de l'environnement, des transports,
de l'énergie et de la communication
Dipartimento federale dell'ambiente, dei trasporti,
dell'energia e delle comunicazioni

Valorisation des méthodes isotopiques pour les questions pratiques liées aux eaux souterraines

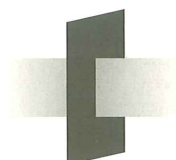
Isotopes de l'oxygène et de l'hydrogène

David Etcheverry¹

Berichte des BWG, Serie Geologie – Rapports de l'OFEG, Série Géologie – Rapporti dell'UFAEG, Serie Geologica
No 2 – Berne 2002

¹ Laboratoire de géologie de l'ingénieur
et de l'environnement, Ecole polytechnique
fédérale de Lausanne

Adresse actuelle:
D. Etcheverry, dr ès sc., hydrogéologue
Avignon, France



Bundesamt für Wasser und Geologie **BWG**
Office fédéral des eaux et de la géologie **OFEG**
Ufficio federale delle acque e della geologia **UFAEG**
Uffizi federal per aua e geologia **UFAEG**
Federal Office for Water and Geology **FOWG**

Impressum

Editeur	Office fédéral des eaux et de la géologie, OFEG
ISSN / ISBN	ISSN 1660-0754 / ISBN 3-906723-53-4
Tirage	350
Source à mentionner	Rapp. OFEG, Sér. Géol. 2 (2002)
Photos de couverture	L. Jemelin, OFEG (à droite) ; J.-P. Tripet, OFEG (à gauche)
Internet	Ce rapport est disponible en format PDF sous www.bwg.admin.ch
Diffusion	OFCL, Diffusion des publications, CH-3003 Berne, www.bbl.admin.ch/bundespublikationen
N° de commande	804.602 f
Copyright	© OFEG, Berne-Ittigen 2002
11.02 350 82904	

Préface

Préface de l'éditeur

Le Service géologique national (SGN, OFEG) a mis sur pied un réseau d'observation à long terme des isotopes dans le cycle de l'eau (deutérium, oxygène-18 et tritium), qu'il exploite depuis 1992. Les paramètres mesurés sont des éléments importants pour l'étude des processus environnementaux. Ils trouvent leur application dans divers domaines, par exemple études hydrogéologiques, prospection, gestion et protection des eaux souterraines, détermination de l'origine et de l'âge des eaux, études hydrologiques et climatologiques. La présente étude a été mandatée par le SGN au Laboratoire de géologie de l'ingénieur et de l'environnement de l'Ecole polytechnique fédérale de Lausanne (GEOLEP, EPFL ; Directeur : A. Parriaux, professeur). Son but est de montrer, par la présentation d'un certain nombre de cas concrets, quel est l'apport de la mesure des isotopes de l'oxygène et de l'hydrogène dans la résolution des questions pratiques liées aux eaux souterraines. Le rapport de l'étude a été remis au SGN en mai 1999. Il a fait, en 2001, l'objet d'une mise au point rédactionnelle en vue de sa publication. Cet ouvrage est destiné avant tout aux praticiens de l'eau souterraine, géologues ou ingénieurs. Il est également destiné aux représentants des administrations, aux enseignants et aux chercheurs.

Il convient de remercier ici l'auteur ainsi que les personnes qui, par leur compétence et leur engagement, ont permis la réalisation de cette étude. A. Parriaux, professeur, était responsable de la conduite des travaux pour le GEOLEP. J.-L. Michelot, du Laboratoire d'hydrologie et de géochimie isotopique de l'Université de Paris Sud, a bien voulu procéder à une lecture attentive du manuscrit. De la part du SGN, l'étude a été suivie par J.-P. Tripet, avec l'appui de M. Schürch et de F. Pasquier, hydrogéologue (Couvét).

L'auteur est seul responsable du contenu du texte et du choix des illustrations.

Vorwort des Herausgebers

Seit 1992 betreibt die Landesgeologie (LG, BWG) ein nationales Messnetz zur Beobachtung von Isotopen im Wasserkreislauf (Deuterium, Sauerstoff-18 und Tritium). Die gemessenen Parameter sind wichtige Elemente für das Studium von Umweltprozessen. Sie finden ihre Anwendung in unterschiedlichsten Gebieten, zum Beispiel in hydrogeologischen Untersuchungen und Forschungsprojekten, in Grundwasserschutz und -bewirtschaftung, bei der Herkunfts- und Altersbestimmung von Wässern, sowie in hydrologischen und klimatologischen Studien. Die LG hat das Laboratorium für Ingenieur- und Umweltgeologie der Eidgenössischen Technischen Hochschule von Lausanne (GEOLEP, ETHL; Direktor : Prof. A. Parriaux) beauftragt, die vorliegende Studie durchzuführen. Ziel war es, an Hand konkreter Anwendungsbeispiele zu zeigen, was Sauerstoff- und Wasserstoff-Isotopenmessungen zur Lösung von praktischen Fragen auf dem Gebiet Grundwasser beitragen können. Der Bericht wurde der LG im Mai 1999 abgegeben und 2001 für die Publikation redaktionell überarbeitet. Die vorliegende Publikation wendet sich vor allem an die hydrogeologische Praxis. Weiterhin sind Vertreter aus Verwaltung, Lehre und Forschung angesprochen.

Wir bedanken uns herzlichst beim Autor, sowie denjenigen Personen, die mit ihrer Kompetenz und ihrem Einsatz zur Realisierung der Studie beigetragen haben. Prof. A. Parriaux hat die Projektleitung seitens des GEOLEP inne gehabt. J.-L. Michelot des «Laboratoire d'hydrologie et de géochimie isotopique» der Universität von Paris Süd hat sich freundlicherweise zur Verfügung gestellt, den Bericht aufmerksam durchzusehen. J.-P. Tripet hat mit der Unterstützung von M. Schürch und von F. Pasquier (Hydrogeologe, Couvet) für die LG/BWG die Studie begleitet.

Der Autor ist alleine für den Inhalt des Berichtes und die Auswahl der Illustrationen verantwortlich.

Premessa dell'editore

Il servizio geologico nazionale (SGN, UFAEG) ha creato e gestisce dal 1992 una rete di osservazione a lungo termine degli isotopi (deuterio, ossigeno-18 e trizio) nel ciclo dell'acqua. I parametri misurati rappresentano degli elementi importanti nello studio dei processi ambientali. Questi sono utilizzati in vari ambiti come ad esempio negli studi idrogeologici, nella prospezione, gestione e protezione delle acque sotterranee, nel determinare l'origine e l'età delle acque, o ancora negli studi idrologici e meteorologici. Il SGN ha affidato lo studio al Laboratorio di Geologia Applicata ed Ambientale del Politecnico federale di Losanna (GEOLEP, EPFL, Direttore: A. Parriaux, Professore). Lo scopo dello studio è di mostrare, presentando alcuni casi concreti, l'apporto delle misure isotopiche dell'ossigeno e dell'idrogeno alla risoluzione di problemi pratici nel ramo delle acque sotterranee. Il rapporto è stato consegnato al SGN nel maggio 1999. Durante il 2001, una messa a punto redazionale è stata intrapresa in vista della sua pubblicazione. Questa produzione è destinata principalmente a geologi ed ingegneri esperti del ramo delle acque sotterranee, così come alle amministrazioni, agli insegnanti ed ai ricercatori.

Un ringraziamento particolare è indirizzato all'autore ed a coloro che, per la loro competenza ed il loro entusiasmo, hanno permesso la realizzazione di questo studio. Il Prof. A. Parriaux è stato responsabile, per conto del GEOLEP, della condotta dei lavori. J.-L. Michelot, del «Laboratoire d'hydrologie et de géochimie isotopique de l'Université de Paris Sud» ha proceduto ad un'attenta lettura del manoscritto. J.-P. Tripet ha seguito lo studio per conto del SGN, coadiuvato da M. Schürch e da F. Pasquier, idrogeologo (Couvét).

Soltanto l'autore è responsabile del contenuto del testo e della scelta delle illustrazioni.

Foreword of the editor

The Swiss Geological Survey (SGS, FOWG) has set up a long-term network for isotopes in the water cycle (deuterium, oxygen-18 and tritium), which is operating since 1992. The measured parameters are important elements for environmental processes studies. They find their application in different fields, for example hydrogeological studies, prospecting, groundwater protection and treatment, determination of groundwater origin and age, hydrological and climatological studies. The present study was mandated by the SGS to the Laboratory of Engineering and Environmental Geology at the Swiss Federal Institute of Technology Lausanne (GEOLEP; director: Prof. A. Parriaux). Its aim is to show, by presenting a few specific case examples, what is the contribution of hydrogen and oxygen isotope measurements for the solution of practical questions in the field of groundwater. The report of the study was submitted to the SGS on May 1999 and was reviewed for publication in 2001. This work is specifically important for geologists and engineers working in groundwater, as well as for authorities, teachers and researchers.

We would like to thank the author and those who have helped with their competence and engagement to proceed with this study. Prof. A. Parriaux was responsible for the supervision of the works at the GEOLEP. J.-L. Michelot of the «Laboratoire d'hydrologie et de géochimie isotopique» of the University of Paris South is also gratefully acknowledged for the thorough and positive review. J.-P. Tripet representing the SGS accompanied the study with the help of M. Schürch and of F. Pasquier, hydrogeologist (Couvét).

The author is alone responsible for the content and choice of illustrations.

Office fédéral des eaux et de la géologie
Le chef du Service géologique national



Peter Heitzmann, dr ès sc.

Résumé

Résumé

L'oxygène-18, le deutérium et le tritium sont les constituants intimes des molécules d'eau, et sont donc les traceurs idéaux des phénomènes liés au cycle de l'eau. Les deux premiers isotopes sont stables, et leur concentration varie à la suite des changements de phase de l'eau. Le tritium est, lui, radioactif. Ces propriétés sont à l'origine de la grande polyvalence des méthodes isotopiques.

Après avoir présenté rapidement les bases théoriques nécessaires à la compréhension du principe des méthodes isotopiques en hydrogéologie, ce rapport montre l'efficacité des méthodes mettant en jeu les isotopes de l'oxygène et de l'hydrogène en hydrogéologie pratique. De nombreux domaines d'application relatifs aux eaux souterraines sont abordés et illustrés par des exemples (exploitation et gestion des ressources, eaux thermales, hydrologie des horizons pédologiques, étude des relations entre eaux de surface et eaux souterraines, eaux contaminées, travaux souterrains, versants instables). Les aspects pratiques de la mise en oeuvre des méthodes isotopiques amènent naturellement à la nécessité d'un réseau d'observation à long terme à l'échelle nationale pour connaître l'évolution des isotopes dans le temps et pour différentes régions climatiques. Le Réseau fédéral suisse d'observation des isotopes dans le cycle de l'eau, mis sur pied à cet effet en 1992, donne les référentiels nécessaires aux études hydrogéologiques basées sur les isotopes de la molécule d'eau.

Zusammenfassung

Sauerstoff-18, Deuterium und Tritium sind Bestandteile des Wassermoleküls und somit ideale Tracer zur Beschreibung von Phänomenen des Wasserkreislaufes. Sauerstoff-18 und Deuterium sind stabile Isotope; ihre Konzentration variiert mit den Phasenänderungen des Wassers. Tritium ist radioaktiv. Diese Eigenschaften sind Grund für die vielseitige Anwendbarkeit von Isotopenmethoden.

Nach einer kurzen Darstellung der theoretischen Grundlagen für das Verständnis der Isotopenmethoden, zeigt dieser Bericht den Wert der auf den Sauerstoff- und Wasserstoffisotopen beruhenden Methoden für die praktische Hydrogeologie. Unterschiedlichste Anwendungsbereiche im Grundwasser werden mit Hilfe von Beispielen (Nutzung und Bewirtschaftung von Grundwasservorkommen, Thermalwässer, Bodenhydrologie, Studium der Wechselbeziehungen zwischen Oberflächen- und Grundwässern, kontaminierte Wässer, Untergrundarbeiten, Hanginstabilitäten) beschrieben und illustriert.

Die praktische Anwendung der Isotopenmethoden erfordert das Vorhandensein eines Langzeit-Referenzmessnetzes, um die zeitliche und räumliche Entwicklung der Isotope zu kennen. Das eidgenössische Beobachtungsnetz für Isotope im Wasserkreislauf besteht seit 1992 und liefert die notwendigen Basisdaten für hydrogeologische Studien basierend auf den Isotopen des Wassermoleküls.

Riassunto

L'ossigeno-18, il deuterio e il trizio sono costituenti fondamentali delle molecole d'acqua. Ciò li rende dei traccianti ideali dei fenomeni legati al ciclo dell'acqua. I primi due sono isotopi stabili e la loro concentrazione varia secondo i cambiamenti di fase dell'acqua. Il trizio è invece un isotopo radioattivo. Queste proprietà sono all'origine della grande polivalenza delle tecniche isotopiche.

Questo rapporto, dopo aver esposto brevemente le basi teoriche indispensabili alla comprensione delle tecniche isotopiche nel settore delle acque sotterranee, mostra l'efficacia dell'applicazione dei metodi basati sull'utilizzo degli isotopi dell'idrogeno e dell'ossigeno all'idrogeologia applicata. Numerosi sono i campi dell'idrogeologia applicata interessati da questi metodi e illustrati da esempi (utilizzo e gestione delle risorse, acque termali, idrologia degli orizzonti pedologici, studio delle relazioni tra le acque superficiali e sotterranee, acque contaminate, opere sotterranee, versanti instabili).

La messa in pratica di queste tecniche necessita di una rete d'osservazione a lungo termine degli isotopi dell'acqua. La rete federale svizzera d'osservazione degli isotopi nel ciclo dell'acqua, creata nel 1992, risponde a questi bisogni, permettendo di conoscere l'evoluzione a lungo termine degli isotopi nelle differenti regioni del paese. Questa rete fornisce inoltre le referenze indispensabili agli studi idrogeologici basati sugli isotopi della molecola dell'acqua.

Abstract

Oxygen-18, deuterium and tritium are constituents of the water molecule, and, as a consequent, are ideal tracers for describing phenomena of the water cycle. Both first isotopes are stable, and their concentration varies with phase changes of the water. Tritium is radioactive. Its properties are origin for the great variability of the isotope methods.

After a short representation of the basic theory, which is necessary for the comprehension of the principal of the isotope methods, this report shows the efficiency of the methods based on the hydrogen and oxygen isotopes in the practical hydrogeology. Different application cases in groundwater are described and illustrated by a few examples: resources abstraction and treatment, thermal waters, hydrology of soil horizons, groundwater – surface water interaction studies, contaminated waters, underground constructions, instability of valley sides.

The practical use of the isotope methods demands the presence of a long-term national network to determine the temporal and spatial evolution of the isotopes. The Swiss national network for isotopes in the water cycle operates since 1992 and gives necessary basic data for hydrogeological studies bases on isotopes in the water molecule.

Table des matières

Préface de l'éditeur	3
Résumé	5
Table des matières	7
Introduction	9
Première partie: Rappel du principe des méthodes isotopiques	
1.1 Oxygène-18 et deutérium, les isotopes stables de la molécule d'eau	11
1.1.1 Composition isotopique des molécules d'eau	11
1.1.2 Unités	11
1.1.3 Standards	12
1.1.4 Fractionnement isotopique	13
1.1.5 Ligne isotopique météorique	14
1.1.6 Effet de température	15
1.1.7 Effet d'altitude	15
1.1.8 Effet de quantité	16
1.1.9 Effet de continentalité	16
1.1.10 Effet paléoclimatique	16
1.1.11 Processus secondaires	16
1.1.12 Techniques de laboratoire pour le dosage du deutérium et de l'oxygène-18	17
1.2 Le tritium, l'isotope radioactif de la molécule d'eau	18
1.2.1 Définitions	18
1.2.2 Unités	18
1.2.3 Production naturelle	19
1.2.4 Production anthropogène	19
1.2.5 Le tritium dans les précipitations	20
1.2.6 Techniques de laboratoire pour le dosage du tritium	20
1.2.7 Toxicologie du tritium dans l'eau de boisson	21
1.2.8 Limites et avenir des méthodes utilisant le tritium	21
1.3 Estimation des temps de séjour par la modélisation mathématique	22
1.3.1 Les modèles empiriques (lumped parameter models)	22
1.3.2 Modèles à cellules de mélange	25
1.4 Autres isotopes du milieu pouvant être utilisés en hydrogéologie	26
1.4.1 Isotopes du carbone	26
1.4.2 Isotopes du soufre	27
1.4.3 Isotopes de l'azote	27
1.4.4 Autres isotopes	27
Deuxième partie: Domaines d'application des méthodes isotopiques	28
2.1 Exploitation et gestion des ressources en eau	28
2.1.1 Altitude moyenne de la zone d'alimentation	28
2.1.2 Recharge des aquifères à travers la zone non-saturée	29
2.1.3 Evaporation à travers la zone non-saturée	31
2.1.4 Bilan en eau d'un aquifère	33
2.1.5 Ages radiométriques et temps de séjour moyen	35
2.1.6 Connexions entre aquifères	36
2.1.7 Mécanismes de salinisation	38
2.1.8 Application des méthodes isotopiques à l'hydrologie des massifs fissurés	39
2.2 Eaux thermales	43
2.2.1 Origine des eaux thermales	43
2.2.2 Phénomènes de mélange	44
2.2.3 Le facteur temps dans les systèmes hydrothermaux	44
2.2.4 Géothermométrie	46

2.3	Eau des horizons pédologiques	47
2.4	Communications entre eux souterraines et eaux de surface	48
2.4.1	Infiltration d'un cours d'eau dans la nappe (Uferfiltration)	49
2.4.2	Etanchéité des lacs d'accumulation	50
2.4.3	Décomposition des hydrogrammes	51
2.5	Contamination des eaux souterraines	53
2.5.1	Zones de protection	53
2.5.2	Origine d'une contamination	53
2.5.3	Déplacements des polluants dans la zone non-saturée	53
2.5.4	Rôle des aquitards	54
2.5.5	Etudes de cas	54
2.6	Travaux souterrains	59
2.6.1	Tunnels	59
2.6.2	Mines	59
2.6.3	Caractérisation des sites potentiels de stockage souterrain des déchets	59
2.7	Hydrogéologie des versants instables	60
Troisième partie: Vers une meilleure utilisation des méthodes isotopiques dans la pratique de l'hydrogéologie		62
3.1	Nécessité d'un réseau d'observation des isotopes de la molécule d'eau	62
3.1.1	Réseau mondial	62
3.1.2	Réseau suisse	63
3.2	La pratique de l'hydrogéologie isotopique	63
3.2.1	Choix des points de mesure	63
3.2.2	Précautions à prendre au cours de l'échantillonnage	63
3.2.3	Nécessité d'un multi-échantillonnage, évolution dans le temps des caractéristiques et séries temporelles de données (time-data series)	64
3.2.4	Traçage par injection de radioisotopes	64
3.2.5	Interprétation des résultats	64
Conclusions		65
Remerciements		66
Bibliographie		67

Introduction

L'ensemble des propriétés des isotopes ouvre un immense champ d'applications scientifiques, médicales et industrielles. Ce rapport montre l'efficacité des méthodes isotopiques en hydrogéologie pratique. Seuls les isotopes dits «du milieu» seront abordés, et en particulier les isotopes constitutifs de la molécule d'eau. Le deutérium, le tritium, et l'oxygène-18 présentent en effet la particularité de faire partie des constituants intimes de chaque molécule d'eau. Ils constituent des traceurs «idéaux» des multiples mécanismes rencontrés dans les systèmes hydrologiques s.l.

La première partie de cet ouvrage présente rapidement les bases théoriques nécessaires à la compréhension du principe des méthodes isotopiques en hydrologie.

Dans la deuxième partie sont exposés les domaines d'application des isotopes de l'hydrogène et de l'oxygène en hydrologie des eaux souterraines. Des exemples typiques illustrent les techniques utilisées.

Les nombreuses références bibliographiques citées devraient permettre aux utilisateurs de trouver les informations nécessaires à la résolution de leurs problèmes hydrogéologiques par les méthodes isotopiques.

La dernière partie est consacrée aux aspects pratiques des méthodes isotopiques. Une référence au réseau

d'observation fédéral est suivie de recommandations pratiques pour la mise en œuvre d'une campagne isotopique.

Plusieurs ouvrages que l'on peut considérer comme des références dans le domaine de l'hydrologie isotopique ont été utilisés tout au long de la rédaction de ce mémoire. Rendons donc à César ce qui est à César. Voici dans l'ordre alphabétique des auteurs les ouvrages qui ont continuellement inspiré et éclairé ce travail:

- Handbook of environmental isotope geochemistry, Volume 1, Fritz & Fontes éditeurs (1980);
- Stable isotope hydrology, rapport technique n°210, IAEA (1981);
- Applied chemical and isotopic groundwater hydrology, Mazor (1991);
- Isotopenmethoden in der Hydrologie, Lehrbuch der Hydrogeologie 8, Moser & Rauert (1980).

Cette liste ne serait pas complète si l'on oubliait l'excellent ouvrage de Clark & Fritz (1997) qui aurait été un modèle pour nous s'il n'avait paru après l'élaboration de ce rapport. Cet ouvrage très complet et rigoureux est supporté par le site Internet:

<www.science.uottawa.ca/~eih>.

Première partie:

Rappel du principe des méthodes isotopiques

Les atomes sont constitués d'un noyau autour duquel gravitent Z électrons. Le noyau atomique est lui-même composé de Z protons (neutralité des charges électriques) et de N neutrons. Les masses du proton et du neutron étant voisines de 1 en unités de masse atomique, celle du noyau est de l'ordre de $A = Z + N$. Le nombre Z caractérise l'élément chimique. Les réactions chimiques étant avant tout gouvernées par les électrons, chaque élément présentera un comportement chimique caractéristique. Pour un même élément, le nombre de neutrons est variable. Tous les atomes appartenant au même élément, donc de même comportement chimique, sont appelés les isotopes de cet élément. Les isotopes ont un même numéro atomique Z , mais des masses différentes. Les propriétés physiques présentent des différences selon les isotopes, car les effets de la masse sont alors influents. Certains de ces isotopes sont stables, alors que d'autres sont instables et se désintègrent en émettant un rayonnement.

1.1 Oxygène-18 et deutérium, les isotopes stables de la molécule d'eau

L'oxygène-18 et le deutérium sont des isotopes constitutifs de la molécule d'eau. Pour un même élément, le rapport de la quantité d'isotope lourd sur la quantité d'isotope commun (léger) peut être modifié au cours de changements de phase comme la condensation de l'eau des nuages, ou l'évaporation de l'eau des océans. Ce chapitre est dédié au fractionnement isotopique, ce phénomène étant à la base des méthodes utilisant les isotopes stables en hydrogéologie.

1.1.1 Composition isotopique des molécules d'eau

Si l'on combine les isotopes stables de l'oxygène (^{16}O , ^{17}O et ^{18}O) et de l'hydrogène (^1H et ^2H), sans tenir compte du tritium instable, on obtient neuf espèces différentes de molécules d'eau (les trois plus abondantes étant figurées en gras):

$^1\text{H}^1\text{H}^{16}\text{O}$	$^1\text{H}^2\text{H}^{16}\text{O}$	$^2\text{H}^2\text{H}^{16}\text{O}$
$^1\text{H}^1\text{H}^{17}\text{O}$	$^1\text{H}^2\text{H}^{17}\text{O}$	$^2\text{H}^2\text{H}^{17}\text{O}$
$^1\text{H}^1\text{H}^{18}\text{O}$	$^1\text{H}^2\text{H}^{18}\text{O}$	et $^2\text{H}^2\text{H}^{18}\text{O}$

Toutes ces espèces sont présentes dans les eaux naturelles, mais leurs proportions relatives varient fortement en fonction du fractionnement subi par l'eau considérée. L'eau de mer par exemple contient plus de molécules lourdes (constituées principalement d'isotopes à nombre de masse élevé) que l'eau douce. On

peut retenir à titre indicatif que pour 10^6 molécules du type $^1\text{H}^1\text{H}^{16}\text{O}$, on trouve entre 1880 et 2000 molécules d' $^1\text{H}^1\text{H}^{18}\text{O}$ et entre 180 et 340 molécules d' $^1\text{H}^2\text{H}^{16}\text{O}$ (Moser & Rauert, 1980). Ces trois molécules étant les plus abondantes, ce sont les seules qui présentent un intérêt en hydrologie.

1.1.2 Unités

La mesure absolue des concentrations en isotopes est généralement très coûteuse, et n'est la plupart du temps pas nécessaire. C'est pourquoi on mesure le plus souvent la différence relative entre la teneur en isotope de l'échantillon et la teneur en isotope d'un étalon ou «standard» (la teneur étant le rapport atomique entre l'isotope lourd et l'isotope banal). Cette déviation par rapport à un standard, notée δ , est très faible et s'exprime en ‰.

$[^2\text{H}]$ et $[^1\text{H}]$ étant les concentrations en deutérium et en hydrogène-1, on aura pour le deutérium:

$$\delta^2\text{H} = \frac{([^2\text{H}]/[^1\text{H}])_{\text{échantillon}} - ([^2\text{H}]/[^1\text{H}])_{\text{standard}}}{([^2\text{H}]/[^1\text{H}])_{\text{standard}}} \times 1000$$

$[^{18}\text{O}]$ et $[^{16}\text{O}]$ étant les concentrations en oxygène-18 et en oxygène-16, on aura pour l'oxygène-18:

$$\delta^{18}\text{O} = \frac{([^{18}\text{O}]/[^{16}\text{O}])_{\text{échantillon}} - ([^{18}\text{O}]/[^{16}\text{O}])_{\text{standard}}}{([^{18}\text{O}]/[^{16}\text{O}])_{\text{standard}}} \times 1000$$

On calcule de la même façon les δ de tous les isotopes stables, en utilisant bien sûr les standards correspondants.

Un échantillon dont la déviation δ est négative sera donc appauvri en isotope lourd, alors qu'une déviation positive indiquera un enrichissement par rapport au standard. Si l'on connaît la quantité d'oxygène-18 dans le standard, on peut en déduire la quantité d'oxygène-18 contenue dans l'échantillon.

Une propriété intéressante des valeurs en δ est qu'elles sont additives sur une large gamme de valeurs. Si deux échantillons d'eau présentent des déviations δ_1 et δ_2 par rapport au même standard, alors la déviation isotopique δ_{1-2} du premier échantillon par rapport au deuxième sera:

$$\delta_{1-2} = \delta_1 - \delta_2 \left(\frac{1000 + \delta_1}{1000 + \delta_2} \right)$$

Si δ_1 et δ_2 sont négligeables par rapport à 1000 (les $\delta^{18}\text{O}$ étant la plupart du temps inférieurs d'un ordre de grandeur aux $\delta^2\text{H}$, cette condition est plus souvent satisfaite pour ^{18}O que pour ^2H), l'équation précédente devient:

$$\delta_{1-2} \approx \delta_1 - \delta_2$$

La conversion de la déviation $\delta_{\text{Ech.-A}}$ d'un échantillon E par rapport à une référence A en une déviation $\delta_{\text{Ech.-B}}$ par rapport à une référence B sera donnée par:

$$\delta_{\text{Ech.-B}} = \delta_{\text{Ech.-A}} + \delta_{\text{A-B}} + (\delta_{\text{Ech.-A}} \times \delta_{\text{A-B}} \times 10^{-3})$$

Finalement, une autre propriété intéressante de cette notation est que la déviation δ d'un échantillon résultant du mélange de n eaux de compositions isotopiques δ_i différentes sera donnée par la relation:

$$\delta = \sum_1^n x_i \times \delta_i$$

x_i étant la fraction d'eau de composition δ_i . Par conséquent, sur un graphe $\delta^2\text{H}$ en fonction de $\delta^{18}\text{O}$, les mélanges de deux eaux différentes seront représentés par un segment de droite dont les extrémités seront les compositions isotopiques des eaux ayant servi à préparer les mélanges.

1.1.3 Standards

Un des gros problèmes de l'hydrologie isotopique (et de la géochimie) est la comparaison des résultats obtenus par différents laboratoires. Certains laboratoires déclarent en effet atteindre actuellement des précisions de 0,02‰ ou mieux pour les analyses de $\delta^{13}\text{C}$ et de $\delta^{18}\text{O}$, alors que les analyses des mêmes échantillons dans des laboratoires différents donnent des résultats qui varient parfois de 0,3‰ (EOS, 1996). L'utilisation des mêmes références est donc impérative. Jusqu'à récemment, le standard adopté universellement comme référence pour les isotopes stables de l'hydrogène et de l'oxygène dans les eaux naturelles était le SMOW (Standard Mean Ocean Water). Ce standard correspond à une eau hypothétique ayant des rapports isotopiques en oxygène-18 et en deutérium identiques à ceux d'une eau océanique «moyenne». Malheureusement, ce standard n'existe pas actuellement en tant qu'échantillon et ne peut donc pas être utilisé par les laboratoires pour calibrer leurs appareils de mesure. On utilise actuellement le standard VIENNA-SMOW (V-SMOW), qui lui est disponible sous forme d'échantillons. Dans la pratique, on considérera que les standards SMOW et V-SMOW sont identiques. Des mesures successives par différents auteurs à différentes dates ont donné les rapports isotopiques absolus du V-SMOW suivants (IAEA, 1981):

$$\begin{aligned} [^2\text{H}] / [^1\text{H}] &= (155,76 \pm 0,05) \times 10^{-6} \\ [^2\text{H}] / [^1\text{H}] &= (155,95 \pm 0,08) \times 10^{-6} \\ [^2\text{H}] / [^1\text{H}] &= (155,60 \pm 0,12) \times 10^{-6} \\ [^{18}\text{O}] / [^{16}\text{O}] &= (2005,20 \pm 0,45) \times 10^{-6} \end{aligned}$$

Ces différentes valeurs n'ont qu'un caractère indicatif, et aucune n'est reconnue officiellement, que ce soit par l'«International Atomic Energy Agency» (IAEA ou AIEA en français) ou par le «National Institute of standards and technology» (NIST). Dans tous les cas, la valeur absolue du standard n'a pas d'influence sur les rapports isotopiques mesurés puisque l'unité δ est une concentration relative. L'important est l'homogénéité dans le temps et dans l'espace (dans les échantillons livrés aux laboratoires) du standard fourni par l'IAEA (Gröning, IAEA, communication personnelle, février 1999). L'IAEA met d'autres échantillons d'eau à disposition pour les mesures isotopiques dans les eaux naturelles:

- SLAP (Standard Light Antarctic Precipitation) est caractérisé par de très faibles teneurs en oxygène-18 et en deutérium ($[^2\text{H}] / [^1\text{H}] \approx 89 \times 10^{-6}$).
- NBS-1 et NBS-1A (NBS pour National Bureau of Standards) présentent de fortes teneurs en isotopes lourds, intermédiaires entre V-SMOW et SLAP. C'est à l'aide de NBS-1 qu'ont été définis les rapports isotopiques de SMOW.
- GISP (Greenland Ice Sheet Precipitation) de composition intermédiaire entre V-SMOW et SLAP.

La Commission sur les Poids Atomiques et les Abondances Isotopiques de l'Union Internationale de Chimie Pure et Appliquée a adopté, au cours de la 38^{ème} Assemblée Générale de 1995, les lignes directrices suivantes (EOS, 1996):

- Les $\delta^2\text{H}$ de l'eau doivent être exprimés en ‰, avec pour référence le standard V-SMOW (0‰), sur une échelle normalisée pour laquelle le standard SLAP présente un $\delta^2\text{H}$ de -428‰.
- Les $\delta^{18}\text{O}$ de l'eau doivent être exprimés en ‰, avec pour référence le standard V-SMOW (0‰), sur une échelle normalisée pour laquelle le standard SLAP présente un $\delta^{18}\text{O}$ de -55,5‰.

1.1.4 Fractionnement isotopique

Généralités

L'évaporation est un processus physique au cours duquel l'énergie emmagasinée par les molécules d'eau est transférée de la phase liquide à la phase vapeur (Mazor 1991). La pression de vapeur d'une eau constituée principalement d'isotopes légers est plus haute que celle d'une eau constituée d'isotopes lourds. En d'autres termes, les molécules légères passent plus facilement dans la phase vapeur que les molécules lourdes. Il y a donc fractionnement isotopique (ou séparation) au cours de l'évaporation partielle de l'eau: la vapeur s'enrichit en molécules légères (les δ diminuent). Au contraire, la phase liquide résiduelle s'enrichit en isotopes lourds et les δ augmentent. Le fractionnement est plus efficace si la vapeur produite est constamment éliminée, par exemple quand le vent évacue la vapeur produite au dessus d'un bassin subissant une évaporation.

Sur un graphe $\delta^2\text{H}$ en fonction de $\delta^{18}\text{O}$, l'évaporation d'une eau définit un segment de droite joignant le point représentant la composition initiale du liquide, et le point représentant la composition de la dernière goutte qui s'évapore du récipient. Ce segment définit une droite appelée droite d'évaporation. La pente de cette droite est fonction de la température et de l'humidité de l'air. La Figure 1.1 montre l'exemple d'échantillons d'eau collectés dans un bassin à Qatar au cours de l'évaporation de l'eau (Yurtsever & Payne, 1979). On notera l'enrichissement progressif en isotopes lourds de l'eau résiduelle. Les chiffres correspondent à l'ordre de prélèvement des échantillons.

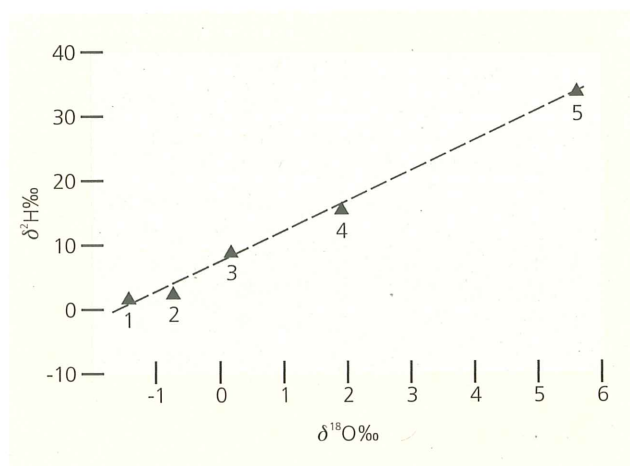


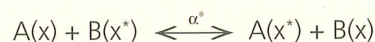
Figure 1.1 Composition isotopique d'échantillons prélevés successivement dans un bassin s'évaporant au Qatar. Les points représentatifs des échantillons prélevés dans le bassin sont numérotés de 1 à 5 dans l'ordre chronologique. La droite en trait interrompu correspond à la droite d'évaporation (d'après Yurtsever & Payne 1979).

Le fractionnement isotopique pendant l'évaporation est responsable du fractionnement qui a lieu au cours de la formation des masses nuageuses: la vapeur des nuages est appauvrie en isotopes lourds par rapport aux océans dont provient l'eau.

De la même façon, au cours de la condensation des nuages, les molécules lourdes passent plus facilement dans la phase liquide. L'eau de pluie sera donc enrichie en isotopes lourds par rapport aux nuages qui lui ont donné naissance.

Modélisation du fractionnement isotopique dans l'hydrosphère

Les équilibres isotopiques peuvent être interprétés de la même façon que les équilibres chimiques (Moser & Rauert, 1980). Dans le cas le plus simple de deux molécules ou de deux phases A et B contenant les isotopes X et X*, on a:



La constante α^* de cette réaction est définie par:

$$\alpha^* = \frac{[x^*/x]_{\text{dans la molécule ou la phase A}}}{[x^*/x]_{\text{dans la molécule ou la phase B}}}$$

Dans le cas d'un échange isotopique entre deux phases d'un même composé (eau liquide et vapeur d'eau par exemple), cette constante devient la constante d'équilibre de changement de phase. α^* dépend de la température, du fait de la thermo-dépendance de la pression de vapeur. Cette constante est également influencée par les différentes liaisons ioniques de l'eau, et donc par la salinité. Les réactions qui modifient les liaisons chimiques d'une molécule ont une grosse influence sur la teneur isotopique. Au cours de l'électrolyse de l'eau par exemple, les constantes de réaction de ^1H et de ^2H diffèrent d'environ un ordre de grandeur, ce qui entraîne un fort enrichissement en espèces lourdes dans la phase liquide.

Le modèle le plus simple pour décrire les variations de composition isotopique au cours d'un changement de phase est le classique modèle de Rayleigh. Ce modèle (développé à l'origine pour la distillation fractionnée de mélanges de liquides) suppose que le matériel formé est éliminé en permanence de la phase qui lui a donné naissance.

Prenons l'exemple de l'évaporation d'eau de rapport isotopique R_{18O}^{eau} . L'eau qui s'évapore du récipient contenant l'eau a une composition isotopique R_{18O}^{vapeur} . Les rapports isotopiques de l'eau et de la vapeur sont liés par la relation

$$\alpha_{18O}^{eau-vapeur} = \frac{R_{18O}^{eau}}{R_{18O}^{vapeur}} = \frac{(^{18}O/^{16}O)_{eau}}{(^{18}O/^{16}O)_{vapeur}} = 1,0093 \text{ à } 25^{\circ}C$$

Le développement de la théorie du fractionnement isotopique étant d'un intérêt limité pour le praticien, et n'étant pas l'objet de cet ouvrage, nous renvoyons les lecteurs intéressés à Gat (1980), Moser & Rauert (1980), et pour encore plus de détails, au rapport technique IAEA (1981) et à Clark & Fritz (1997). Ces ouvrages exposent dans le détail tous les aspects de la modélisation du fractionnement isotopique (avec ou sans équilibre thermodynamique, influence de l'humidité, de la teneur en sels).

1.1.5 Ligne isotopique météorique

Si l'on trace la relation δ^2H en fonction de $\delta^{18}O$ d'eaux de précipitations échantillonnées sur toute la surface de la planète, on remarque que ces points définissent une relation linéaire. Quels que soient les points considérés, on retrouve toujours une relation proche de la ligne météorique globale mise en évidence par Craig (1961):

$$\delta^2H = 8 \times \delta^{18}O + 10$$

Cette droite est toujours considérée en première approximation comme la norme, les points s'écartant de cette droite étant «atypiques». Les lignes météoriques locales sont des références très utiles pour la compréhension et le traçage de l'origine des eaux souterraines locales et de leurs déplacements, comme nous allons le voir tout au long de cette étude. Ces droites sont influencées par les points de mesure considérés et surtout par la région du globe pour laquelle elles sont établies. La Figure 1.2 donne les régressions linéaires pour les stations du réseau fédéral suisse, et pour les stations du réseau mondial IAEA/Organisation Météorologique Mondiale (voir 3.1.1 et 3.1.2).

Pratiquement chaque application des isotopes stables fait appel à une droite de ce type. Cependant, il est préférable d'établir une ligne météorique locale à partir d'échantillons de pluie sur le site même de l'étude. Comme nous allons le voir, on doit aussi tenir compte des variations en fonction de la température et de l'altitude.

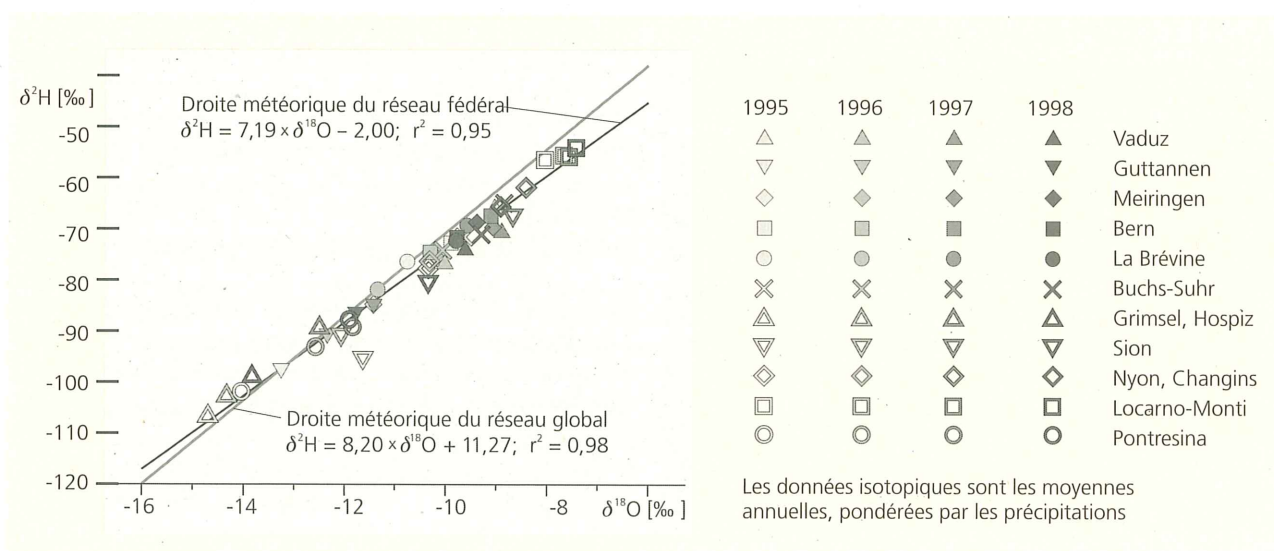


Figure 1.2 Relation deutérium/oxygène-18 pour les stations pluviométriques du réseau fédéral d'observation des isotopes dans le cycle de l'eau. Les données isotopiques pour la Suisse sont les moyennes annuelles pondérées par les précipitations mesurées entre 1995 et 1998. La droite météorique du réseau global (droite de régression) a été calculée sur les moyennes pondérées par les précipitations sur plus de 30 années; elle est tirée de Rozanski *et al.* (1993). Modifié d'après Parriaux *et al.* (2001).

1.1.6 Effet de température

La température est le paramètre qui influence le plus la composition isotopique des précipitations. Cette composition isotopique dépend de la température à laquelle l'eau océanique s'est évaporée dans l'atmosphère, et surtout de la température à laquelle les précipitations ont condensé dans les nuages. La ligne météorique est donc le résultat de la dépendance combinée du $\delta^2\text{H}$ et du $\delta^{18}\text{O}$ à la température. L'effet de température est bien visible dans les variations saisonnières. Des mesures mensuelles de la température et des $\delta^{18}\text{O}$ effectuées en Suisse par Siegenthaler & Oeschger (1980) révèlent un cycle annuel des températures et des compositions isotopiques (Figure 1.3). La dépendance de la composition isotopique des précipitations en fonction de la température est responsable pour une grande part des variations de composition isotopique des eaux souterraines, ce qui constitue pour l'hydrogéologue un outil très efficace.

Dans les régions où il pleut à la fois en été et en hiver, les différences de composition des eaux de précipitation sont des traceurs des fronts de recharge hivernaux et estivaux. Ces fronts permettent d'estimer les vitesses d'infiltration et d'identifier les mécanismes d'écoulement. La relation oxygène-18 en fonction de la température n'est pas linéaire entre -4 et +28°C, mais pour les écarts de températures habituellement considérés, une relation linéaire constitue une bonne approximation. Il n'est cependant pas possible de présenter une relation unique des compositions isotopiques en fonction de la température pour la Suisse entière. Pearson *et al.* (1991) donnent pour la Suisse:

Jura nord-est et Forêt-Noire:

$$\delta^{18}\text{O} = (0,38 \pm 0,02) \times T - (12,6 \pm 0,5)$$

$$\delta^2\text{H} = (2,13 \pm 0,24) \times T - (85,7 \pm 4,2)$$

Plateau («Mittelland»):

$$\delta^{18}\text{O} = (0,56 \pm 0,08) \times T - (14,6 \pm 0,3)$$

$$\delta^2\text{H} = (3,72 \pm 0,86) \times T - (102,7 \pm 1,6)$$

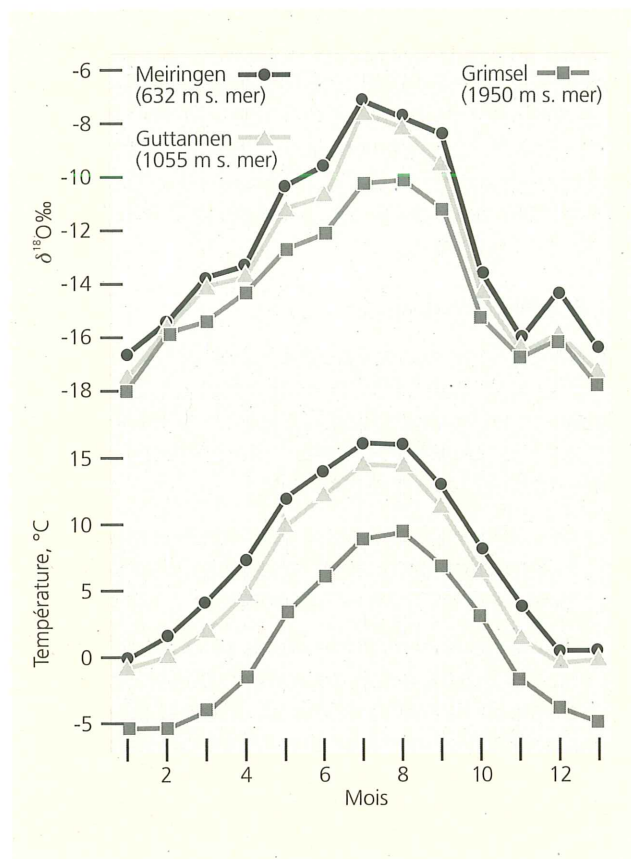


Figure 1.3 Valeurs mensuelles des compositions en oxygène-18 des précipitations et de la température de l'air en Suisse entre 1971 et 1978. Les $\delta^{18}\text{O}$ varient en fonction de la température suivant un effet de 0,35 à 0,5 ‰/°C. Les stations de mesures étant situées à des altitudes différentes, on observe également un effet d'altitude (d'après Siegenthaler & Oeschger, 1980).

1.1.7 Effet d'altitude

Quand un nuage s'élève aux abords d'un relief, la température diminue du fait de l'altitude, ce qui donne des précipitations de plus en plus pauvres en isotopes lourds (voir 1.1.6). Les pluies s'appauvrissent également par épuisement de la masse nuageuse. D'autres processus physiques interviennent au cours de la formation des précipitations en région montagneuse (comme l'évaporation des gouttes de pluie au cours de leur chute) pour donner finalement une relation linéaire entre l'altitude de prélèvement de la pluie et sa composition isotopique. Cet effet est un outil précieux de traçage de la recharge des eaux souterraines puisqu'il permet de déterminer l'altitude moyenne d'un bassin d'alimentation par simple mesure de la composition isotopique de l'eau d'une source.

L'effet d'altitude doit être établi pour chaque zone étudiée. La Figure 1.4 illustre la variation du $\delta^{18}\text{O}$ de l'eau des sources et l'altitude moyenne de la recharge pour différentes régions de la Suisse. On trouvera les relations numériques dans Kullin & Schmassmann (1990) et dans Pearson *et al.* (1991). Pour une meilleure vue d'ensemble, nous nous contenterons ici d'une représentation graphique.

1.1.8 Effet de quantité

Plus un événement pluvieux est important, ou plus les précipitations mensuelles sont abondantes, plus l'eau est pauvre en isotopes lourds. C'est ce que l'on désigne par l'effet de quantité. On peut interpréter ce phénomène de deux façons différentes:

- Des températures basses sont responsables de la formation de nuages appauvris, et engendrent des pluies relativement abondantes.
- Plus la distance entre le nuage et le sol est grande, plus la goutte d'eau qui tombe a le temps de s'évaporer et de s'enrichir en isotopes lourds. Cet effet est moins intense quand la température ambiante est basse et quand la pluie est abondante (quand l'air est fortement saturé en eau).

1.1.9 Effet de continentalité

De nombreuses études ont montré que la composition isotopique moyenne des précipitations tend vers des valeurs négatives quand on se déplace de la côte océanique vers l'intérieur des terres. Quand la pluie se déplace vers l'intérieur des terres, elle précipite progressivement par condensation, pendant que les molécules légères ont tendance à rester dans la phase vapeur. L'humidité de l'air est donc de plus en plus pauvre en isotopes lourds par rapport à l'océan (qui est d'ailleurs le standard). Cet effet de continentalité est souvent masqué par les variations saisonnières ou l'effet d'altitude par exemple.

1.1.10 Effet paléoclimatique

Il est possible que des eaux infiltrées lors d'une période plus froide que la période actuelle (dernière période glaciaire par exemple) enregistrent un appauvrissement des teneurs en isotopes lourds du fait de la baisse générale des températures. L'effet paléoclimatique se surajoute aux autres effets vus dans les paragraphes précédents (Blavoux & Letolle, 1995). Il peut être la cause de résultats d'analyse troublants pour des eaux anciennes, si l'on ne sait pas que l'eau s'est infiltrée au cours d'une période climatique différente de l'actuelle.

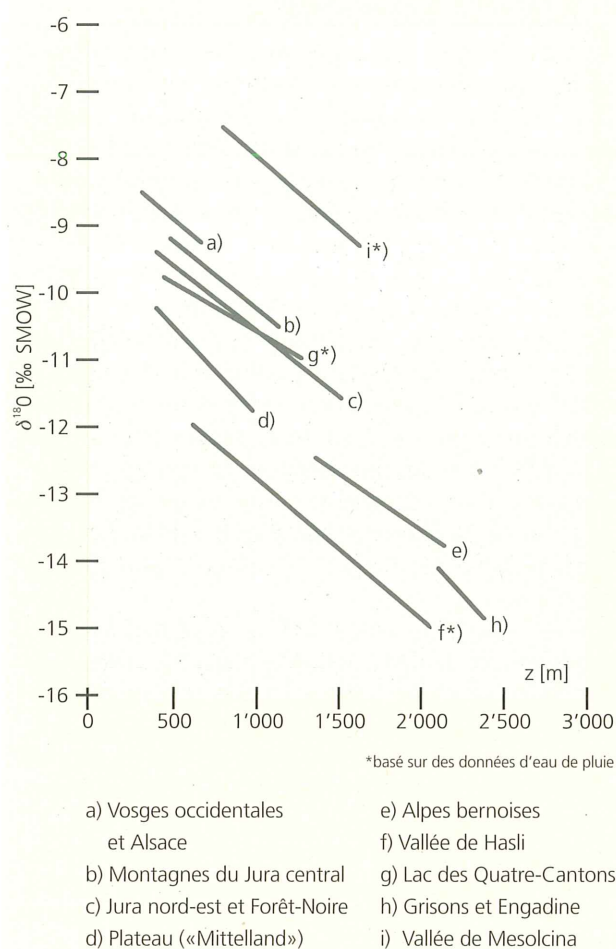


Figure 1.4 Relation entre l'oxygène-18 des eaux souterraines et l'altitude moyenne de la zone de recharge pour la Suisse et les régions avoisinantes (d'après Pearson *et al.*, 1991).

1.1.11 Processus secondaires

L'eau peut subir de nombreuses interactions avec l'environnement. Gascoyne & Kotzer (1995) résument tous ces processus par la Figure 1.5 qui illustre l'influence sur la composition isotopique de l'évaporation de surface, de la condensation, de l'hydratation des silicates, des échanges avec le sulfure d'hydrogène, et le gaz carbonique à basse ou à haute température. La plupart de ces processus ont lieu dans les systèmes hydrothermaux et seront détaillés en 2.2.

1.1.12 Techniques de laboratoire pour le dosage du deutérium et de l'oxygène-18

L'objet de cet ouvrage n'étant pas d'exposer les techniques de laboratoire, nous ne donnerons qu'un bref aperçu de ces méthodes et renvoyons les lecteurs à Noir (1993) pour la préparation des échantillons d'eau et à Moser & Rauert (1980) pour plus de détails. Ces deux publications contiennent d'autres références sur le sujet.

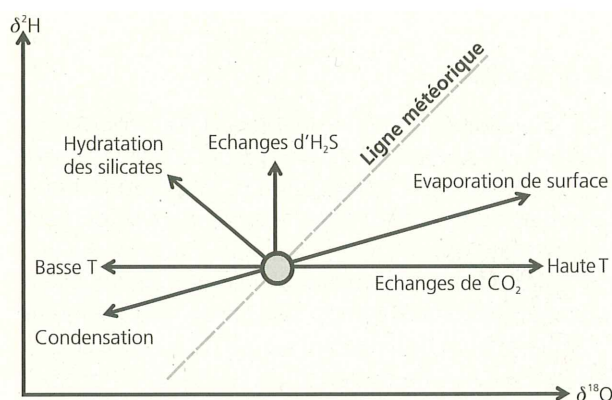


Figure 1.5 Différents processus naturels pouvant influencer les compositions en deutérium et en oxygène-18 des eaux souterraines (d'après Gascoyne & Kotzer, 1995).

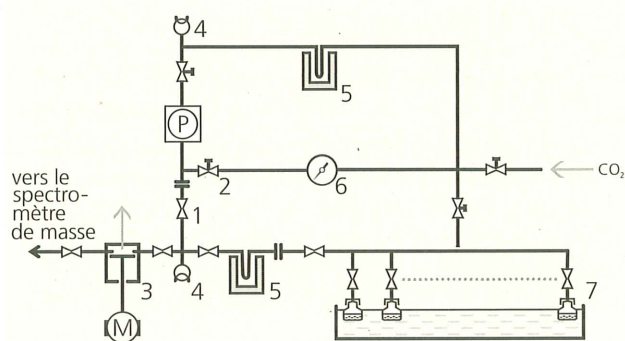


Figure 1.6 Schéma de montage pour la préparation des échantillons d'eau pour l'analyse de l'oxygène-18 par spectrométrie de masse (sortie de gauche sur le schéma).

- 1: soupape magnétique;
- 2: soupape manuelle;
- 3: pompe volumétrique actionnée par un moteur;
- 4: tube Pirani (mesure indirecte de la pression par la température);
- 5: réfrigérant (-80°C);
- 6: manomètre;
- 7: bain thermostatique contenant une trentaine d'échantillons;
- P: pompe

(d'après Moser & Rauert, 1980).

Comme nous l'avons vu en 1.1.2, la mesure absolue des abondances en isotopes lourds est compliquée et n'est la plupart du temps pas nécessaire. Dans la pratique, on compare la composition isotopique de l'échantillon à celle d'un standard par spectrométrie de masse. Pour l'oxygène-18, comme il est impossible d'introduire directement dans un spectromètre de masse de l'eau liquide, on procède préalablement à un échange isotopique entre l'échantillon à analyser et du gaz carbonique dont on connaît par ailleurs la composition isotopique. Le principe de la préparation consiste à mettre en présence dans une enceinte thermostatée à 25°C l'eau à analyser et le gaz de référence (Figure 1.6).

Après équilibration, la composition isotopique de ce gaz est modifiée. L'analyse de ce gaz permet de remonter à la composition initiale de l'échantillon.

Pour le deutérium, on réduit l'eau de l'échantillon en la faisant circuler dans un réacteur contenant du zinc et chauffé à 400°C (Figure 1.7). L'hydrogène dégagé par la réduction est utilisé pour l'analyse spectrométrique.

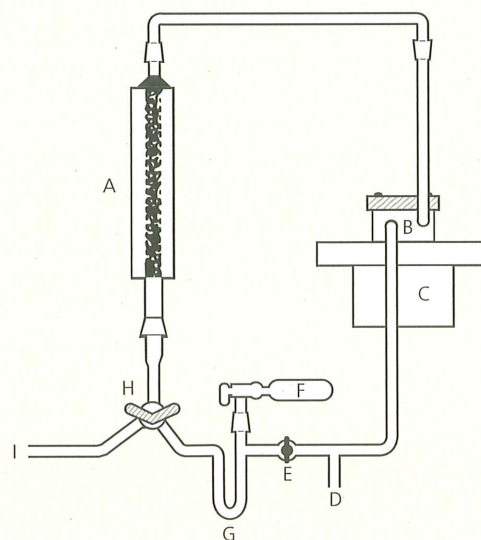


Figure 1.7 Schéma de montage pour la préparation des échantillons d'eau pour l'analyse du deutérium par spectrométrie de masse.

- A: four à zinc; B: pompe de circulation; C: agitateur magnétique;
- D: mesure de la pression; E: vanne; F: échantillon; G: tube en U;
- H: robinet à trois voies; I: pompe à vide

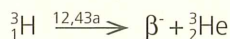
(d'après Moser & Rauert, 1980).

1.2 Le tritium, l'isotope radioactif de la molécule d'eau

Le tritium est le seul isotope radioactif constitutif de la molécule d'eau. De par son origine essentiellement anthropogène et sa radioactivité, son comportement est sensiblement différent de celui des isotopes stables. Nous allons voir que tout l'intérêt du tritium réside dans son caractère instable et dans ses fortes variations de «concentration» dans l'environnement.

1.2.1 Définitions

Le tritium est un des isotopes de l'hydrogène. Son symbole conventionnel est ^3H , mais il est parfois noté T. Nous conserverons la notation conventionnelle afin d'éviter toute confusion. Les atomes de tritium sont instables et se désintègrent (période ou «demi-vie» de 12,43 années) en formant des atomes stables d'hélium-3 et un rayonnement β^- selon l'équation:



C'est ce rayonnement qui permet de mesurer la quantité de tritium contenue dans un échantillon. Ce rayonnement de très faible énergie (0,018 MeV) est totalement absorbé par une couche de 5 μm d'eau, ou de 3 μm d'air, ce qui rend sa détection difficile (voir 1.2.6). Cette faible énergie explique également que le tritium n'est jamais utilisé pour les traçages en forage.

Les isotopes instables sont appelés radioisotopes. La désintégration des radioisotopes suit une loi cinétique du premier ordre. La vitesse de désintégration est à chaque instant proportionnelle au nombre d'atomes présents dans la substance considérée, ce qui s'exprime en notation différentielle par la relation:

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N$$

où t est le temps, et λ la constante radioactive par définition.

Pour connaître le nombre d'atomes à chaque instant, il suffit d'intégrer la relation précédente en fonction du temps. Soit N_0 le nombre initial d'atomes. On a alors:

$$\int_{N_0}^N \frac{dN}{N} = \int_0^t -\lambda \times dt, \text{ et } \ln \frac{N}{N_0} = -\lambda \times t$$

d'où la relation donnant le nombre d'atomes N au temps t en fonction du nombre initial N_0 d'atomes contenus dans l'échantillon:

$$N = N_0 \times e^{-\lambda t}$$

La période radioactive $T_{1/2}$ (ou «demi-vie») est la durée nécessaire à la désintégration de la moitié du nombre des atomes radioactifs présents initialement. Elle est caractéristique du radioisotope considéré. On a alors $N_0 / N = 2$, et

$$e^{-\lambda T_{1/2}} = \frac{1}{2}, \text{ d'où la relation utilisée couramment:}$$

$$N = N_0 \times e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} \times t}$$

La période de désintégration du tritium est de 12,43 années. De vieux ouvrages donnent une demi-vie de 12,3 années, mais cette valeur n'a plus cours aujourd'hui. Cette loi de désintégration est la base de toutes les méthodes radiométriques de datation.

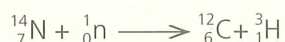
1.2.2 Unités

Dans la pratique, on ne mesure pas la concentration en tritium de l'eau mais le nombre de particules β^- émises par l'échantillon par unité de temps. On mesure donc la (radio-) activité en tritium de l'eau de laquelle on peut déduire une concentration massique. L'activité est le nombre de désintégrations d'un élément radioactif par unité de masse et de temps. Dans l'eau, elle s'exprime en unités tritium (UT en français, et TU en anglais pour «tritium unit»). Une unité tritium représente 1 atome de ^3H pour 10^{18} atomes de ^2H et de ^1H . L'IAEA tente depuis quelques temps de remplacer l'expression tritium unit par tritium ratio (TR), terme qui correspond mieux à la définition de l'unité de mesure du tritium dans l'eau, mais qui reste à traduire en français. Une unité tritium correspond à un atome de tritium pour 10^{18} atomes d'hydrogène. Nous attirons l'attention du lecteur sur le fait qu'il y a dans cette définition de l'activité une ambiguïté. Cette définition correspond plus à la définition d'une concentration qu'à celle d'une activité. Pour rétablir une certaine cohérence dans ces définitions, on admettra qu'une unité tritium est équivalente dans l'eau à une activité en tritium de $0,119 \text{ Bq} \times \text{l}^{-1}$ (Bq = becquerel¹).

¹ Le becquerel (Bq) est l'unité du système international pour la radioactivité. Un becquerel correspond à une activité d'une désintégration par seconde. Le becquerel remplace le curie qui n'a plus cours en Suisse ($1 \text{ Ci} = 37 \times 10^9 \text{ Bq}$).

1.2.3 Production naturelle

La production naturelle totale de tritium est estimée à 0,25 atomes par centimètre d'épaisseur d'atmosphère et par seconde, soit 20 g par an pour toute l'atmosphère qui correspondent à une activité de 7×10^{16} Bq (Rozanski *et al.*, 1991). Le tritium est produit naturellement dans l'atmosphère, essentiellement par action des neutrons rapides induits par le rayonnement cosmique sur les atomes d'azote-14 selon la réaction:



Les deux tiers sont produits dans la stratosphère et un tiers dans la troposphère. Le bilan global à l'équilibre du tritium atmosphérique est estimé à 3,6 kg soit $1,3 \times 10^{18}$ Bq. Le tritium produit sous forme d'hydrogène est oxydé en eau. Il est alors introduit dans le cycle de l'eau.

1.2.4 Production anthropogène

Explosions nucléaires

Le tritium a été produit par tous les types de tests nucléaires en atmosphère, sachant que les bombes à fission produisent quatre fois moins de tritium que les bombes à fusion. La quantité de tritium injectée dans l'environnement a été énorme. Entre octobre 1952 et la fin de 1962, approximativement 600 kg de tritium ont été injectés dans l'atmosphère par les tests russes, américains et anglais. Les explosions en atmosphère ont cessé en 1963 quand ces pays ont signé un traité de limitation des tests. 1963 est l'année où les activités en tritium dans l'atmosphère ont atteint leur maximum. On parle du «pic de 1963». Par la suite, seules la Chine et la France ont effectué de tels tests produisant

dans l'atmosphère environ 20 kg de tritium entre 1967 et 1980. A partir de 1980, aucune explosion en atmosphère n'a eu lieu. Environ 75% de tout ce tritium a été injecté dans l'hémisphère nord de la stratosphère, et le reste dans la partie équatoriale de la stratosphère. La stratosphère au dessus du pôle sud n'a subi aucune injection de tritium (Rozanski *et al.*, 1991).

Centrales nucléaires

L'industrie nucléaire décharge du tritium dans l'environnement par l'intermédiaire des effluents gazeux et liquides. Les réacteurs à eau lourde sont les plus gros émetteurs.

Rozanski *et al.* (1991) donnent le détail de cette production en fonction du type de réacteur. Les émissions dues aux installations militaires sont difficiles à estimer, mais de grandes quantités sont certainement produites. Aux USA, la quantité de tritium produite de façon à compenser la désintégration radioactive des 100 kg de tritium contenus dans les stocks d'armes nucléaires est proche de 5 kg par an.

Les réacteurs expérimentaux à fusion doivent être mentionnés comme future source potentielle de tritium.

Produits de consommation courante

Des quantités considérables de tritium sont utilisées dans les peintures luminescentes et les sources gazeuses de lumière. Pour ce qui est des peintures luminescentes, le tritium est incorporé dans des polymères du type polystyrène. Le rayonnement β^- émis excite des molécules qui, pour revenir à leur énergie minimale, émettent un rayonnement lumineux. Les usines fabriquant ces matériaux sont d'importantes sources de tritium, et peuvent modifier localement la répartition géographique du tritium dans l'atmosphère ou dans les eaux. L'incin-

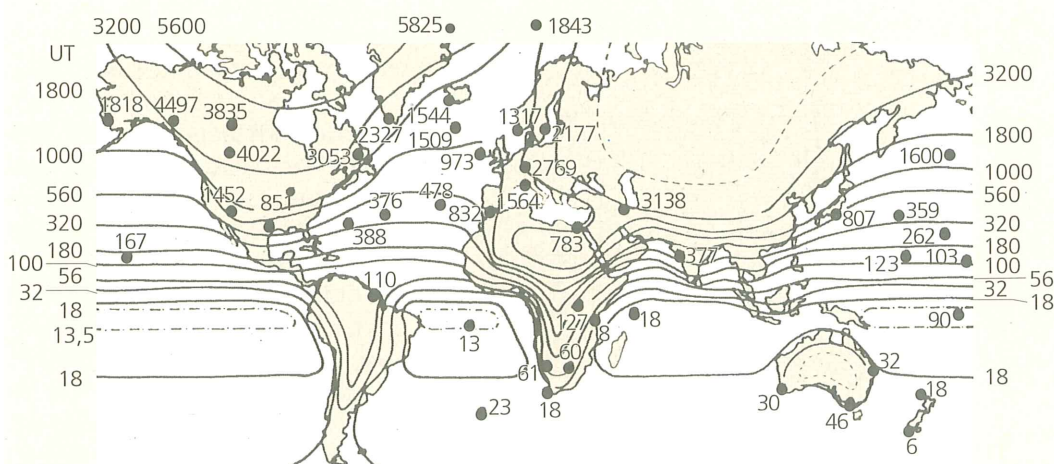


Figure 1.8
Répartition mondiale
des activités en
tritium dans les
pluies en 1963
(Moser & Rauert,
1980).

ration de ces substances dans les usines de traitement des ordures ménagères émet de grandes quantités de tritium dans l'atmosphère (Rozanski *et al.*, 1991). Nous verrons en 2.5.5 que la mise en décharge d'objets contenant ces produits tritiés est probablement responsable d'une grande partie de la radioactivité des lixiviats.

1.2.5 Le tritium dans les précipitations

L'IAEA mesure à l'échelle mondiale les concentrations isotopiques dans les précipitations. La Figure 1.8 montre la répartition mondiale des activités en tritium atteintes à l'apogée des essais nucléaires en atmosphère en 1963.

On observe sur cette figure un net déséquilibre entre les deux hémisphères. Les activités dans l'hémisphère sud sont largement inférieures à celles de l'hémisphère nord. Les plus grosses activités dues au pic de 1963 ne sont arrivées dans l'hémisphère sud qu'à partir de 1964-1965 du fait des circulations atmosphériques globales. La répartition des activités en tritium à l'échelle d'un pays est fonction essentiellement des zones climatiques et des sources industrielles de tritium.

La Figure 1.9 montre les variations de l'activité en tritium des précipitations en Suisse en fonction du temps. On distingue nettement le pic de 1963 et la diminution exponentielle des activités depuis cette date.

Les activités en tritium présentent également des variations saisonnières avec des maxima au début de l'été et des minima au début de l'hiver. Ces variations résultent d'un largage intense de tritium du réservoir stratosphérique vers la troposphère à la fin du printemps.

Depuis 1963, date du traité limitant les essais nucléaires en atmosphère, les activités en tritium dans l'atmosphère diminuent, entraînant des difficultés croissantes d'analyse des eaux naturelles (voir 1.2.8).

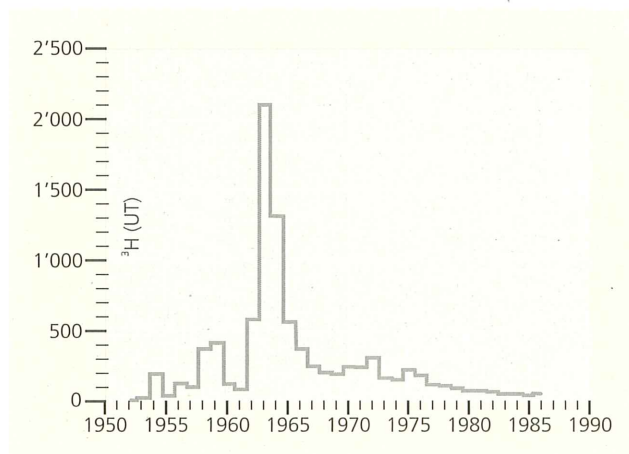


Figure 1.9 Activité en tritium des précipitations en Suisse. Pratiquement la totalité du tritium est due aux essais nucléaires (Pearson *et al.*, 1991).

1.2.6 Techniques de laboratoire pour le dosage du tritium

Les quantités de tritium dans l'eau sont si faibles qu'on ne mesure ni des concentrations absolues, ni des rapports isotopiques, contrairement aux isotopes stables. Nous l'avons vu en 1.2.2, on accède à la quantité de tritium contenue dans l'eau par la mesure de sa radioactivité.

La méthode la plus simple de mesure de l'activité en tritium d'un échantillon d'eau est le comptage direct du rayonnement β^- par un compteur à scintillation liquide. Ce type d'appareil est disponible dans le commerce et le protocole de mesure peut être entièrement automatisé. Après distillation, une solution scintillante est ajoutée à l'échantillon. Le rayonnement émis par le tritium excite les molécules du scintillateur. Ces molécules reviennent à leur énergie d'équilibre en émettant des photons. La fluorescence émise par la molécule scintillante est située dans les longueurs d'ondes du bleu et du proche ultraviolet. L'intensité du signal lumineux est proportionnelle à l'énergie de la particule radioactive. Une photocathode transforme ce signal lumineux en une impulsion électrique proportionnelle à l'énergie de la particule β^- .

Un des facteurs limitants des comptages de la radioactivité est le bruit de fond noté σ_{BF} . Il est dû aux rayonnements cosmiques, à la radioactivité de l'environnement, mais aussi aux ustensiles utilisés et à l'électronique. Ce bruit de fond masque toute radioactivité qui lui est inférieure. C'est la raison pour laquelle on estime que l'on a détecté une radioactivité lorsqu'elle est deux fois plus importante que le bruit de fond (critère 2σ). Arbitrairement, on n'accepte la mesure que lorsque la radioactivité de l'échantillon est au moins de l'ordre de $4\sigma_{BF}$. On définit pour chaque analyse un seuil de détection $SD = 2\sigma_{BF}$ et un seuil de mesure $SM = 4\sigma_{BF}$ (Chessel & Olive, 1978).

Le Laboratoire de géologie, Ecole polytechnique fédérale de Lausanne (GEOLP) utilise un compteur à scintillation pour les mesures directes d'activité en tritium dans les eaux. Il est installé dans une caverne de centrale hydroélectrique à Veytaux au bord du lac Léman, afin d'être protégé des rayonnements cosmiques. Pour des échantillons de 20 ml (14 ml d'eau et 8 ml de scintillateur) et un comptage de 100 minutes renouvelé plusieurs fois, on atteint un seuil de détection de l'ordre de 25 UT et un seuil de mesure de 50 UT. Ces performances ne sont plus suffisantes pour des eaux naturelles du fait de la diminution progressive des activités en tritium dans l'atmosphère, et nous n'avons pu mesurer que des eaux polluées provenant d'eaux souterraines contaminées par des décharges. Les résultats de ces analyses sont présentés en 2.5.5.

Afin d'améliorer ce seuil de détection et ce seuil de mesure, on peut enrichir l'échantillon en tritium avant de l'analyser. Il existe trois méthodes d'enrichissement: la distillation, la diffusion thermique, et la plus couramment employée à savoir l'enrichissement par électrolyse partielle. Les molécules contenant du tritium, de même que les molécules contenant du deutérium ou de l'oxygène-18, sont moins volatiles que celles où l'hydrogène-1 prédomine. Au cours de l'électrolyse, de l'hydrogène léger se dégage, alors que la phase liquide s'enrichit en isotopes lourds, et donc en tritium. On peut atteindre par cette méthode des enrichissements d'un facteur 10 à 100. Le comptage se fait par la suite de la même façon que précédemment dans un compteur à scintillation. Précisons que le GEOLEP, en collaboration avec le Département de chimie de l'Ecole polytechnique fédérale de Lausanne, poursuit actuellement des recherches pour le développement d'une nouvelle méthode d'enrichissement électrolytique. Une autre technique consiste à injecter l'échantillon sous forme gazeuse dans un tube à comptage proportionnel. Les électrons émis par le tritium ionisent le gaz, ce qui crée un courant électrique directement proportionnel à l'activité en tritium, d'où le nom de compteur proportionnel à gaz. Ces tubes sont pour la plupart artisanaux mais permettent d'atteindre après enrichissement électrolytique des seuils de mesure de 0,1 UT en quelques mois de comptage. Les problèmes de contamination et de bruit de fond sont particulièrement déterminants pour la qualité de la mesure, c'est pourquoi le tube à gaz est protégé par d'épaisses couches de plomb. Le dispositif peut peser plusieurs tonnes pour des échantillons de quelques litres!

Une nouvelle méthode d'analyse du tritium fait intervenir l'hélium-3 qui est produit par la désintégration (voir 1.2.1). On peut analyser l'hélium-3 produit in situ et accumulé dans l'eau sous forme gazeuse avant le prélèvement. Il est également possible de quantifier l'hélium produit par l'eau après le prélèvement. L'hélium-3 est analysé par spectrométrie de masse (Schlosser, 1992; Schlosser *et al.*, 1988).

1.2.7 Toxicologie du tritium dans l'eau de boisson

Les valeurs indicatives des radioactivités globales à ne pas dépasser (sans distinction des éléments considérés) recommandées en 1985 par l'Organisation Mondiale de la Santé dans ses directives de qualité pour les eaux de boisson (OMS, 1985) sont:

- radioactivité α globale: $0,1 \text{ Bq} \times \text{l}^{-1}$,
- radioactivité β globale: $1,0 \text{ Bq} \times \text{l}^{-1}$, soit environ 12 UT.

L'OMS recommande de procéder à une analyse spéciale si l'on soupçonne la présence de quantités appréciables de tritium. En Suisse, l'Ordonnance sur la radioprotection du 22 juin 1994 (ORaP, 1994) du Département fédéral de l'intérieur, donne pour le tritium dans les eaux de boisson la valeur limite de $10 \text{ kBq} \times \text{l}^{-1}$, (soit environ 85'000 UT). Elle porte la limite absolue d'exemption à 600 kBq et la limite relative d'exemption¹, à $6 \text{ kBq} \times \text{l}^{-1}$, (soit environ 50'000 UT) pour la radioactivité totale. Dans l'Union européenne, la valeur limite en tritium dans les eaux de boisson est de $0,1 \text{ kBq} \times \text{l}^{-1}$, ce qui représente un facteur 100 fois plus faible qu'en Suisse. On lira également Takeda (1995) pour l'influence du tritium sur les tissus organiques.

1.2.8 Limites et avenir des méthodes utilisant le tritium

Depuis 1963, date du traité limitant les essais nucléaires en atmosphère, les activités en tritium dans l'atmosphère diminuent. Cette diminution a aujourd'hui atteint un tel niveau que la mesure du tritium dans les eaux naturelles ne peut plus se faire sans mettre en œuvre des techniques spéciales de comptage (voir 1.2.6). Si cette évolution est souhaitable pour l'équilibre politique mondial et la fin de la course à l'armement, elle est tout à fait préoccupante pour l'avenir du tritium en hydrogéologie. Si les grands de cette planète restent raisonnables, il y a de fortes chances pour que l'on n'entende plus parler de cet isotope. Des recherches sont déjà en cours en vue d'améliorer les performances des techniques de mesure du tritium, ou pour trouver d'autres isotopes (voir 1.2.6 et 1.4.4).

Dans tous les cas, le tritium est le seul isotope radioactif constitutif de la molécule d'eau. Un autre isotope radioactif présentant une telle parenté avec les molécules d'eau n'existe malheureusement pas.

¹La limite d'exemption est la quantité maximale d'une substance qui ne porte atteinte ni à l'homme, ni à l'environnement. En matière de radioactivité, cette limite est calculée pour que la dose équivalente absorbée ne dépasse pas $10 \mu\text{Sv}$ ($1 \text{ Sv (sievert)} = 1 \text{ Jkg}^{-1}$).

1.3 Estimation des temps de séjour par la modélisation mathématique

Présenter toute la théorie de la modélisation mathématique et tous les types de modèles est ici impossible. Cela nécessiterait des années de travail, et plusieurs volumes comme celui-ci ne suffiraient pas à couvrir tout ce champ des connaissances. Nous ne ferons ici qu'un survol de la modélisation du comportement des isotopes dans les eaux souterraines.

La modélisation est utilisée aussi bien pour les isotopes stables que pour les isotopes radioactifs. Seul le problème de la datation des eaux souterraines à l'aide des radioisotopes sera exposé. Nous présenterons dans le détail les modèles empiriques, simples d'utilisation, et fréquemment employés en hydrogéologie isotopique. Les modèles à cellules de mélange, plus complexes, ne seront qu'évoqués. Une liste bibliographique (non exhaustive) en fin de chapitre permet au lecteur de trouver des ouvrages récents sur ce sujet.

L'efficacité des modèles empiriques sera illustrée en 1.3.1 par une application inédite sur la source de Lutry (Commune de Savigny), première station d'eau souterraine du réseau fédéral d'observation des isotopes dans le cycle de l'eau (Etcheverry & Parriaux, 1998). D'autres études de cas tirées de la littérature sont présentées en 2.1.5.

1.3.1 Les modèles empiriques (lumped parameter models)

Les modèles empiriques sont fréquemment utilisés en hydrogéologie isotopique pour l'estimation des temps de séjour moyens de l'eau dans un aquifère. Ils s'appliquent à des aquifères sièges d'écoulements stationnaires, que l'on considère comme poreux et homogènes. Toutes les propriétés du milieu et leurs variations sont englobées (*lumped*) dans une fonction de transfert notée $g(t')$. Cette fonction caractérise la réponse du système à un signal isotopique d'entrée déterminé. Elle dépend du temps de séjour moyen t_m . Le signal de sortie $C_{out}(t)$ est calculé par intégration du signal d'entrée $C_{in}(t-t')$ pour chaque incrément de temps t' , pondéré par le facteur de transfert $g(t')$ et pour le tritium par un facteur de désintégration radioactive $e^{-\lambda t'}$. La relation liant le signal mesuré à l'exutoire au signal d'entrée mesuré dans les précipitations est une intégrale de convolution de la forme:

$$C_{out}(t) = \int_0^{\infty} C_{in}(t-t') \times e^{-\lambda t'} \times g(t') \times dt'$$

La Figure 1.10 donne l'allure des fonctions de transfert les plus courantes.

Dans la pratique, différents signaux de sortie sont calculés pour plusieurs temps de séjour moyens à l'aide d'un signal d'entrée mesuré sur le site même, ou provenant d'une station proche d'un réseau d'observation des isotopes dans les précipitations. Les données fournies par une station de mesure dans les pluies ne sont pas toujours représentatives du signal d'entrée dans le système. Il est possible de corriger ces données, en affectant à chaque pluie (mensuelle par exemple) un facteur de pondération tenant compte de la variation du taux d'infiltration. La moyenne pondérée des données mensuelles donnera alors la valeur annuelle du signal d'entrée (Richter, 1995). La comparaison du signal de sortie calculé et des valeurs mesurées indiquera lequel des temps moyens de séjour donne le meilleur ajustement.

Modèle en piston (PM: Piston flow model)

C'est le cas le plus simple de répartition des âges de l'eau dans un aquifère. On suppose qu'il n'y a aucun mélange et donc aucune modification des activités par dispersion, diffusion ou échanges divers. L'activité d'entrée n'est modifiée que par la désintégration radioactive:

$$C_{out}(t) = C_{in}(t-t_m) \times e^{-\lambda t_m}$$

Ce modèle suppose que toutes les molécules d'eau parcourent la même distance à la même vitesse, ce qui n'est valable en première approximation que dans des cas très particuliers d'aquifères (milieu homogène, lignes de courant de même longueur).

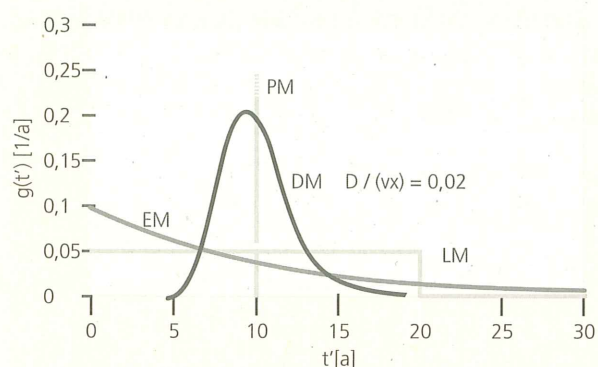


Figure 1.10 Fonctions de transfert pour des modèles empiriques simples. Le temps de séjour moyen t_m est fixé ici à 10 a. DM: modèle dispersif (voir texte ci-dessous pour le paramètre de dispersion D/vx); EM: modèle exponentiel; LM: modèle linéaire; PM: modèle en piston. (Richter, 1995).

Modèle exponentiel (EM: Exponential model)

La distribution des âges est assimilée à une exponentielle. L'eau récente est plus fréquente que l'eau ancienne. Cette distribution est obtenue dans un réservoir où l'eau récente se mélange parfaitement et en permanence à l'eau ancienne. La relation entre le signal d'entrée et le signal de sortie prend alors la forme:

$$C_{out}(t) = \int_0^{\infty} C_{in}(t-t') \times e^{-\lambda t'} \times \frac{1}{t_m} e^{-\frac{t'}{t_m}} dt'$$

L'équivalent hydrogéologique correspond à la distribution des âges de l'eau à l'exutoire d'un aquifère homogène, d'épaisseur négligeable, pour lequel la recharge se fait sur toute la surface.

Modèle dispersif (DM: Dispersion model)

Le modèle dispersif se distingue des précédents par la prise en compte d'une dispersion hydrodynamique. La répartition des âges $g(t')$ est fonction du paramètre de dispersion D/vx (avec D : coefficient de dispersion; v : vitesse moyenne d'écoulement; x : distance entre le point d'infiltration et le point de mesure). La fonction $g(t')$ prend différentes formes suivant le mode de prélèvement. Zuber (1986) distingue essentiellement deux cas:

- DM-C_{FF}: Les échantillons sont prélevés dans l'aquifère à différentes profondeurs. La mesure est représentative d'un mélange dans lequel la contribution de chaque échantillon est proportionnelle à la longueur de l'intervalle de prélèvement.

- DM-C_{FF}: Le prélèvement est effectué à l'exutoire d'un aquifère ou d'un forage. La concentration est alors pondérée par les débits.

La Figure 1.11 montre l'allure de la fonction de transfert pour différentes valeurs du paramètre de dispersion. La fonction de transfert pour $D/vx = 0,5$ est très proche du modèle exponentiel. Pour des valeurs supérieures du paramètre de dispersion, un poids maximal est donné aux temps de transit courts. Des valeurs inférieures du paramètre de dispersion donnent à la fonction l'allure d'une distribution en piston amortie. L'exemple de la source de Lutry illustre ces similitudes (voir plus loin, Figure 1.12).

Modèle linéaire (LM: Linear model)

La distribution des âges est constante entre 0 et $2 t_m$. En d'autres termes, tous les temps de séjour entre ces deux bornes ont la même fréquence d'apparition. La fonction de transfert $g(t')$ est alors de la forme:

$$g(t') = \frac{1}{2 t_m} \text{ entre } 0 \text{ et } 2 t_m \text{ et}$$

$$g(t') = 0 \text{ pour } t > 2 t_m$$

Couplage des modèles

Ces modèles classiques ne représentent dans la plupart des cas que de grossières approximations de la complexité des systèmes hydrogéologiques. Il est cependant possible de coupler plusieurs de ces modèles entre eux (deux en général), afin de s'approcher de la réalité.

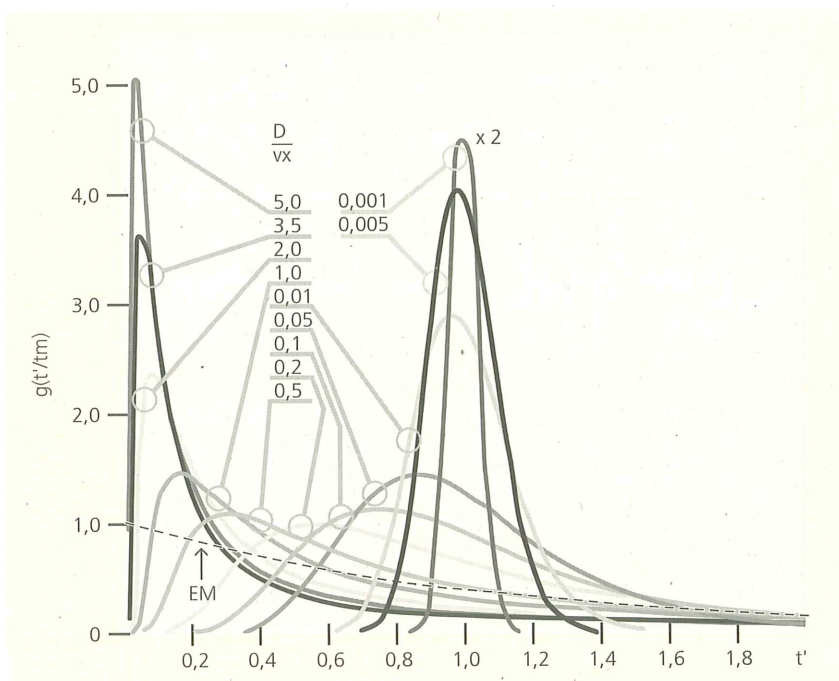


Figure 1.11 Graphe de la fonction $g(t')$ pour le cas DM-C_{FF} et différentes valeurs du paramètre de dispersion D/vx . Le temps de séjour incrémental t' est normalisé par le temps de séjour moyen t_m du traceur dans l'aquifère. x 2 : distorsion à appliquer à l'échelle verticale pour $D/vx=0,001$. La courbe $g(t')$ pour le modèle exponentiel (EM) est montrée pour comparaison. (Zuber, 1986).

Pour deux modèles, le couplage C_{out} sera réalisé par une simple addition des contributions respectives $C_{out(1)}$ et $C_{out(2)}$, pondérées par les fractions p_1 et p_2 (avec $p_2 = 1 - p_1$) de ces modèles intervenant dans le système (Richter *et al.*, 1993):

$$C_{out} = p_1 \times C_{out(1)} + (1-p_1) \times C_{out(2)}$$

Richter *et al.* (1992) ont développé le programme «Multis» qui permet plus de 30 couplages différents. Ce programme compatible DOS est disponible gratuitement auprès de ses auteurs, ou à l'IAEA.

Application à la source de Lutry

La source de Lutry (Savigny) étudiée par le GEOLEP, est la première station d'eau souterraine du réseau fédéral d'observation des isotopes (voir 3.1.2). Cette source, située près de Lausanne sur le territoire de la Commune de Savigny, collecte les eaux d'un aquifère gréseux de la molasse burdigalienne à faciès estuarin. Les débits s'étendent de 2,3 à 110 l x min⁻¹ (Hesske, 1995). Le nombre limité de données disponibles et leur étalement dans le temps nous place dans des conditions peu favorables à l'ajustement d'une courbe. En

revanche, ces conditions sont celles que trouverait un utilisateur quelconque désirant déterminer le temps de séjour souterrain de l'eau d'une source, sans mettre en œuvre tout une batterie de méthodes de traçage. Deux résultats de mesure ont été trouvés dans les archives du GEOLEP pour cette source: en 1985 et en 1992. Ces deux données sont ponctuelles et ne reflètent pas les variations annuelles auxquelles on peut s'attendre et que l'on retrouve en 1996. Les dernières données disponibles (1996) oscillent entre 13,7 et 21,7 UT. Tous les calculs ont été effectués sur ordinateur personnel (compatible DOS), à l'aide du programme Multis (version 3.11) développé par Richter (voir Richter, 1995 ainsi que Richter *et al.*, 1992 et 1993), et gracieusement fourni par la section d'hydrologie isotopique de l'IAEA. La Figure 1.12 montre les résultats des calculs pour les quatre modèles les plus classiques. Les variations du signal d'entrée rendent difficile l'estimation du temps de séjour à l'aide du modèle en piston, car le signal n'est pas amorti par la fonction de transfert. De plus, ce type de modèle est peu compatible avec la géologie de cet aquifère molassique. Le modèle exponentiel, qui correspond bien à la configuration hydrogéologique de la source de Lutry, amortit

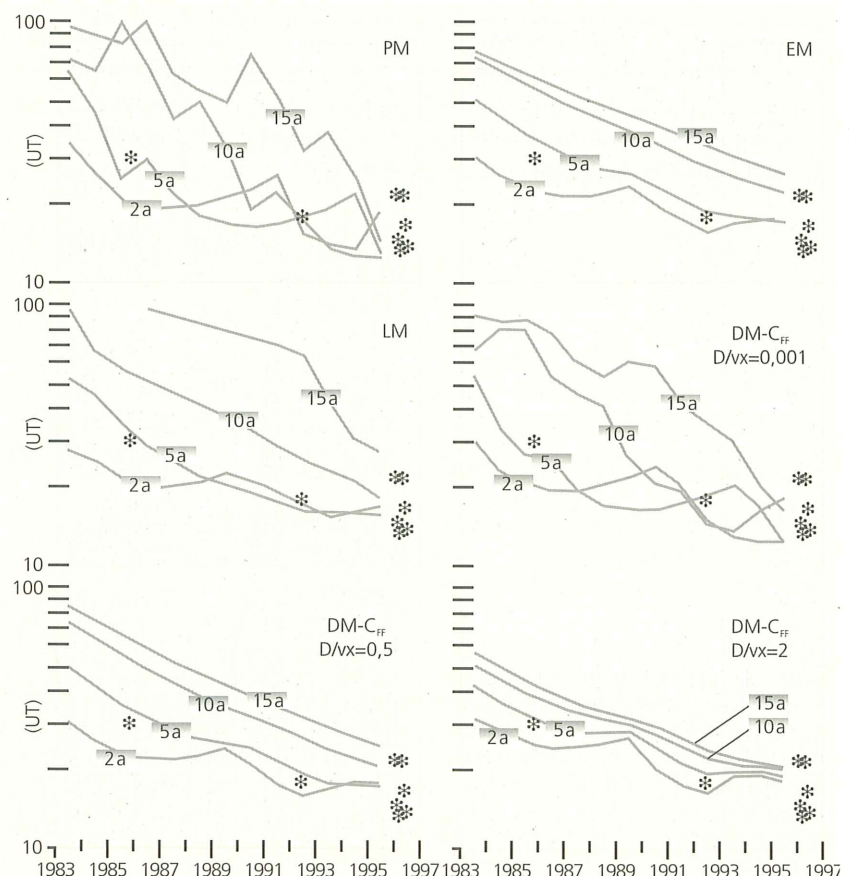
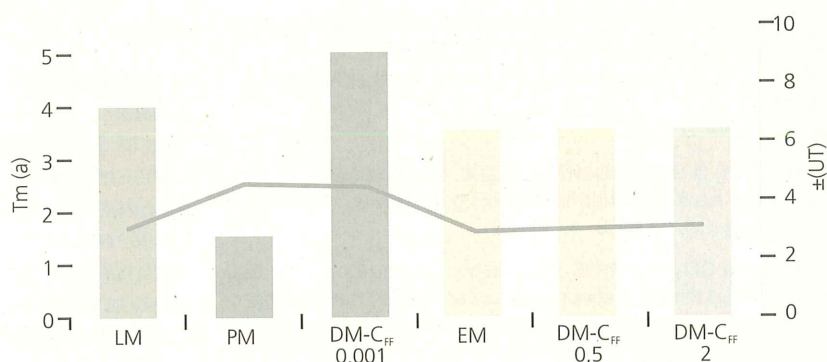


Figure 1.12 Ajustement des modèles piston (PM), exponentiel (EM), linéaire (LM), et dispersif (DM-C_{ff}) sur le signal de sortie en tritium de la source de Lutry (canton de Vaud – Suisse). Les concentrations en tritium mesurées à l'exutoire sont représentées par *. Le temps de séjour calculé est indiqué dans les cadres grisés. Pour le modèle dispersif, trois valeurs extrêmes du paramètre de dispersion D/vx ont été testées. Calculs effectués sous Multis 3.11 (Richter: voir texte ci-dessus pour références).

Figure 1.13 Comparaison des différents temps moyens de séjour (T_m), obtenus par les modèles piston (PM), exponentiel (EM), linéaire (LM), et dispersif (DM- C_{ff}). La courbe en gras donne l'écart entre les valeurs calculées et les valeurs mesurées (en UT). Calculs effectués sous Multis 3.11 (Richter: voir texte ci-dessus pour références).



au maximum les variations du signal d'entrée. Le modèle linéaire donne des résultats proches du modèle exponentiel, mais n'est pas adapté à notre cas puisqu'il suppose que tous les âges contribuent de la même façon à l'écoulement total. Le modèle dispersif (qui est la variante dispersive du modèle piston, donc mal adapté à notre cas) pour un paramètre de dispersion de 0,001 donne des résultats semblables au modèle en piston avec amortissement (voir Figure 1.11). Pour $D/vx = 0,5$, le modèle dispersif est pratiquement identique au modèle exponentiel. La plus grande valeur testée du paramètre de dispersion ($D/vx = 2$) permet de distinguer nettement ce modèle des précédents puisque les temps de séjour courts sont affectés d'un poids maximal, la contribution des eaux anciennes étant pratiquement ignorée.

Le programme Multis fournit une estimation du temps de séjour pour chaque modèle calculé. Deux estimations du temps de séjour sont calculées. Elles correspondent aux deux premières courbes pour lesquelles la corrélation entre les valeurs mesurées et les valeurs calculées est la meilleure. Le modèle exponentiel, qui est le mieux adapté à cet aquifère, donne un temps de transit moyen de 3,5 années. L'autre estimation, de plusieurs dizaines d'années, n'est pas réaliste compte tenu du contexte hydrogéologique.

La Figure 1.13 compare les résultats numériques des différents modèles. La précision de la corrélation (déviations standard donnée en UT) est meilleure pour les modèles linéaires, exponentiels et dispersifs avec $D/vx = 0,5$ et 2, que pour le modèle en piston et son analogue dispersif ($D/vx = 0,001$). Dans tous les cas, la meilleure estimation est comprise entre 1,5 et 5 a, avec une plus forte probabilité pour des valeurs proches de 3,5 a. Ces résultats sont parfaitement en accord avec Balderer (1990) qui estime à quelques années le temps de séjour maximal de l'eau dans ces «systèmes d'écoulement locaux». On notera que si le modèle exponentiel donne bien le même

résultat que le modèle dispersif correspondant ($D/vx = 0,5$), il n'en va pas de même pour le modèle en piston et son proche parent dispersif ($D/vx = 0,001$), qui donnent respectivement 1,5 et 5 a. Cette discordance est probablement un artefact de calcul dû aux fortes variations des valeurs mesurées en 1996. En effet, le programme donne un temps de séjour de 4,5 a pour le modèle dispersif ($D/vx = 0,5$), si l'on effectue les calculs avec la moyenne des valeurs mensuelles de 1996. Dans le cas de cet aquifère du plateau molassique, il est probable que les écoulements souterrains soient court-circuités par un écoulement de sub-surface. Dans ces conditions, il serait intéressant de tester un couplage entre les modèles exponentiel et en piston, analogue à celui utilisé pour le Massenberg (voir 2.1.5). Un tel couplage nécessite une investigation plus poussée des conditions d'écoulement, de la géométrie de l'aquifère, et de la géologie. Malheureusement, une telle étude n'a pas été possible dans le cadre de ce travail.

1.3.2 Modèles à cellules de mélange

Ces modèles sont souvent utilisés pour décrire des processus complexes. Ils se distinguent nettement des modèles empiriques présentés ci-dessus. Ce sont les équations classiques de l'hydrodynamique qui sont prises en compte, et non pas une hypothétique répartition des âges dans l'aquifère. Il est ici admis que les mélanges et les processus de dispersion se font à l'intérieur de cellules interconnectées. Le bilan des masses appliqué à des incréments de temps pour chaque compartiment et pour un écoulement donné, permettent de simuler le transport des masses à travers le système. Les mélanges dans chaque cellule sont considérés comme parfaits. L'estimation des temps de séjour dans un aquifère reste un des problèmes majeurs en hydrogéologie. La modélisation de la répartition des âges dans l'aquifère à l'aide des radioisotopes est un des outils les plus performants qui permette de répondre à ce problème omniprésent en hydrogéologie.

Suggestions de lecture:

ETCHEVERRY, D. & PERROCHET, P., 1999. Reservoir theory ground-water transit-time distributions and lumped parameter models. Proceedings of an international symposium on «Isotope techniques in water resources development and management», IAEA 10-14 mai 1999, CD-ROM.

ETCHEVERRY, D. & PERROCHET, P., 2000. Direct simulation of groundwater transit-time distributions using the reservoir theory. *Hydrogeology J.* 8, 200-208.

HUBERT, P. & OLIVE, P., 1995. Modélisation par une loi gamma de la distribution des temps de séjour de l'eau dans les systèmes hydrogéologiques en régime permanent. Tracer Technologies for Hydrological Systems (Proceeding of a Boulder Symposium, July 1995). IAHS Publ., vol. 229, p. 211-217.

IAEA, 1993. Mathematical models and their applications to isotope studies in groundwater hydrology, Proceedings of a final research coordination meeting held in Vienna, 1-4 June 1993, IAEA-TECDOC-777, 283 p.

IAEA, 1996. Manual on mathematical models in isotope hydrogeology, IAEA-TECDOC-910 (complément à IAEA, 1993), 207 p.

MALOSZEWSKI, P., HARUM, T. & ZOJER, H., 1992. Modelling of environmental tracer data. *Steil. Beitr. z. Hydrogeologie* 43, p. 137-143.

MALOSZEWSKI, P. & ZUBER, A., 1982. Determining the turnover time of groundwater systems with the aid of environmental tracers. *J. Hydrol.* 57, p. 207-231.

MELAYAH, A., BRUCKLER, L. & BARIAC, T., 1996. Modeling the transport of water stable isotopes in unsaturated soils under natural conditions. Part 1: Theory. Part 2: Comparison with field experiments. *Water Resources Research* 32, p. 2047-2065.

SCHLOSSER, P., STUTE, M., DOERR, H., SONNTAG, C. & MUENNICH, K. O., 1988. Tritium/³He dating of shallow groundwater. *Earth and planetary science letters* 89, p. 353-362.

SIEGENTHALER, U., 1972. Bestimmung der Verweildauer von Grundwasser im Boden mit radioaktiven Umweltisotopen (carbone-14, tritium). *Gas - Wasser - Abwasser* 9, p. 283-290.

YURTSEVER, Y., 1995. An overview of conceptual model formulations for evaluation of isotope data in hydrological systems. Tracer Technologies for Hydrological Systems (Proceeding of a Boulder Symposium, July 1995). IAHS Publ., vol. 229, p. 3-12.

ZUBER, A., 1986. Mathematical modeling for the interpretation of environmental radioisotopes in groundwater systems. In *Handbook of environmental isotope geochemistry*, (FRITZ, P. & FONTES, J. Ch., Eds), vol. 2, Elsevier, Amsterdam (1986).

1.4 Autres isotopes du milieu pouvant être utilisés en hydrogéologie

On désigne par isotope du milieu (*environmental isotope*, ou *Umweltisotope*) tout isotope qui n'est pas injecté dans le système pour les besoins de l'étude. Dans cette multitude de nucléides, une vingtaine est utilisée en hydrogéologie. Pour certains isotopes comme le tritium, la quantité présente naturellement dans l'environnement peut être fortement modifiée par des apports artificiels. Nous allons passer en revue quelques isotopes du milieu utilisés en hydrogéologie, en nous attachant particulièrement aux isotopes du carbone, du soufre, et de l'azote.

1.4.1 Isotopes du carbone

Il existe trois isotopes naturels du carbone:

- ¹²C - commun, stable,
- ¹³C - rare, stable,
- ¹⁴C - très rare, radioactif (T_{1/2}=5730 a).

Le carbone-14 se désintègre en émettant un rayonnement β⁻. Il est produit naturellement dans l'atmosphère, et artificiellement par les essais nucléaires. Le principe d'utilisation de cet isotope du carbone pour la datation des eaux est le même que le principe d'utilisation du tritium.

Le carbone est très réactif avec l'environnement. On doit tenir compte en particulier des interactions avec les roches carbonatées. Ces corrections effectuées, l'activité en carbone-14 de l'échantillon est comparée à un standard d'acide oxalique et exprimée en pourcentage du carbone moderne (pcm). L'activité du standard est de 100 pcm. Par exemple, un arbre mort il y a 5730 a contiendra 50 pcm, soit 50 % du carbone-14 contenu dans le standard.

La composition en carbone-13 est fonction de la nature de l'eau qui alimente le système d'écoulement souterrain, et des possibles interactions avec les roches. On utilise le carbone-13 parallèlement au carbone-14 pour détecter d'éventuels échanges de carbone avec l'environnement (Mazor, 1991; Mook, 1980; Moser, 1992).

1.4.2 Isotopes du soufre

Le soufre est constitué des quatre isotopes stables ^{32}S , ^{33}S , ^{34}S et ^{36}S , le premier étant de loin le plus abondant (près de 95 %), suivi du ^{34}S qui représente plus de 4 % du soufre total. Il existe également de nombreux isotopes radioactifs à courte durée de vie et d'origine artificielle.

Les rapports isotopiques du soufre dans les sulfates ($\delta^{34}\text{S}_{\text{sulfates}}$) sont souvent interprétés en liaison avec le $\delta^{18}\text{O}_{\text{sulfates}}$ de l'oxygène des sulfates. Le soufre des eaux souterraines provient, outre des précipitations, de la dissolution des évaporites sulfatées ou de la dissolution des sulfures. Au cours de la cristallisation des évaporites, le sulfate dissous s'appauvrit en isotopes lourds au profit des cristaux qui ont tendance à s'en enrichir. La composition isotopique des évaporites marines reflète, à ce fractionnement près, celle du sulfate océanique, variable au cours des temps géologiques. Il est ainsi possible de différencier les évaporites d'âge différent. On peut donc distinguer des sulfates provenant d'une évaporite du Trias de sulfates d'évaporites du Cambrien par exemple. De la même façon, on pourra distinguer les sulfates naturels actuels des sulfates d'origine industrielle (Krouse, 1980; Moser, 1992; Pearson & Rightmire, 1980).

1.4.3 Isotopes de l'azote

L'azote possède deux isotopes stables: ^{14}N et ^{15}N , et de nombreux radioisotopes à courte durée de vie. On le trouve dans les eaux souterraines sous forme d'ions nitrates, nitrite, ammonium, ou dans les acides aminés. Une mesure combinée de l'azote-15 et de l'oxygène-18 dans les nitrates permet généralement de distinguer les diverses origines de l'azote. Il est possible par exemple,

sur la base des $\delta^{15}\text{N}_{\text{nitrates}}$ et des $\delta^{18}\text{O}_{\text{nitrates}}$, de différencier les nitrates d'origine organique des nitrates d'origine industrielle (Letolle, 1980; Moser, 1992).

1.4.4 Autres isotopes

Gascoyne et Kotzer (1995) donnent un résumé des isotopes les plus couramment utilisés en hydrogéologie (Tableau 1.1). Les possibilités de datation à l'aide des gaz rares, argon et krypton, sont présentées par Oeschger (1972). Le krypton-85 pourrait remplacer dans quelques temps le tritium si les recherches menées entre autres à l'Institut de Physique de l'Université de Berne progressent. En effet, mis à part les faibles interactions avec le milieu que subit cet isotope, un de ses avantages est que sa teneur augmente dans l'atmosphère, contrairement au tritium. Mais les quantités dissoutes dans l'eau sont très faibles, ce qui nécessite des échantillons de plusieurs centaines de litres. En fait, il est plus pratique d'extraire le gaz de l'eau souterraine sur le terrain (Kropf, 1996).

Dans les méthodes de traçage en forage, d'autres isotopes sont utilisés à la place du tritium, qui nous l'avons vu en 1.2.1 n'est pas utilisable dans ce domaine. On utilise le plus souvent le brome-82 qui possède une période de 36 heures. Le chrome-51, dont la période est de 27,8 jours, est également adéquat. Ces deux isotopes ont l'avantage d'être peu absorbés dans les sols (sables, argiles, etc.). Par rapport aux essais avec des traceurs fluorescents, les prélèvements périodiques sont entièrement supprimés et l'on peut visionner et interpréter immédiatement les résultats sur le terrain. Les analyses d'échantillons en laboratoire ne sont plus nécessaires (Parriaux *et al.* 1988).

Tableau 1.1 Application des isotopes en hydrogéologie (d'après Gascoyne & Kotzer, 1995). a: années, w: semaines, d: jours. Rappelons que l'efficacité d'une méthode de datation est avant tout liée à la qualité des informations hydrogéologiques dont on dispose pour interpréter les données isotopiques.

Isotope	T _{1/2}	Echelle de datation	Applications
^{39}Ar	269 a	10 ³ a	datation directe
$^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$	stable	-	datation directe
^{36}Cl	300'000 a	10 ⁶ a	datation directe et origine des sels
^3He	stable	10 ² a	datation indirecte du tritium
^4He	stable	10 ⁷ a	datation directe
^{81}Kr	210'000 a	10 ⁶ a	datation directe
^{85}Kr	10,8 a	40 a	datation directe, indicateur de contamination
^{129}I	1,6 x 10 ⁷ a	5 x 10 ⁷ a	datation directe et origine des sels
$^{15}\text{N}/^{14}\text{N}$	stable	-	origine de la pollution par les nitrates
^{222}Rn	3,8 d	3 w	datation Ra/He, caractérisation des lignes d'écoulement, traceur de l'eau récente
^{226}Ra	1 600 a	10 ⁵ a	études de migration
$^{34}\text{S}/^{32}\text{S}$	stable	-	origine des sels, et oxydoréduction
$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	stable	-	origine des sels
$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	250'000 a	10 ⁶ a	migration d'uranium, mesures de potentiels

Deuxième partie:

Domaines d'application des méthodes isotopiques

Après avoir présenté les connaissances nécessaires à l'utilisation des isotopes de l'oxygène et de l'hydrogène en hydrologie, nous allons balayer les principaux champs d'application de ces isotopes en hydrologie des eaux souterraines, en commençant par les eaux naturelles non polluées. Nous aborderons en priorité la gestion des ressources en eau, domaine dans lequel toutes les potentialités des techniques isotopiques sont mises en valeur. Le chapitre traitant des communications entre les eaux souterraines et les eaux de surface est à la frontière de l'hydrogéologie. Cette incursion dans le domaine des eaux de surface était nécessaire, mais nous ne traiterons pas spécifiquement dans cet ouvrage des problèmes de la neige et des glaciers, des cours d'eau, ni des lacs. Viennent ensuite deux chapitres spécifiquement consacrés à l'influence des activités humaines sur les eaux souterraines. Le premier traite de l'apport des isotopes à l'étude de la pollution des eaux souterraines, le deuxième, plus court, donne quelques exemples d'applications en génie civil. Nous terminerons cette synthèse par l'hydrologie des instabilités de versant. Ce domaine très prometteur pour les techniques isotopiques n'en est encore qu'à ses débuts, mais les performances des isotopes de l'oxygène et de l'hydrogène dans ce domaine laissent entrevoir un bel avenir.

2.1 Exploitation et gestion des ressources en eau

C'est sans doute dans la gestion des ressources en eau que les potentialités d'utilisation des méthodes isotopiques sont le mieux mises en valeur. La diversité des applications s'étend de la localisation des zones d'alimentation au calcul de la recharge, en passant par la détermination du temps moyen de séjour, la surveillance de l'exploitation d'un aquifère, ou encore les mécanismes de salinisation. Autant de problèmes que se posent les praticiens responsables des ressources en eaux souterraines, et que les techniques isotopiques peuvent résoudre efficacement.

2.1.1 Altitude moyenne de la zone d'alimentation

Pour évaluer les ressources en eau souterraine et pour définir les limites des zones de protection d'un aquifère, il est indispensable de localiser la zone d'alimentation. L'effet d'altitude que subissent les isotopes stables (voir 1.1.7) permet souvent de résoudre ce type de problème dans les régions à topographie marquée. Il est en effet possible de déterminer l'altitude moyenne de l'aire d'alimentation de l'eau d'une source en situant sa composition isotopique moyenne sur une droite de corrélacion régionale entre un des isotopes stables et l'altitude.

Cette droite est construite à partir des teneurs des pluies ou de préférence de sources aux bassins versants bien connus sélectionnées à différentes altitudes. Pearson *et al.* (1991) donnent la composition isotopique moyenne en fonction de l'altitude moyenne de la zone d'alimentation pour chaque région climatique de la Suisse. Bien qu'il soit préférable de déterminer cette relation sur le site étudié et en fonction des saisons, cette base de données peut être utilisée à défaut d'une campagne de mesure spécifique.

Le fractionnement isotopique pouvant avoir de nombreuses origines, on doit s'assurer que seule l'altitude d'infiltration est responsable des variations isotopiques. Dans certains cas, les variations saisonnières, les échanges géothermiques et l'évaporation modifient fortement les rapports en isotopes stables et peuvent aller jusqu'à masquer l'effet d'altitude. Pour des eaux infiltrées à la même altitude, des différences de composition isotopique peuvent survenir si une partie de l'eau s'est infiltrée quelques milliers d'années auparavant pendant une période où le climat était sensiblement différent du climat actuel (voir 1.1.10). De l'eau à fort marquage isotopique provenant d'un lac ou d'eau de mer (voir 2.4) peut également influencer la signature isotopique de l'aquifère. Pour finir, dans des situations marginales mais malheureusement fort probables, la présence d'un dépôt de déchets peut modifier la composition en isotopes des eaux souterraines, les lixiviats de décharges étant pour la plupart enrichis en isotopes stables et en tritium (voir 2.5.5).

Une intéressante application de ce type (datant des années 1960-1970) a été la localisation de la zone d'alimentation des eaux minérales d'Evian à partir d'une étude fine de la variation des teneurs en oxygène-18 des précipitations et des sources sur la rive sud du Léman (Blavoux et Letolle, 1995).

Deux hypothèses ont été proposées pour l'origine de l'eau d'Evian (Figure 2.1). L'hypothèse 1 suppose que l'alimentation de l'aquifère se produit sur le plateau de Vinzier là où la couverture morainique est discontinue. L'hypothèse 2 attribue au chevauchement des Préalpes calcaires sur le flysch ultrahelvétique un rôle de drain déversant dans les sables interglaciaires des eaux en provenance des massifs montagneux qui dominent vers le sud le plateau de Vinzier.

Le $\delta^{18}\text{O}$ de la source de Cachat à Evian s'élève à -10,55 ‰ pour la période 1964-1974 alors que celui de la pluie à la même altitude (385 m) s'élève à -9,25 ‰. Cette teneur, de 1,30 ‰ plus basse que celle de la pluie, signifie une aire d'alimentation plus haute de 465 m, compte tenu du gradient de 0,28 ‰ pour 100 m mesuré sur les pluies du versant. L'altitude moyenne de la zone d'alimentation des eaux minérales d'Evian est

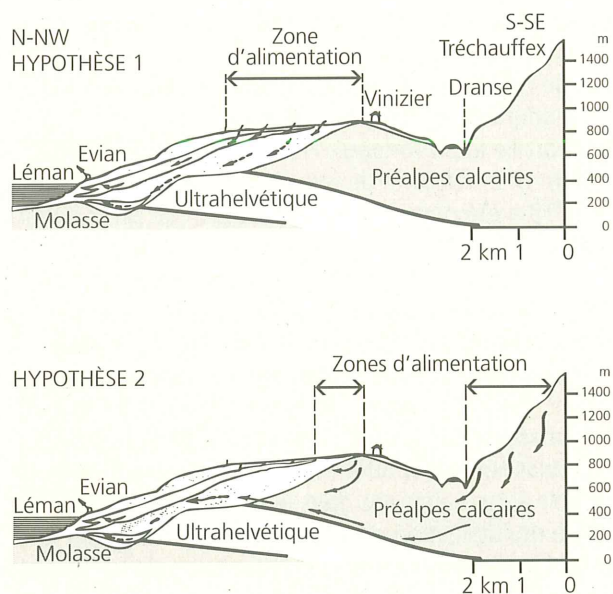


Figure 2.1 Détermination de l'altitude moyenne de la zone d'alimentation de l'eau minérale d'Evian (Blavoux et Letolle, 1995).

donc égale à 850 m (385 + 465), ce qui la limite à la région supérieure du plateau de Vinizier en accord avec l'hypothèse 1.

Dans certains types d'aquifères (réseaux karstiques à plusieurs zones d'alimentation, roches fracturées, aquifères multi-stratifiés etc.), la seule altitude moyenne de recharge ne permet pas de localiser la zone d'alimentation. Mais dans la plupart des cas, ce problème, auquel sont confrontés les exploitants de ressources en eaux souterraines devrait pouvoir être résolu par confrontation des données isotopiques, de la géologie, et de l'hydrologie.

2.1.2 Recharge des aquifères à travers la zone non-saturée

Une question clé pour l'évaluation des ressources en eau souterraine est de savoir si l'aquifère est effectivement rechargé par les eaux de pluie. Si la quantité des précipitations est faible et sporadique, cette question reste souvent ouverte. Les méthodes isotopiques contribuent à la résolution des problèmes suivants:

- Qualitativement, y a-t-il recharge? On retrouve ce problème dans les zones où l'occurrence d'une recharge n'est pas certaine, et particulièrement dans les zones arides. Pour la préservation des ressources en eau, et pour l'évaluation des risques de pollution (voir 2.5), il est de plus nécessaire de déterminer où a lieu l'infiltration vers l'aquifère.

- Quantitativement, quelle est la recharge annuelle à travers la zone non-saturée? Cette question est d'une grande importance pour l'évaluation du renouvellement des ressources en eaux souterraines, sachant que l'évapotranspiration à partir du sol est le paramètre le plus difficile à estimer dans le bilan en eau.

Dans les nappes en zone aride ou semi-aride, la présence de tritium ne signifie pas forcément que la recharge a lieu. De petites quantités d'eau récente peuvent atteindre l'eau de réservoirs anciens dont la capacité diminue globalement par évapotranspiration. Il est également possible que des eaux peu profondes soient «contaminées» par échange avec l'humidité de la zone non saturée. Au contraire, la zone non saturée peut être si profonde que l'eau rechargée ne s'est pas encore mélangée avec l'eau de la nappe. Dans ce cas, bien que la recharge soit récente, l'eau de l'aquifère ne sera pas chargée en tritium.

La recharge est un mécanisme complexe. L'infiltration à l'intérieur de la zone non-saturée est caractérisée par deux processus (Buttle & Leigh, 1995; Diab *et al.*, 1988): 1) une infiltration d'eau de pluie à travers la matrice du sol, cette eau se mélangeant avec de l'eau déjà évaporée et enrichie en isotopes stables, et 2) une infiltration rapide et profonde suivant des réseaux de macropores qui court-circuitent la partie superficielle de la zone non-saturée. On en déduit les deux composantes de la recharge, une composante lente (recharge distribuée), et une composante rapide (recharge localisée). Plusieurs méthodes sont utilisées pour estimer quantitativement la recharge:

- Dans la méthode du tritium total, on calcule un bilan entre la quantité totale de tritium dans les précipitations et dans l'eau qui s'est infiltrée dans la zone non-saturée. $[^3\text{H}]_j$ et W_j étant respectivement l'activité en tritium et la teneur en eau (en mm) de la couche j de la zone non-saturée, $[^3\text{H}]_i$ et P_i l'activité en tritium et la quantité d'eau des précipitations totales pour un intervalle de temps i (un mois par exemple), la participation r des précipitations à la recharge de l'aquifère est donnée par la relation:

$$r = \frac{\sum_j ([^3\text{H}]_j \times W_j)}{\sum_i ([^3\text{H}]_i \times P_i)}$$

La précision de l'estimation de la recharge par les précipitations est donc fonction de la précision de la mesure du tritium dans l'humidité du sol.

- La localisation en profondeur du pic en tritium de 1963 (voir 1.2.4 et 1.2.5) a souvent été utilisée pour calculer la vitesse verticale d'infiltration de l'eau dans la zone non saturée. La position de ce pic sur un profil du tritium dans l'humidité d'un sol donne la distance parcourue par l'eau entre 1963 et la date de prélèvement de l'échantillon (Mazor, 1991). On considère ici un écoulement de type «piston». Si le pic de 1963 n'est pas mesurable, on injecte souvent, sous la zone active des racines, de l'eau artificiellement chargée en tritium.
- En l'absence de ce pic, il est également possible de corréliser «graphiquement» les activités mesurées dans les pluies locales, et les activités mesurées dans l'eau du sol.

Un aquifère du Transvaal (Afrique du Sud) a été étudié par cette dernière méthode par Bredenkamp *et al.* (1974). Les échantillons ont été collectés à la main, et manipulés avec précaution pour éviter tout échange avec l'air. L'humidité a été mesurée en laboratoire sur chaque échantillon, pesée, et son activité en tritium mesurée. La Figure 2.2 montre l'activité en tritium des précipitations à Pretoria et l'activité des échantillons en fonction de la profondeur. Le pic de 1963 n'est pas visible. Le profil a été effectué en décembre 1971, et la courbe du tritium dans les précipitations a été corrigée pour tenir compte de la décroissance radioactive depuis

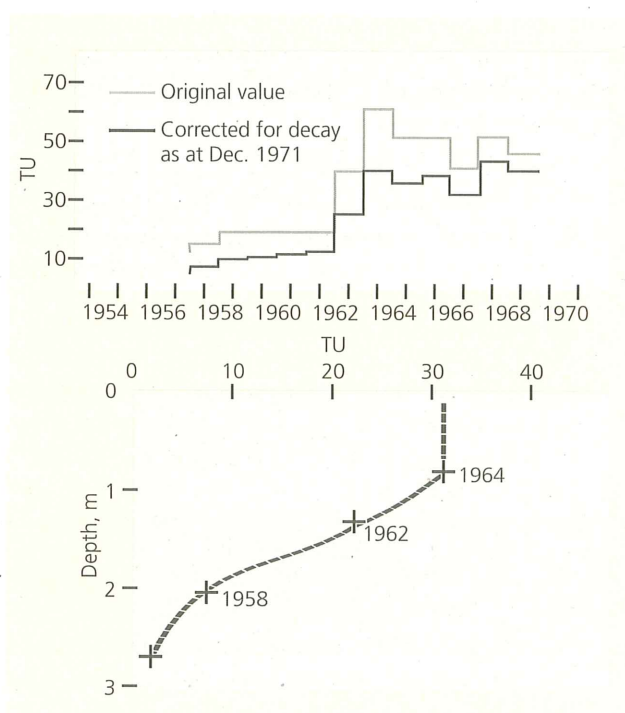


Figure 2.2 Tritium dans les précipitations à Pretoria (en haut), et dans un profil de sol au Transvaal, Afrique du Sud (en bas). D'après Bredenkamp *et al.* (1974) modifié par Mazor (1991). TU = unité tritium.

cette date. Cette courbe corrigée indique 7 UT pour les précipitations de 1958, une augmentation à plus de 20 UT au cours de la saison des pluies de 1962, et à plus de 30 UT en 1964. Ces valeurs ont été utilisées pour identifier les dates de même activité en tritium en fonction de la profondeur. Par exemple, la zone présentant une humidité de même activité que les pluies de 1958 a été observée en 1971 à 2 m de profondeur. L'eau d'infiltration s'est déplacée de 2 m entre 1958 et 1971 (soit 13 années), indiquant une vitesse d'infiltration moyenne de $0,15 \text{ m} \times \text{a}^{-1}$. L'activité de 1962 a été observée à une profondeur de 1,4 m, après 9 années, ce qui indique une vitesse moyenne de $0,16 \text{ m} \times \text{a}^{-1}$. Pour le front de 1964, on obtient $0,11 \text{ m} \times \text{a}^{-1}$. Les variations dans les vitesses d'infiltration calculées sont dues soit à des différences dans les propriétés du sol, soit à des variations dans le régime des pluies. Une simple multiplication de la teneur en humidité par la vitesse d'infiltration donne une estimation de la recharge moyenne sur une période donnée.

L'étude d'un aquifère nécessite parfois un très grand nombre de mesures. Pour le bassin de Roswell (Nouveau-Mexique, USA) par exemple, Gross *et al.* (1980) ont effectué plus de 3000 mesures du tritium d'eaux souterraines et d'eaux de surface, ainsi que près de 200 déterminations des $\delta^{18}\text{O}$ et des $\delta^2\text{H}$. Les mesures du tritium mettent en évidence deux composantes principales dans la recharge de l'aquifère. La composante rapide (dont l'activité en tritium, supérieure à 20 UT, est élevée), est constituée d'eau de fonte des neiges et de ruissellement au cours d'orages d'été. Une composante lente provenant d'aquifères adjacents présente des activités plus faibles (<10 UT). La différenciation des composantes de la recharge par les isotopes stables n'a pas été efficace. Ceci est dû soit à des mélanges d'eaux souterraines, soit à des mélanges d'humidités atmosphériques différentes, soit à une combinaison des deux phénomènes.

Les zones de recharge peuvent également être localisées sur des cartes de teneurs en radio-isotopes, ce qui équivaut qualitativement à des cartes d'âges radiométriques. Yurtsever & Payne (1979) ont utilisé cette méthode pour une étude régionale de la recharge d'un aquifère de la péninsule du Qatar. Le tritium a été mesuré dans un grand nombre de forages d'un aquifère peu profond, ce qui a permis de tracer une carte des iso-activités en tritium. Les auteurs ont simplement considéré que la recharge se faisait des zones à forte activité en tritium vers les zones à faible activité.

L'étude de la recharge des aquifères nécessite l'emploi d'un radiotraceur. Le tritium est ici l'outil idéal, puisque les techniques actuelles permettent, comme nous allons le voir au paragraphe suivant, de mesurer de faibles activités en tritium dans l'humidité de la zone non-saturée.

2.1.3 Évaporation à travers la zone non-saturée

En climat aride ou semi-aride, l'évaporation de l'eau dans la zone non-saturée peut être plus forte que la recharge de l'aquifère. L'appauvrissement des ressources en eau qui s'en suit est catastrophique dans certaines régions. La compréhension des mécanismes de l'évaporation aide à mieux gérer les ressources en eau ou par exemple à planifier l'irrigation. L'étude de l'évaporation à travers la zone non-saturée est l'objet de nombreuses publications qui s'orientent de plus en plus vers la modélisation mathématique (Mathieu & Bariac, 1995; Melayah *et al.*, 1996). Que ce soit pour estimer la recharge ou l'évaporation, toute étude isotopique de l'eau contenue dans la zone non-saturée nécessite d'extraire de faibles quantités d'humidité par distillation sous vide en évitant tout fractionnement. Des tests de sensibilité menés sur différents échantillons de sol (Araguas-Araguas *et al.*, 1995) ont montré que le distillat est appauvri de 5 à 10 ‰ en ^2H , et de 0,3 à 0,5 ‰ en ^{18}O par rapport au percolat (eau mobile du sol). Ce fractionnement au cours de la distillation en laboratoire dépend fortement du type de sol. Les interprétations des analyses isotopiques dans la zone non-saturée sont donc systématiquement entachées d'une erreur due au procédé d'extraction de l'eau et aux faibles quantités d'eau mises en jeu.

Sous climat semi-aride, l'eau des sols tend à montrer un profil caractéristique de teneurs en deutérium et en oxygène-18 (voir Figure 2.3). Un sol contenant une nappe superficielle est soumis à un régime évaporatoire avec équilibre de flux. Il se développe à partir de la nappe un enrichissement de l'eau en isotopes lourds vers le haut. Généralement, la profondeur de la nappe et la texture du sol permettent le développement près

de la surface d'une zone où le flux d'eau vers l'atmosphère intervient essentiellement sous forme de vapeur. La courbe isotopique présente alors deux parties distinctes:

- Une zone d'enrichissement d'allure exponentielle entre la nappe et une profondeur z_{ef} proche de la surface. Cette portion du profil correspond à un transit d'eau sous forme mixte, vapeur et liquide.
- Une zone à évolution plus ou moins linéaire entre z_{ef} et la surface où les teneurs en isotopes lourds diminuent vers le haut. Le transit d'eau dans cette partie sèche du profil s'effectue sous forme de vapeur. L'appauvrissement en isotopes lourds est le résultat d'un mélange par diffusion entre l'eau qui transite et une vapeur d'eau atmosphérique plus pauvre en isotopes lourds.

Le plan correspondant au maximum de l'enrichissement en isotopes lourds à la cote z_{ef} est appelé front d'évaporation. Au-dessous de ce front, on a une zone de transfert de flux mixte, et au-dessus une zone de transfert de flux de vapeur.

La modélisation isotopique de ce système permet une évaluation de la perte évaporatoire E de la nappe à travers les deux zones du sol en régime permanent (Barnes & Allison, 1988). Sans entrer dans le détail des calculs, nous donnerons uniquement les deux équations principales. Pour la zone de transfert de flux mixte, le taux d'évaporation E est donné par la relation:

$$E = D_{\text{liq}}^i \times \tau \times \frac{\theta}{Z_i}$$

D_{liq}^i étant la diffusivité de l'isotope i dans l'eau, τ la tortuosité du sol (rapport entre la distance effectivement parcourue par le fluide et la distance linéaire séparant le point de départ du point d'arrivée), θ l'humidité volumique du sol, et Z_i la distance de diffusion de l'espèce isotopique dans le sol.

Pour la zone de transfert d'eau sous forme de vapeur, le taux d'évaporation E est donné par la relation:

$$E = D_{\text{atm}}^i \times \tau \times \frac{(n-\theta)}{\rho_w} \times z_{\text{ef}} \times (1 - h_{\text{atm}}) \times N_{\text{sat}}$$

D_{atm}^i étant la diffusivité de l'isotope i dans l'air, n la porosité du sol, ρ_w la masse volumique de l'eau, h_{atm} l'humidité relative de l'air, et N_{sat} la teneur en vapeur d'eau du sol. La distance de diffusion Z_i de l'espèce isotopique dans le sol est déterminée en tenant compte de la répartition des teneurs isotopiques en fonction de la profondeur et de tous les paramètres physiques connus. La tortuosité doit être estimée en fonction de la nature du sol.

Différents types de sols d'anciennes terrasses quaternaires du fleuve Niger ont été étudiés suivant cette

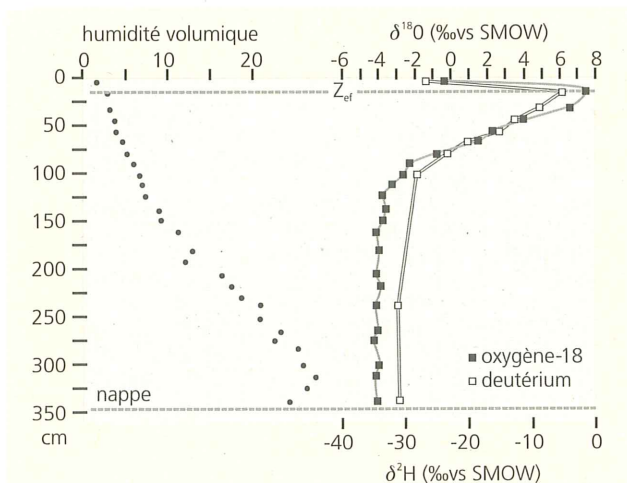


Figure 2.3 Profil vertical des teneurs en eau, en deutérium et en oxygène-18 au site de Namardé Goungou (Niger), en avril 1988. (d'après Taupin *et al.*, 1992).

méthode par Taupin *et al.* (1992). La région appartient climatologiquement à la zone sahélienne soumise à l'influence du front intertropical qui sépare la masse d'air sec se dirigeant vers le sud-ouest et la masse d'air humide se dirigeant vers le nord-est (mousson). La position géographique du front intertropical varie au cours de l'année en fonction de l'inclinaison des rayons solaires. Ce mouvement engendre dans cette région une longue saison sèche (d'octobre à mai), et une courte saison humide (de juin à septembre). Les précipitations annuelles moyennes à Niamey sont d'environ 555 mm, mais les variations d'une année à l'autre sont très élevées. L'humidité relative est également corrélée avec les déplacements du front, qui engendre une variation

importante de l'humidité au cours de l'année, de 17% en février à 75% en septembre en moyenne. La température moyenne est de 30°C.

La plupart des caractéristiques physiques des sols ont été mesurées (humidité volumique, densité, porosité) ou estimées (tortuosité). La variation de température dans le sol étant faible, les auteurs ont admis une température constante de 30°C. Les variables suivantes, dépendantes de la température, ont alors pour valeurs:

$$N_{\text{sat}} = 30,4 \times 10^{-3} \text{ kg} \times \text{m}^{-3}, D_{\text{atm}} = 0,264 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \times \text{s}^{-1}$$

et

$$D_{\text{liq}} = 2,6 \times 10^{-9} \text{ m}^2 \times \text{s}^{-1}$$

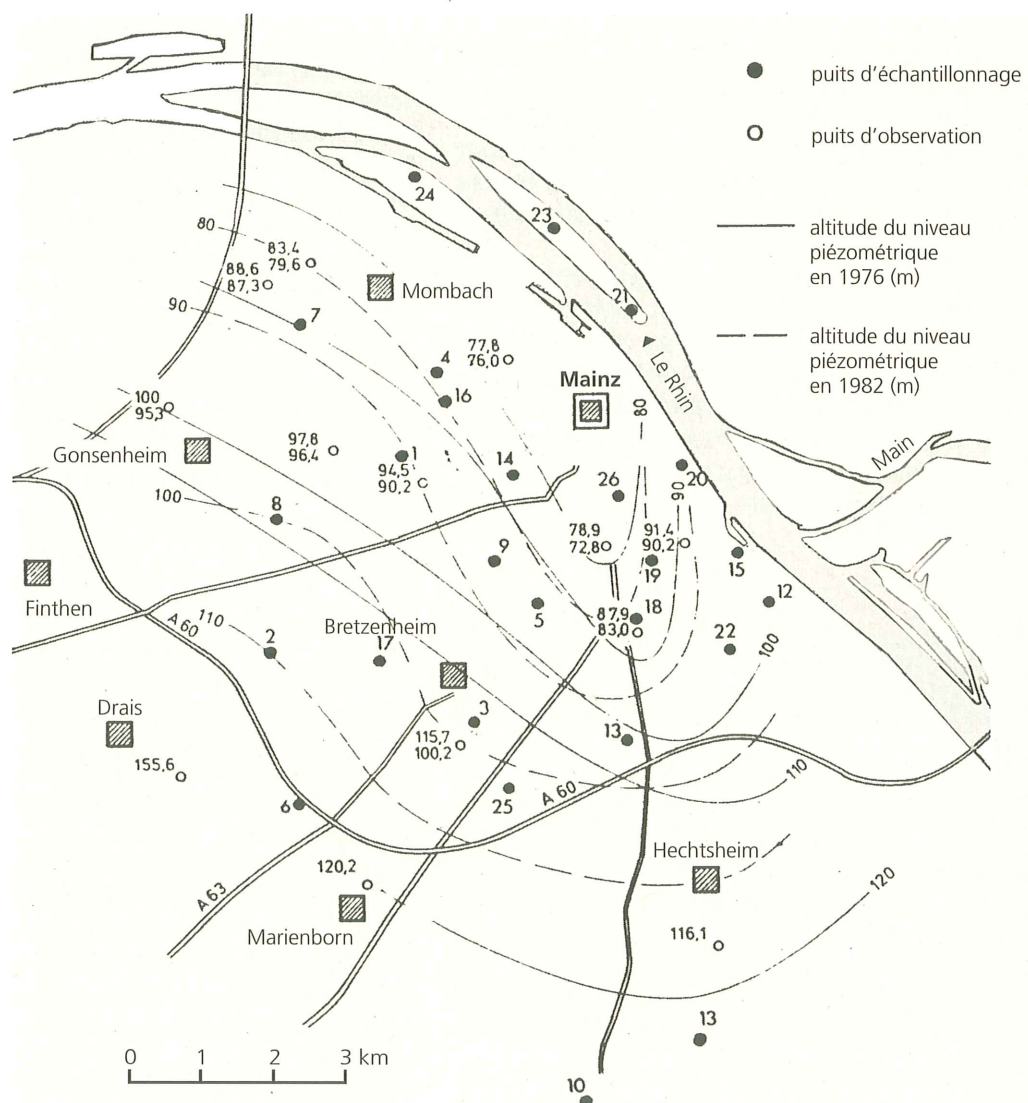


Figure 2.4 Sites d'échantillonnage et lignes piézométriques du bassin nord-est de Mainz (d'après Geyh & Sonne, 1983).

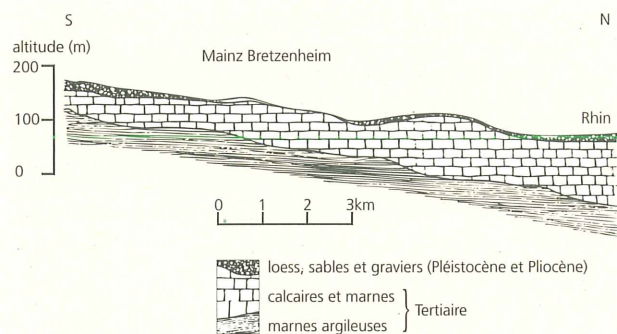


Figure 2.5 Profil géologique sud-nord de l'aquifère du bassin nord-est de Mainz (d'après Geyh & Sonne, 1983).

Pour le profil le plus marqué par l'évaporation (site de Namardé Goungou, Figure 2.3), les auteurs ont pu calculer le taux d'évaporation sur les deux parties de la courbe isotopique:

- Zone de transfert de flux mixte: Le paramètre le plus mal connu est la tortuosité (0,3 pour une argile et 0,67 pour un sable grossier). Le sol étant principalement composé de sables moyen et fin et d'un peu d'argile, les auteurs ont choisi une valeur de la tortuosité entre 0,6 et 0,67. Après estimation du paramètre Z_i , les évaporations obtenues varient entre 13 et 21 mm $\times$ a⁻¹ pour une profondeur de la nappe de 350 cm.
- Zone de transfert de flux de vapeur: En faisant varier l'humidité entre 20 et 30% (valeurs moyennes pendant la saison sèche), l'évaporation calculée s'étend de 11 à 15 mm $\times$ a⁻¹.

Les intervalles des valeurs d'évaporation mesurés pour les deux zones de transfert coïncident assez bien, ce qui montre un état d'équilibre des flux à travers le sol. La modélisation donne selon ces auteurs des résultats cohérents et comparables à la méthode d'estimation de l'évaporation par bilan chimique des profils en chlorures. Ce modèle rend bien compte, dans le cas d'un profil proche de l'équilibre, des variables qui vont déterminer l'importance du flux évaporatoire à travers le sol (état hydrique du profil, profondeur de la nappe, texture du sol).

2.1.4 Bilan en eau d'un aquifère

Afin de prévenir toute surexploitation, on doit surveiller en continu le bilan entre l'alimentation de l'aquifère et son exploitation par des puits. Geyh & Sonne (1983) ont testé l'applicabilité des méthodes isotopiques pour suivre l'évolution des réserves en eau d'un aquifère en cours d'exploitation sur le bassin nord-est de Mainz. L'étude a montré que les effets de l'exploitation d'un champ de captage sur le bilan en eau d'un aquifère peuvent être mis en évidence par le suivi du ¹⁴C, si les âges des eaux dépassent quelques milliers d'années, et par le tritium pour les aquifères récents.

Dans ces eaux destinées à la consommation courante, l'usage d'autres traceurs comme les sels, les substances fluorescentes, ou les radio-traceurs aurait probablement apporté plus de problèmes (techniques, sanitaires, politiques ou éthiques) que de solutions. Les variations des isotopes stables en fonction du temps et après mélange auraient été trop faibles pour permettre de distinguer les différentes composantes de l'eau. L'idéal était donc d'utiliser des marqueurs radioactifs déjà présents dans l'eau. Ces eaux étant âgées au maximum de 40'000 ans, c'est une étude du ¹⁴C ($T_{1/2} \approx 5730$ a) qui a été choisie. Il a fallu cependant tenir compte des problèmes d'instabilité chimique du carbone dans l'environnement (voir 1.4.1). Classiquement, le gaz carbonique de l'eau réagit avec les carbonates et les feldspaths de l'aquifère, ce qui peut diminuer la quantité de ¹⁴C dans l'eau de plus de 60 %. L'âge de l'eau est donc surestimé si l'on n'effectue pas de correction pour tenir compte de ces réactions chimiques. Ici, aucune correction n'a été effectuée, car selon les auteurs, l'étude porte sur des intervalles courts par rapport à l'échelle de temps accessible par le ¹⁴C. On ne s'intéresse pas ici à l'âge absolu de l'eau, mais seulement aux variations relatives de concentration en ¹⁴C. Des corrections auraient uniquement décalé les âges par rapport aux âges actuels. De plus, les $\delta^{13}\text{C}$, également mesurés sur tous les échantillons, sont constants entre 5000 et 40'000 années, ce qui exclut tout changement significatif en ¹⁴C dû à des réactions chimiques entre l'eau et la roche aquifère. Le bassin s'étend sur 75 km² (dont 15 km² sont urbanisés). Il est limité à l'est et au nord par le Rhin (Figure 2.4). L'eau souterraine s'écoule du sud et de l'ouest vers le Rhin. L'aquifère constitué de calcaires aquitaniens est épais de 80 m (50% de marnes imperméables à porosité de 1 à 1,5%). Il est recouvert de 20 m de loess (Figure 2.5).

La recharge annuelle totale est estimée entre 4 et 9 $\times 10^6$ m³. Entre 1969 et 1977, on pompait annuellement 8,5 $\times 10^6$ m³ d'eau, ce qui a entraîné une baisse du niveau de la nappe de 0,5 à 4 m $\times$ a⁻¹. Par la suite, une exploitation plus lente et plus constante, ainsi que

des pluies plus abondantes, ont permis de rétablir le niveau de la nappe.

En admettant une surface de 75 km², 1% de porosité effective et un aquifère de 80 mètres de puissance, le volume total en eau atteint 60 x 10⁶ m³. Depuis 1976, une baisse du niveau de la nappe de 2 m par année a été provoquée par un déficit annuel de 1,5 x 10⁶ m³, alors que la recharge de l'aquifère était de 7 x 10⁶ m³ (115 mm). L'incertitude de cette estimation est proche de 30 à 50%. De plus, on ne sait toujours pas si certaines parties de l'aquifère sont plus touchées que d'autres par la surexploitation. Dans ce contexte, les analyses isotopiques peuvent constituer un outil très performant puisqu'elles sont effectuées sur des échantillons provenant de puits distincts.

Variations temporelles en ¹⁴C et leur interprétation hydrogéologique (Figure 2.6):

Le ¹⁴C (voir 1.4.1) a été mesuré dans les puits d'exploitation tous les deux ans et a permis d'établir un bilan entre prélèvement d'eau et recharge de la nappe.

Dans les zones d'alimentation de l'ouest et du centre, les âges isotopiques varient entre 2000 et 30'000 ans. Malgré cet étalement des valeurs, la plupart des échantillons collectés entre 1969 et 1973 montrent une augmentation de leur âges au ¹⁴C. Après quoi, les valeurs diminuent pour atteindre des âges inférieurs aux âges relevés en 1969 (de la même façon, les activités en tritium diminuent jusqu'à 1973 et augmentent par la suite pour dépasser les valeurs initiales). Dans quelques cas entre 1973 et 1975, les $\delta^{13}\text{C}$ ont augmenté de 2 ‰ au dessus de la valeur habituelle (-11 ‰). Toutes ces tendances confirment l'augmentation du déficit en précipitations et sont cohérentes avec la baisse du niveau de la nappe entre 1969 et 1976. Les puits les moins productifs sont les plus marqués par des changements isotopiques. A partir de 1976, le niveau de la nappe est de nouveau monté du fait d'une exploitation modérée et constante et d'une augmentation des précipitations, ce qui a eu pour effet d'inverser la tendance d'évolution des teneurs isotopiques.

On peut expliquer ces observations par des mélanges verticaux d'eaux récentes avec des eaux plus anciennes au cours du pompage. En effet, l'âge des eaux augmente avec la profondeur dans les aquifères libres. Pendant les périodes de faible recharge, de l'eau de plus en plus ancienne doit être pompée pour compenser le déficit. Dès que l'alimentation redevient normale, les âges moyens recommencent à diminuer. Au stade final d'un aquifère épuisé en eau ancienne, l'âge isotopique de l'eau pompée devrait se rapprocher de celui de l'eau fraîchement infiltrée. Certains échantillons récoltés en 1981 ont des âges plus récents que des échantillons de 1969, ce qui montre que le bilan en eau était déjà déficitaire dans les années 70. On pompe moins d'eau

ancienne en 1981 que l'on n'en pompait en 1969.

Dans la zone centrale, les valeurs en ¹⁴C, tritium et $\delta^{13}\text{C}$ sont très stables. Ce comportement est dû à un gradient vertical en ¹⁴C constant dans le temps dans cette partie de l'aquifère. Les âges isotopiques excédant 7000 ans, il n'y a pas beaucoup d'eau récente mise en jeu. De ce fait, un mélange de composition stable dans le temps d'eaux récentes et anciennes peut être pompé sur de longues périodes de temps. Dans la zone est, on distingue deux tendances:

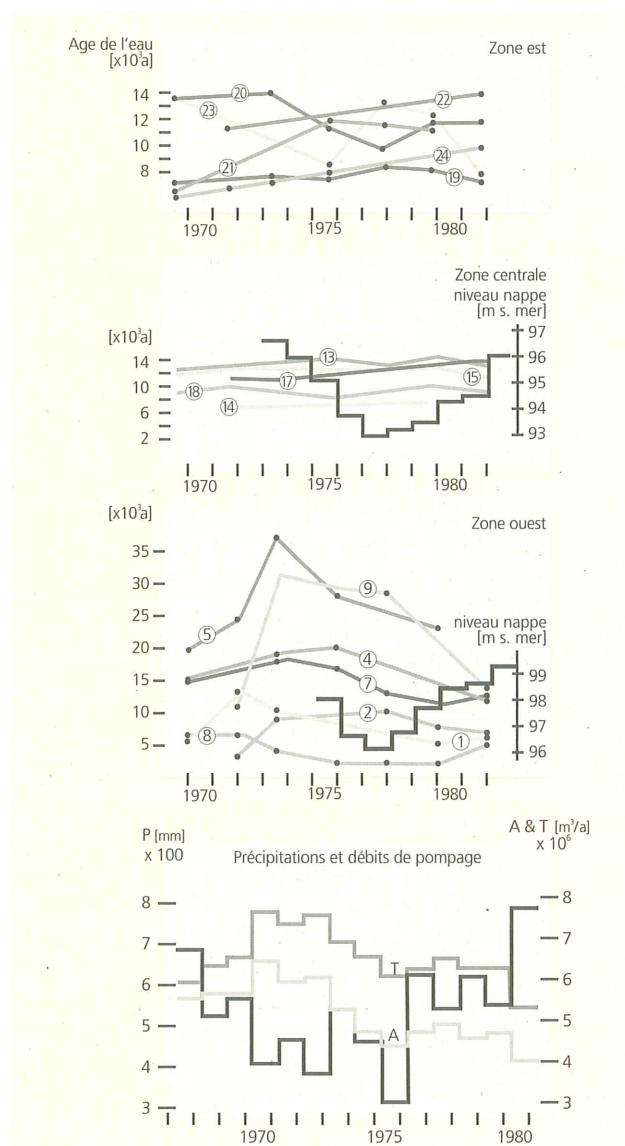


Figure 2.6 Caractéristiques de l'aquifère. En bas: Variations temporelles des précipitations P (trait noir) et du débit d'exploitation de l'aquifère (A: Aquitainien uniquement, T: total). En haut: Variations du niveau de la nappe (traits noirs en escalier), et âges au ¹⁴C (traits gris avec numéro du puits d'observation) pour les trois zones du bassin NE de Mainz (d'après Geyh & Sonne 1983).

- Les âges au ^{14}C augmentent progressivement dans cette zone tant que les eaux récentes sont moins abondantes que les eaux anciennes (du fait de l'éloignement de la zone d'alimentation par exemple). L'eau récente est pompée, et les âges au ^{14}C augmentent. Mais quand l'alimentation de l'aquifère augmente, les ressources récentes de la zone centrale peuvent alors être mobilisées.
- Certains puits situés à proximité ou directement dans le lit du Rhin montrent une diminution importante des activités en tritium et en ^{14}C pendant les années pauvres en précipitations. Ceci est dû à un apport d'eau récente provenant des alluvions, comme l'a confirmé l'hydrochimie.

Bien que cette méthode ne permette pas de quantifier l'évolution des ressources en eau d'un aquifère, elle garde tout son intérêt dans un but de surveillance qualitative de son bilan. Sans aucun traçage artificiel, il est possible de déceler tout déséquilibre entre alimentation de l'aquifère et prélèvements d'exploitation.

2.1.5 Ages radiométriques et temps de séjour moyen

Par abus de langage, on emploie souvent le terme de datation pour les interprétations du tritium et d'autres radio-isotopes comme le carbone-14 et le chlore-36. Or cet âge n'est que la transcription d'activités en tritium ou en carbone-14 en termes de temps. L'âge radiométrique d'une eau souterraine est en fait l'âge moyen d'un mélange de nombreux écoulements élémentaires (Fritz & Fontes, 1980). La datation des eaux souterraines ne se limite pas uniquement à déterminer un âge. C'est toute une répartition des âges qu'il faut déterminer (voir 1.3).

La période de demi-vie du tritium (12,43 a) limite son usage aux eaux qui ont été rechargées au moins en partie durant les dernières décennies. Ses applications hydrogéologiques sont donc limitées aux études de la zone non saturée, des eaux peu profondes, des systèmes fracturés, et des karsts (Payne, 1988). En l'absence de tritium, la datation par le carbone-14 peut être tentée. Cependant, cet isotope étant présent dans l'eau sous forme de carbonates, il est très sensible au comportement chimique de la formation aquifère et de l'eau qu'elle contient. Le pH du milieu joue pour cet isotope un rôle prépondérant, et oblige soit à développer des études hydrochimiques poussées, soit à faire des hypothèses parfois sujettes à caution.

Méthode semi-quantitative

Les valeurs d'entrée du tritium dans les précipitations varient fortement d'un endroit à un autre, selon les saisons ou les années. Des mélanges complexes se créent dans la plupart des aquifères, et le mode de mélange ainsi que son ampleur sont souvent inconnus. Il est donc difficile d'estimer l'âge d'une eau si l'on ne dispose pas d'une série d'analyses (voir 3.2.3) qui permette de dégager une évolution des teneurs sur de nombreuses années et de choisir le modèle approprié. En première approximation, une «recette» semi-quantitative permet d'estimer grossièrement l'âge d'une eau à partir d'un seul échantillon. Le Tableau 2.1, basé sur les données publiées par Blavoux et Letolle (1995), donne la démarche à suivre.

Activité mesurée	non mesurable	de 2 à 10 UT	de 10 à 20 UT	supérieure à 20 UT
Temps de séjour moyen	Eau isolée de l'atmosphère depuis 1952	Apport d'eau post-nucléaire dans une eau ancienne	Eau infiltrée durant la dernière décennie, ou mélange d'eaux anciennes et post-nucléaires	Age moyen de quelques dizaines d'années

Tableau 2.1 Première approximation du temps de séjour moyen de l'eau dans un aquifère, sur la base d'une unique mesure de l'activité en tritium (modifié d'après Blavoux et Letolle, 1995).

Méthode du pic d'activité de 1963

Le pic d'activité en tritium dans l'atmosphère survenu en 1963 (voir 1.2.5) est utilisé pour étudier l'infiltration de l'eau à travers la zone non saturée, et pour estimer la recharge moyenne. Le système ne doit pas être le siège de mélanges, l'idéal étant un écoulement de type «piston» (piston flow). On localise alors le pic de concentration de 1963 sur un profil vertical. Pour cela, des données locales d'observation des activités en tritium dans les précipitations (du réseau mondial de l'IAEA par exemple) sont corrigées afin de savoir quelle activité présente actuellement une eau infiltrée à une certaine date. En comparant les activités mesurées dans le sol et ces activités «datées», on peut déterminer à quelle profondeur se trouve une eau infiltrée à une date connue. Cette profondeur et cette date permettent d'estimer la vitesse d'infiltration. Si l'on connaît la teneur en eau du sol, on peut en déduire le volume annuel qui s'infiltré. Mazor (1991) donne un certain nombre d'exemples de cette méthode du pic, dont un d'entre eux est repris en 2.1.2.

Modélisation mathématique

La modélisation permet de résoudre les problèmes dans le cas où les mélanges ne sont plus négligeables. Un aperçu des principes de la modélisation par les modèles empiriques ayant été exposé en 1.3, nous présenterons l'exemple suivant sans revenir sur la théorie.

Pour estimer le temps de séjour souterrain moyen de l'eau d'une petite source ($Q=0,5$ à 5 l s^{-1}) située sur la pente du Massenberg près de Grafendorf en Autriche, Maloszewski et Zuber (1982) ont testé deux nouveaux modèles et les ont comparés à des résultats obtenus auparavant sur la même source par deux auteurs différents.

La fonction d'entrée du tritium dans l'aquifère était connue, et l'ajustement des courbes a donc pu se limiter aux paramètres principaux. La Figure 2.7 montre que tous les résultats sont du même ordre de grandeur. Le couplage d'un modèle exponentiel et d'un modèle en piston (EPM, courbe 3 de la Figure 2.7) donne l'estimation maximale de 9,5 a. Ce couplage indique que dans cette configuration, les eaux présentant une distribution exponentielle des temps de séjour constituent environ la moitié du volume total (rapport $\eta=2$). Les auteurs précisent que ce résultat est en accord avec la modélisation par cellules de mélange (FSM) qui nécessitait dans le cas 1 de la Figure 2.7 un rapport η de 2,4 et dans le cas 2 un rapport η de 2,6. Le modèle dispersif (DM- C_{ff} , courbe 4) donne un résultat intermédiaire de 8 a et un paramètre de dispersion de 0,09. Tous ces résultats montrent que le temps de séjour moyen doit être de l'ordre de huit années.

L'exemple sur le Massenberg montre que le modèle FSM (à cellules de mélange) donne moins d'informations sur le comportement physique de l'aquifère que le modèle DM ou qu'un couplage EPM. Ces derniers fournissent une estimation de la dispersion ou de la fraction de volume présentant une distribution exponentielle des temps de transit, alors que le premier nécessite de connaître ces informations avant même de choisir le type de modèle.

Les résultats fournis par les modèles sont très précis, mais il ne s'agit au mieux que d'âges radiométriques. Nous l'avons vu, dans le cas de mélanges dans l'aquifère, seuls les modèles permettent de tenir compte de la variabilité du signal d'entrée en tritium. On devra donc utiliser ces résultats avec précautions, en testant plusieurs modèles. Le choix du type de modèle est déterminant et doit tenir compte de tous les paramètres du système.

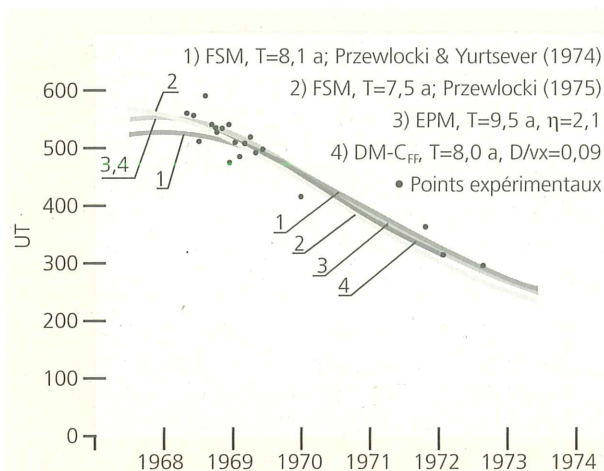


Figure 2.7 Interprétation des temps de séjour de la source St-29 près de Grafendorf en Autriche. FSM = modèle à cellules de mélange; EPM = couplage d'un modèle exponentiel et d'un modèle en piston; DM- C_{ff} = modèle dispersif avec échantillonnage à l'exutoire; T = temps de transit en années; η = rapport du volume total sur le volume présentant une distribution exponentielle des temps de transit; D/vx = paramètre de dispersion (d'après Maloszewski & Zuber, 1982).

2.1.6 Connexions entre aquifères

Les connexions entre aquifères peuvent être mises en évidence sur la base de la piézométrie, de l'hydrochimie, du bilan en eau et de la géologie structurale. Dans certains cas (aquifères carbonatés par exemple), la connexion entre plusieurs aquifères peut être difficile à prouver car la piézométrie ne peut pas toujours être établie. La connaissance d'une connexion à l'aide d'une autre méthode aidera à évaluer les ressources en eau et à prévoir l'altération de la qualité des eaux. Ce genre d'étude peut être mené à l'aide des paramètres physico-chimiques spécifiques des deux masses d'eau. Mais l'oxygène-18 et le deutérium étant conservatifs dès qu'ils atteignent le niveau de la nappe, l'usage de ces isotopes représente souvent l'outil le plus efficace pour étudier la possibilité d'une connexion. A condition bien sûr que la signature isotopique des deux aquifères soit suffisamment différente. Si les deux systèmes sont trop semblables, on fait appel au tritium ou au carbone-14. Dans certains cas, le carbone-13 et le soufre-34 ont été utilisés. Comme nous l'avons vu en 1.1.2, sur un graphe deutérium en fonction de l'oxygène-18, un mélange entre deux eaux définira un segment de droite entre les points représentatifs des deux aquifères. Le Sahara a livré de bons exemples de connexions entre aquifères, par exemple dans l'étude très complète de Gonfiantini *et al.* (1974). L'aquifère des grès du Continental Intercalaire (Crétacé inférieur) s'étend du Maroc

à la Vallée du Nil où il prend le nom d'aquifère des grès nubiens (Figure 2.8). Dans sa partie est, le Continental Intercalaire n'affleure pas. L'aquifère est confiné et les $\delta^{18}\text{O}$ sont stables vers -8 ‰. Dans sa partie ouest, l'aquifère n'est plus confiné et est rechargé par les affleurements du Gourara, du Touat et du Tidikelt aux abords du plateau crétacé du Tademait. Au nord du Gourara, le Continental Intercalaire est recouvert par le complexe du Grand Erg Occidental. Des analyses isotopiques détaillées montrent que l'eau du Grand Erg Occidental présente des $\delta^{18}\text{O}$ typiques de -5 ‰. La surface piézométrique de l'aquifère du Grand Erg Occidental se situe plusieurs mètres au-dessus de celle du Continental Intercalaire, et des connexions sont possibles puisqu'il n'y a pas de niveau imperméable entre les deux (la base du Grand Erg est probablement constituée de calcaires fissurés).

Dans le Gourara, le Continental Intercalaire est rechargé par la partie sud du Grand Erg. En allant vers le sud, le Continental Intercalaire s'enfonce sous le plateau du Tademait dont la base contient des niveaux imperméables d'argiles. Ici, les teneurs en $\delta^{18}\text{O}$ de l'aquifère du Continental Intercalaire subissent une baisse qui les rapproche des valeurs typiques de la circulation générale dans la partie confinée de l'aquifère, soit -8 ‰ (Figure 2.9).

Ceci illustre la diminution de la contribution du Grand Erg au Continental Intercalaire sous le plateau du Tademait, ce que confirme la piézométrie. Dans la région du Golfe de Gabès (sud de la Tunisie), le Continental Intercalaire est affecté par un dense réseau de failles verticales. La piézométrie indique que cette région est une zone de décharge. Le Continental Intercalaire est recouvert par des niveaux calcaires imperméables, puis par un autre aquifère lui-même confiné dans les calcaires, grès et dolomies crétacés du Complexe Terminal. Des différences dans les niveaux piézométriques suggèrent que le Continental Intercalaire communique avec le Complexe Terminal par le réseau de failles. Les données isotopiques confirment cette hypothèse. Sur un diagramme $\delta^2\text{H} / \delta^{18}\text{O}$, les points correspondant à la région faillée se placent sur le segment de droite reliant les valeurs typiques du Continental Intercalaire et du Complexe Terminal (Figure 2.10).

Cette étude de grande ampleur sur les eaux souterraines du Sahara est l'exemple type de l'étude des communications entre différents aquifères par les isotopes du milieu. Une démarche analogue peut bien entendu être appliquée à des aquifères aux dimensions plus réduites, comme ceux que l'on trouve en Europe.

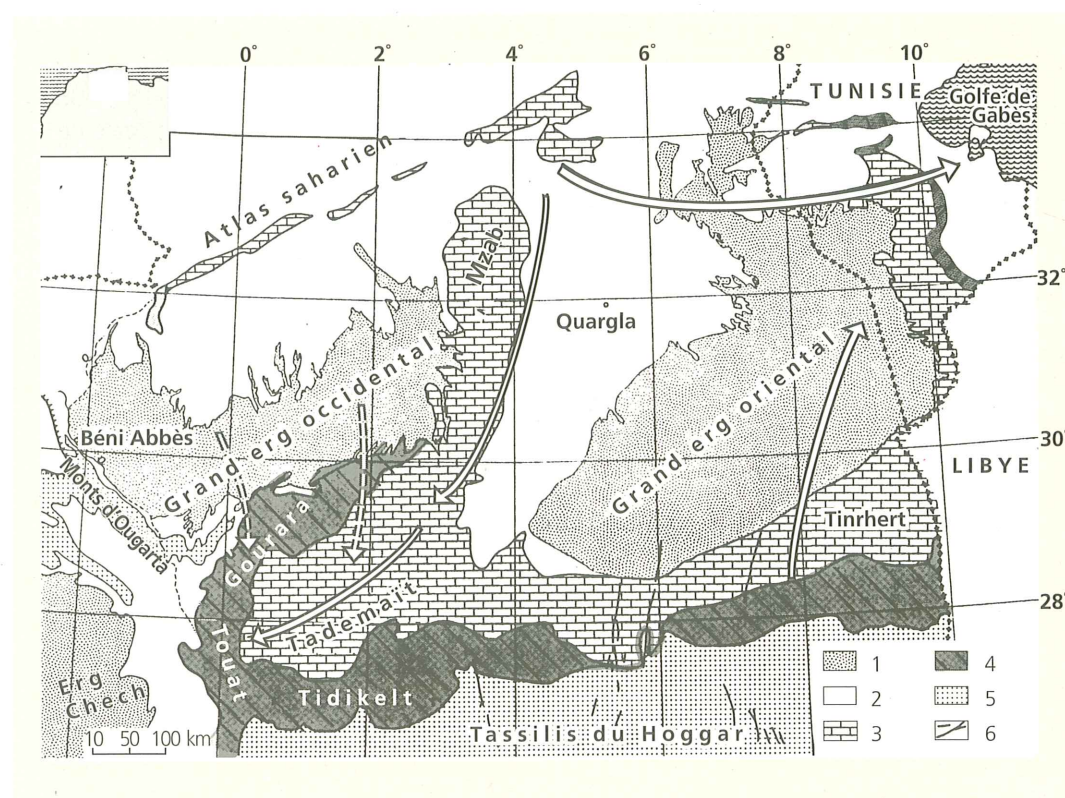


Figure 2.8 Aquifère du Continental Intercalaire dans le nord du Sahara.
1 = Ergs;
2 = Complexe Terminal (Tertiaire et Quaternaire);
3 = Crétacé supérieur et Eocène;
4 = Continental Intercalaire;
5 = Paléozoïque et roches cristallines anciennes;
6 = Failles;
Traits continus fléchés = lignes d'écoulement dans le Continental Intercalaire;
Traits interrompus fléchés = lignes d'écoulement en provenance du Grand Erg Occidental (d'après Gonfiantini et al., 1974).

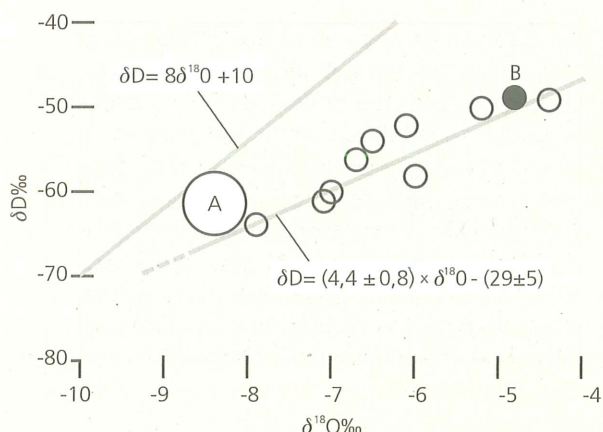


Figure 2.9 Isotopes stables dans l'aquifère du Continental Intercalaire dans le Sahara nord-ouest (ici non confiné), figurés par les petits cercles blancs. A = moyenne pour le Continental Intercalaire dans sa partie confinée; B = moyenne pour le Grand Erg (d'après Gonfiantini *et al.*, 1974). La droite du haut correspond à la ligne météorique globale (voir 1.1.5). D = deutérium (^2H).

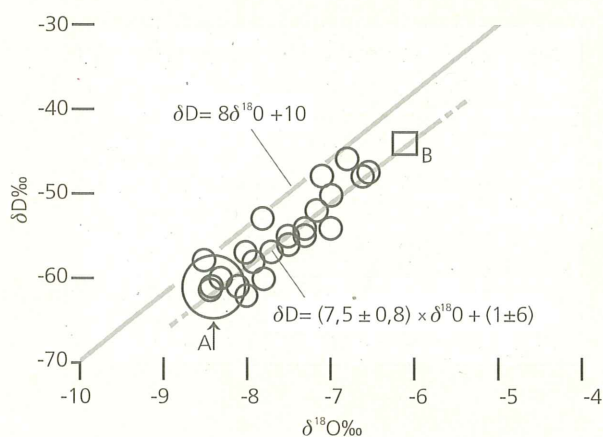


Figure 2.10 Mélange entre les eaux du Continental Intercalaire (A) et du Complexe Terminal (B) dans la zone du Golfe de Gabès, sud de la Tunisie (d'après Gonfiantini *et al.*, 1974). Les petits cercles blancs symbolisent les mesures ponctuelles. La droite du haut correspond à la ligne météorique globale (voir 1.1.5). D = deutérium (^2H).

2.1.7 Mécanismes de salinisation

Au cours de l'exploitation d'eaux souterraines, on observe parfois une augmentation de la salinité de l'eau. Ce problème, que l'on retrouve par exemple dans la station de traitement El-America alimentant 15% de la ville du Caire, conditionne fortement la potabilité des eaux (Awad *et al.*, 1990). Afin de mettre en oeuvre des mesures de réhabilitation, l'origine de la salinisation doit être déterminée. Il y a plusieurs causes possibles de salinisation des eaux souterraines (Gat, 1975):

- intrusion d'eau salée (eau de mer, eau de surface chargée en sels dissous, paléo-saumure voire même exhalation magmatique) dans l'aquifère,
- concentration des sels dissous par évaporation,
- dissolution par l'eau de percolation de sels contenus dans des roches évaporitiques ou non,
- rétention et concentration par ultra-filtration (à travers des argiles par exemple),
- infiltration d'eau de surface de mauvaise qualité (eau d'irrigation par exemple).

L'hydrochimie peut contribuer à résoudre le problème de l'origine de la salinisation. Mais ici encore, la combinaison des isotopes stables et des espèces ioniques (chlorures en particulier), permet au moins d'éliminer certaines des causes possibles de la salinité, et habituellement la cause primaire peut être identifiée. Le tritium et le carbone-14 peuvent permettre en plus de différencier des eaux récentes d'eaux fossiles. Enfin, le carbone-13 et le soufre-34 sont bien appropriés pour distinguer l'eau de mer de l'eau de pluie (Moser & Rauert, 1980). Si l'intrusion d'eau de mer est la cause principale de la salinité, alors sur un graphique deutérium/oxygène-18 l'eau considérée va se placer sur la droite passant par les points représentatifs de l'eau de mer et de l'eau la moins salée de l'aquifère. Ces isotopes stables et les chlorures sont liés par une corrélation positive. Finalement, aucun échantillon ne devrait présenter de déviation isotopique supérieure à celle de l'eau de mer. Cette technique pose deux problèmes (Payne, 1988):

- Les intrusions d'eau de mer ont lieu la plupart du temps près des côtes là où l'eau douce souterraine n'est pas très pauvre en isotopes lourds. Avec des compositions en oxygène-18 proches de -5 ‰, on ne pourra détecter un apport d'eau de mer que si sa contribution dépasse 5 %.
- Un problème survient dès que l'on cherche à répondre à la question: « y a-t-il eu ou non intrusion d'eau de mer? » On utilisera pour résoudre ce problème une droite de régression entre le deutérium et l'oxygène-18 ou entre l'oxygène-18 et les chlorures. Mais pour vérifier si la droite de mé-

lange passe par le point représentatif de l'eau de mer, c'est l'écart-type de la régression qui doit être utilisé et non pas la droite elle-même. On devra choisir un intervalle de confiance donné autour de la droite pour confirmer ou infirmer la possibilité d'une intrusion d'eau de mer. Il est alors possible que, dans l'intervalle de confiance choisi, la droite de régression ne passe pas par le point représentatif de l'eau de mer, bien que cette dernière soit la cause de la salinisation. Ce problème apparaît en particulier quand la composition isotopique de l'eau souterraine est très différente de celle de l'eau de mer.

La Figure 2.11 montre l'exemple simple mais spectaculaire d'un aquifère près de Marseille (Merlivat & Vuillaume, 1970). Deux profils ont été effectués dans des forages distants de quelques kilomètres et alignés suivant la direction de l'écoulement de l'eau souterraine (perpendiculairement à la côte). Le fort enrichissement en deutérium à partir de 14 m de profondeur dans le forage le plus proche de la côte (forage 1) montre clairement l'intrusion d'eau en provenance de la mer Méditerranée.

Dans d'autres cas, les réflexions suivantes sont utiles: Si la cause de la salinité est due à la concentration des sels dissous par évaporation, alors la régression du deutérium en fonction de l'oxygène-18 sera typique d'un processus d'évaporation avec une pente entre 4 et 6. La corrélation entre un de ces deux isotopes et une espèce ionique comme les chlorures sera positive.

Dans le cas où la salinité est due à la dissolution de sels évaporitiques, il n'y a pas d'altération de la composition

en isotopes stables de l'eau de percolation. De plus, il n'y a pas de corrélation entre les isotopes stables et les espèces ioniques. Benavente *et al.* (1990) ont étudié ce phénomène de dilution simple en mettant en relation l'oxygène-18 et la conductivité. Le lessivage est en général très localisé et les sels dissous ne sont pas transportés sur de grandes distances. Fritz & Frape (1980) ont étudié la composition chimique et isotopique des eaux souterraines salées du Bouclier canadien. Ces eaux sont souvent drainées par des forages ou des réseaux de fractures dépassant les 1000 m de profondeur, et sont parfois très chargées en sels (plus de 100 g l^{-1}). Elles sont chimiquement différentes des eaux de mer, et sur un graphe deutérium/oxygène-18, elles se placent au-dessus de la ligne météorique représentative des eaux souterraines «normales». La cause de la position «atypique» de ces eaux par rapport à la droite météorique n'est toujours pas clairement établie. Il est possible que des interactions de basse température avec les minéraux silicatés jouent un rôle (J.-L. Michelot, Laboratoire d'hydrologie et de géochimie isotopique, Université de Paris-Sud, Communication personnelle, 2001). Un exemple de la combinaison de deux processus de salinisation sur un même aquifère est donné par Kattan (1996) sur un aquifère dans un massif fissuré de la République Arabe de Syrie. La concentration en chlorures est représentée sur la Figure 2.12 en fonction de $\delta^{18}\text{O}$ pour un certain nombre d'échantillons de l'aquifère. Cette relation suggère deux processus pouvant expliquer l'augmentation de la salinité :

- Enrichissement par évaporation (pour les échantillons 24, 27, et 48).
- Enrichissement par dissolution des sels du sol. Les rapports isotopiques ne changent pas quand la concentration en chlorures augmente (puits 32, 33, 34, 50 et 56).

2.1.8 Application des méthodes isotopiques à l'hydrologie des massifs fissurés

A titre de conclusion pour l'étude des ressources en eau par les méthodes isotopiques, deux types particuliers de systèmes hydrogéologiques seront présentés: les aquifères fissurés non-carbonatés et les réseaux karstiques. Bien que les roches fracturées couvrent un tiers de la surface des continents, leur étude hydrologique reste très lacunaire. En général, l'exploitation des ressources en eau se fait dans les parties altérées et donc poreuses des roches fracturées, là où les méthodes classiques de l'hydrogéologie peuvent être appliquées (carte piézométrique, gradient hydraulique, test de pompage etc.). Si les isotopes permettent d'estimer les altitudes moyennes des bassins versants et les temps de séjour

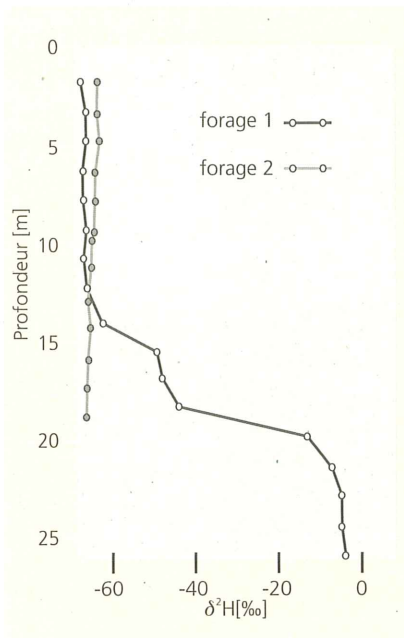


Figure 2.11 Profil vertical du deutérium dans les eaux de deux forages près de Marseille (d'après Merlivat & Vuillaume, 1970).

par les méthodes vues en 2.1.1 et 2.1.2, ils peuvent également contribuer à résoudre les problèmes suivants:

- L'eau d'un bassin versant donné se mélange-t-elle correctement ou non au sein du système fracturé?
- Le flux et le renouvellement des ressources en eau sont-ils significatifs?

Si l'on mesure de larges différences dans les isotopes stables, le cas est simple et l'on peut alors répondre négativement à la première question. Dans un tel cas, nous sommes en présence de plusieurs systèmes indépendants, chacun d'entre eux ayant ses propres caractéristiques hydrauliques. Si les isotopes suggèrent une bonne homogénéité des eaux souterraines, on ne doit pas pour autant considérer que le système est constitué par un aquifère unique. Une composition homogène en isotopes stables peut être due à des apports d'eau d'un épisode pluvieux unique ou d'eau déjà bien mélangée avant son entrée dans l'aquifère (crue de rivière, communication avec un aquifère poreux et bien mélangé). On peut répondre positivement à la deuxième question si le tritium est présent dans l'eau. Les variations de la teneur en tritium peuvent aider à prouver l'hétérogénéité de systèmes pour lesquels la composition en isotopes stables est constante. Des compositions variables en tritium peuvent signifier que malgré l'homogénéité du système, les lignes de courant sont assez différentes pour que les variations de temps de transit soient détectées par ce radioisotope. Une composition homogène en tritium et en isotopes stables peut être attribuée à un bon mélange ou à un épisode unique de

recharge (crue par exemple). L'absence de tritium sera un indicateur d'une faible recharge, voire de l'absence de recharge. Des variations en isotopes stables accompagnées d'activités constantes en tritium sont typiques des systèmes rapides subissant une évaporation ou des échanges géothermiques.

Roches fissurées non-carbonatées

On considère généralement que les aquifères des roches fissurées non carbonatées ont une importance économique limitée. C'est pourquoi les études sur ce sujet sont rares, et ne font référence aux isotopes du milieu que dans des cas exceptionnels. Un exemple très complet d'étude hydrogéologique multi-disciplinaire dans laquelle les isotopes ont joué un grand rôle est présenté par Kattan (1996). Une partie de cette étude a déjà été utilisée pour illustrer les mécanismes de salinisation au chapitre précédent.

L'eau de l'aquifère basaltique fissuré du Bassin de Yarmouk (République Arabe de Syrie) a été étudiée à l'aide des techniques chimiques et isotopiques. Nous allons nous attacher à la partie isotopique. La Figure 2.13 montre que les sources du Jurassique supérieur et les sources des Monts Arab et Hermon se placent sur la ligne météorique de la Méditerranée orientale. Par contre, les données des sources principales s'éloignent significativement de cette droite. Les eaux de la zone centrale sont dans une position intermédiaire entre les sources principales et les sources des montagnes. La déviation de ces données par rapport à la ligne météorique méditerranéenne implique la combinaison de processus d'évaporation et de mélange, plutôt

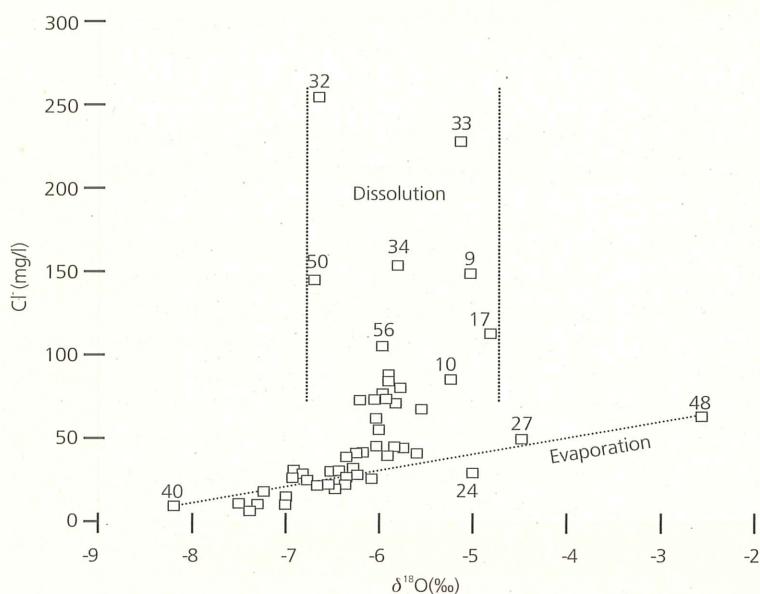


Figure 2.12 Relation oxygène-18/chlorures dans les eaux souterraines du Bassin de Yarmouk, République Arabe de Syrie (d'après Kattan, 1996).

qu'un seul mécanisme d'évaporation (voir ci-dessous, enseignements du tritium et du carbone-14). En d'autres termes, on peut dire que les eaux souterraines de la zone centrale sont un mélange d'eau rechargée dans les montagnes avoisinantes et d'eau d'irrigation fortement minéralisée et enrichie en isotopes lourds par évaporation. En effet, les isotopes stables ont suggéré deux processus de salinisation (voir 2.1.7). Le tritium et le carbone-14 pour leur part ont fourni des renseignements sur les directions d'écoulement et sur les vitesses effectives de l'eau. Les activités en tritium diminuent des bassins versants (ici les Monts Arab et Hermon) aux sources principales de la vallée. Les âges radiométriques calculés à l'aide du carbone-14 par trois méthodes différentes ont permis d'estimer des vitesses de 1 à 7 m x a⁻¹ dans les régions montagneuses, et de 20 à 60 m x a⁻¹ dans la zone des sources principales.

Réseaux karstiques carbonatés

Dans les régions méditerranéennes, et en Afrique du nord par exemple, les roches carbonatées sont souvent les seules sources d'eau de bonne qualité (Abdesselam *et al.*, 1990). Mais, du fait de la complexité géométrique des réseaux karstiques et des variations de cheminement de l'eau en fonction des débits, il est difficile de localiser les impluviums (zones d'alimentation) des réservoirs karstiques. Pour résoudre les problèmes hydrologiques et de gestion des eaux dans les karsts, on utilise le plus souvent des méthodes de traçage. Ces méthodes donnent des renseignements sur les chemins parcourus et les temps de séjour, ainsi que sur le volume du réservoir karstique. Du tritium artificiel injecté a déjà été utilisé comme traceur pour étudier les relations entre des pertes et des sources, mais les quantités nécessaires de tritium étant trop importantes,

ce type d'essais a été abandonné. D'autre part, l'utilisation de substances traçantes ne représente qu'une image instantanée du comportement d'une partie de l'eau karstique, dépendant des conditions météorologiques du moment. La mesure des variations en isotopes du milieu permet une différenciation dans le temps et dans l'espace de la provenance de l'eau karstique. La localisation des bassins versants ou des impluviums nécessite de connaître la relation entre les isotopes stables et l'altitude (voir 2.1.1). L'idéal est de déterminer cette corrélation au cas par cas, en tenant compte de l'évolution dans le temps des compositions isotopiques. Pearson *et al.* (1991) donnent entre autre pour le Jura central suisse les compositions en oxygène-18 et en deutérium des eaux en fonction de l'altitude moyenne de recharge. A titre d'exemple, voici quelques gradients en $\delta^{18}\text{O}$ en fonction de l'altitude pour différentes régions:

- Jura central suisse: -0,20 ‰ pour 100 m de dénivelé, Pearson *et al.* (1991).
- Jura nord-est et sud de la Forêt-Noire: -0,19 ‰/100 m, Pearson *et al.* (1991).
- Jura français: -0,18 à -0,20 ‰/100 m, Blavoux & Mudry (1990).
- Vaucluse: -0,16 à -0,23 ‰/100 m, Blavoux & Mudry (1990).
- Aquifères karstiques des Sierras de Cazorla et de Segura (Espagne): -0,28 ‰/100m, Cruz-San Julian *et al.* (1990).

L'étude de l'hydrodynamique de deux systèmes karstiques autrichiens (Harum *et al.*, 1990) a montré que deux sources karstiques principales situées dans le même massif drainent deux systèmes distincts en période d'étiage ou de débit moyen. Ces deux aquifères diffèrent tant par leur composition hydrochimique que par leurs isotopes stables, ce qui est dû aux différentes conditions d'infiltration dans leurs bassins versants. Par contre une comparaison de la distribution statistique des teneurs en oxygène-18 de deux sources d'un massif karstique de Haute-Savoie (France) a montré que la même zone de recharge située vers 1500 m est commune à deux sources (Mudry *et al.*, 1990). Le faible écart type de la distribution des teneurs en oxygène-18 d'une des sources traduit un mélange des recharges successives dans un réservoir important. L'étalement des valeurs pour l'autre source indique l'absence d'un réservoir développé.

Les processus d'écoulement dans la zone non saturée d'un système karstique ont été étudiés par Chapman *et al.* (1992). Le suintement domine et homogénéise la composition en isotopes stables. Les activités en tritium

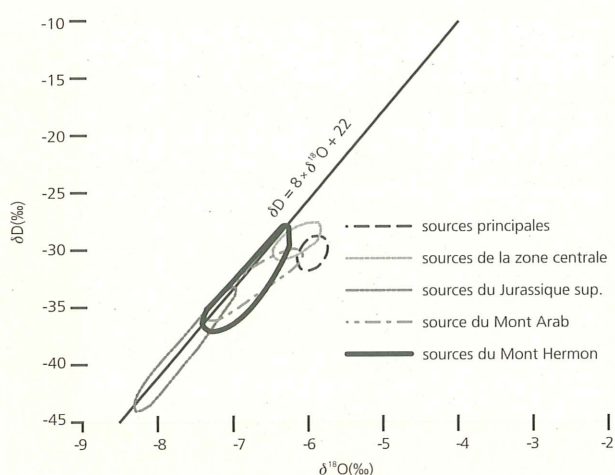


Figure 2.13 Relation oxygène-18/deutérium dans les sources du Bassin de Yarmouk, République Arabe de Syrie (d'après Kattan, 1996).

ont donné des temps de transit de l'ordre de la dizaine d'années. L'eau s'enrichit en isotopes stables sous l'action des circulations d'air qui traversent le réseau. Des analyses corrélationnelles et spectrales des isotopes du milieu (Bakalowicz & Jusserand, 1987) ont permis de caractériser l'infiltration responsable de l'altération des oeuvres pariétales préhistoriques de la grotte de Niaux (Ariège, France). L'écoulement est lent (l'eau met au moins 10 semaines pour parcourir 300 m), et l'aire de recharge est bien définie. Le signal d'entrée est considérablement amorti du fait de la présence d'un milieu hautement dispersif à proximité de la surface. Wendebourg (1990) a pu estimer le débit total dans les calcaires karstifiés du Malm des massifs jurassiens souabes et franconiens (Allemagne) par modélisation numé-

rique du transport des isotopes du milieu à l'échelle du bassin. Ce débit est estimé entre $0,2$ et $0,3 \text{ m}^3 \times \text{s}^{-1}$. Dans les parties profondes de l'aquifère, sous une épaisse couche de molasse, les vitesses calculées sont si faibles que la diffusion moléculaire l'emporte sur la convection. Schotterer *et al.* (1987) ont montré qu'en période d'étiage les caractéristiques physico-chimiques de l'eau à l'exutoire d'un système karstique ne sont pas toujours stables, contrairement à ce qui est en général admis. C'est ce qu'a montré l'étude de la source de l'Areuse dans le Jura neuchâtelois (Suisse). La stabilité de la conductivité (minéralisation totale) est accompagnée de fortes variations du sodium, de la température, de l'oxygène-18 et du tritium (Figure 2.14).

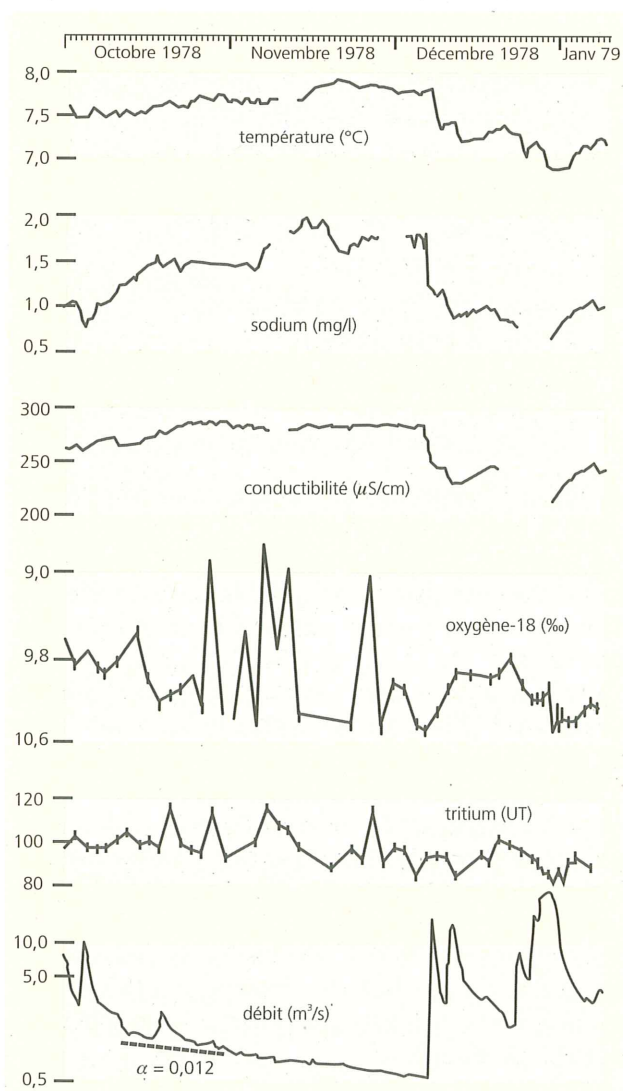


Figure 2.14 Aperçu synthétique des données physico-chimiques et isotopiques de l'eau à la source de l'Areuse en fonction de l'hydrogramme. α : coefficient de tarissement (d'après Schotterer *et al.*, 1987).

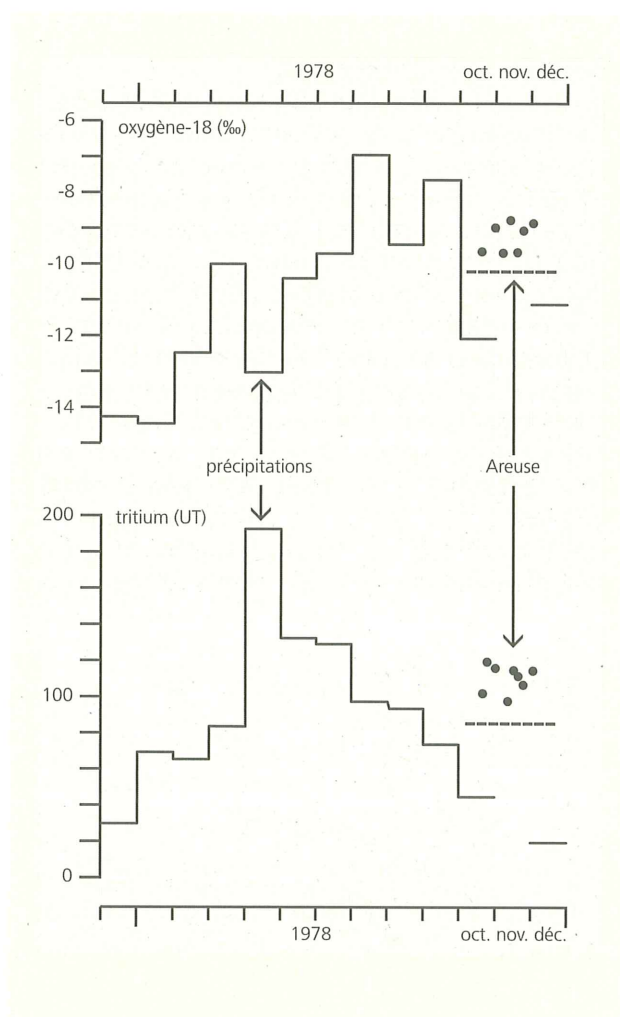


Figure 2.15 Isotopes dans la source de l'Areuse et dans son bassin versant. Traits continus: oxygène-18 et tritium dans les précipitations du bassin de la source de l'Areuse; traits interrompus: moyennes respectives; points noirs: valeurs correspondantes dans l'eau de la source pendant l'étiage d'octobre à décembre 1978 (d'après Schotterer *et al.*, 1987).

Les isotopes montrent que la source n'est pas alimentée à partir d'un réservoir homogénéisé et uniformément distribué par les fractures de la roche, mais qu'elle débite des eaux qui représentent des «paquets» bien individualisés au sein de blocs capacitifs. Sur la Figure 2.15 sont représentées les teneurs isotopiques de la source de l'Areuse (d'octobre à décembre 1978), et celles de la pluie dans le bassin versant de la source pour l'année 1978.

Les teneurs en tritium et en oxygène-18 à la source durant l'été sont toutes plus élevées que les valeurs moyennes annuelles dans les précipitations (-10,4 ‰ et 95 UT respectivement). On peut donc penser que les «paquets d'eau» qui arrivent à l'exutoire sont presque exclusivement constitués d'eau de pluie de l'été. Un événement de recharge d'eau fraîchement infiltrée peut rester plus ou moins longtemps stocké dans les blocs capacitifs et peut de temps à autre arriver à l'exutoire sans se mélanger complètement aux eaux anciennes qui alimentent normalement la source pendant l'été. Ces résultats, bien que qualitatifs, sont très importants pour la décomposition des hydrogrammes des systèmes karstiques (voir 2.4.3), car on admet généralement que le tarissement de la source traduit une vidange d'un réservoir dont les propriétés sont homogènes et isotopes. Les différents traceurs naturels, dont les isotopes, ont permis de mettre en évidence le comportement complexe des blocs capacitifs peu perméables en période d'été.

2.2 Eaux thermales

Le premier résultat des techniques utilisant les isotopes du milieu sur l'étude des ressources géothermiques a été la réfutation de l'hypothèse selon laquelle les fluides hydrothermaux ont une origine magmatique. Leur origine météorique a été prouvée par les isotopes stables. De la même façon, on a pu montrer que les eaux minérales françaises ont toutes une origine météorique (Blavoux & Letolle, 1995). Les eaux thermales et minérales sont souvent présentées simultanément. Nous ne traiterons ici que des eaux thermales, les eaux minérales relevant souvent plus du concept juridique que scientifique. Les lecteurs intéressés trouveront en 2.1.1 un court extrait de l'article de Blavoux & Letolle (1995) sur l'eau minérale d'Evian (France). Eisenlohr *et al.* (1996) montrent l'intérêt des investigations isotopiques à l'échelle régionale sur les eaux froides pour caractériser les conditions de la recharge des zones géothermales, par exemple du nord-est de la Turquie. Les interprétations des teneurs en isotopes sont cependant plus fréquentes à petite échelle, et complètent très efficacement les méthodes hydrochimiques classiques pour déterminer l'origine des eaux thermales.

2.2.1 Origine des eaux thermales

Pour les eaux chaudes, en général pour les eaux à plus de 100°C, il a été montré que les points représentatifs des compositions isotopiques ne se situent pas sur une ligne météorique locale (Truesdell & Hulston *in* Fritz & Fontes, 1980; Panichi & Gonfiantini, 1978 et Panichi & Gonfiantini *in* IAEA, 1981). Quand la température augmente, on observe une dérive positive systématique de l'oxygène-18 dans l'eau, et une dérive négative dans les roches. Ce phénomène est attribué à des échanges d'oxygène entre l'eau et les silicates des roches. Les roches contenant relativement peu d'hydrogène, cet échange n'est pas observable pour le deutérium, à l'exception de quelques sources acides. L'amplitude de cet échange isotopique est fonction des $\delta^{18}\text{O}$ d'origine dans l'eau et dans les roches, de la minéralogie et de la texture des roches, de la température, du rapport volumique eau/roche et des surfaces d'échange, ainsi que du temps de contact. L'eau des systèmes contenant des roches carbonatées montre de forts enrichissements en oxygène-18. Des échanges importants d'oxygène-18 avec les roches carbonatées sont également observés à des températures très basses (proches de 10°C) dans les champs pétrolifères où les rapports eau/roche sont particulièrement bas et les temps de contact très longs. Sur la base de cette dérive en oxygène-18, il est possible de retrouver la composition de l'eau d'origine sur la droite des précipitations, et de là, l'origine de l'eau froide alimentant le système hydrothermal. Si l'on connaît la ligne météorique et la composition isotopique de l'eau étudiée, alors sur un graphe deutérium en fonction de l'oxygène-18, le point représentatif de l'eau froide alimentant le système sera situé sur la droite météorique et aura la même composition en deutérium que l'échantillon étudié. Cette dérive en oxygène-18 semble avoir lieu dans toutes les zones géothermales, et presque uniquement dans celles-ci. Pendant le transport des fluides vers la surface, on observe souvent un refroidissement par conduction, par mélange avec des eaux plus froides, ou par ébullition avec dégazage (Hulston, 1977 rapporté un enrichissement en oxygène-18 de plus de 1 ‰ sur les eaux thermales des Broadlands en Nouvelle-Zélande). La méthode présentée ci-dessus n'est applicable que si ce refroidissement se fait par conduction. L'estimation de la composition isotopique du fluide en profondeur à partir de mesures sur le fluide après sa remontée doit tenir compte des nombreux processus physico-chimiques pouvant modifier la composition isotopique de l'eau. Il est également possible que l'eau d'origine trouvée à l'aide de cette méthode soit plus pauvre en isotopes stables que l'eau observée habituellement dans les aquifères. Ce phénomène peut signifier que le système géothermique est

rechargé à plus haute altitude que les eaux souterraines locales. Dans le cas d'un système géothermal japonais influencé par des lacs de caldeira, Sakai & Matsubaya (1977) ont montré que l'eau des lacs enrichie en isotopes lourds pouvait servir de traceur hydrologique. Les teneurs isotopiques ainsi que les teneurs en chlorures ont permis d'analyser les bilans en eau d'un lac et d'un système géothermal dans une caldeira.

Pour les eaux géothermales de la Suisse, Vuataz (1983) montre que la température des réservoirs est trop basse pour que ces échanges d'oxygène-18 soient significatifs. Tous les points représentatifs des eaux thermales de Suisse et des régions alpines adjacentes s'alignent sur la droite météorique mondiale (voir 1.1.5). Seules les zones thermales de Baden, Schinznach et Zuzach montrent un léger enrichissement en oxygène-18, que Vuataz attribue soit à des échanges isotopiques à haute température en profondeur, soit à des mélanges avec des eaux connées. L'absence d'échanges isotopiques permet d'établir un gradient de variation de la composition isotopique en fonction de l'altitude de la zone de recharge. À étant l'altitude en mètres de la zone d'alimentation, Vuataz donne pour la Suisse les relations:

$$A = -367 \times \delta^{18}\text{O} - 3110$$

$$A = -45,9 \times \delta^2\text{H} - 2650$$

2.2.2 Phénomènes de mélange

Des variations de composition en oxygène-18 sont fréquentes dans les systèmes hydrothermaux et ont lieu la plupart du temps dans les parties supérieures du système. Deux hypothèses peuvent expliquer ce phénomène: a) échanges avec les roches encaissantes (voir 2.2.1); b) mélange avec des eaux de composition isotopique différente (eau de surface froide par exemple). Les analyses chimiques permettent de faire la distinction entre ces deux mécanismes qui peuvent bien sûr coexister. Si l'on ne considère que la relation oxygène-18/chlorures, la corrélation tendra vers une exponentielle dans le premier cas si l'enrichissement en chlorures est plus rapide que l'enrichissement en oxygène-18 (roche encaissante riche en chlorures), alors que la relation sera linéaire dans le cas d'un mélange, l'enrichissement en chlorures étant proportionnel à l'enrichissement en oxygène-18. Un mélange avec une eau de surface plus récente pourra également être marqué par un changement de l'activité en tritium. Clark *et al.* (1989), par exemple, ont montré que les eaux thermales libres de tritium d'un volcan de la Colombie-Britannique se mélangent dans la zone d'émergence avec 10 à 40% d'eaux non thermales.

Pour appliquer les techniques isotopiques dans ce type de problèmes, trois conditions devraient être vérifiées:

- 1) Le tritium ou le carbone-14 sont présents dans l'eau récente et absents dans l'eau thermale.
- 2) Le radio-isotope n'est pas éliminé après mélange par désintégration radioactive ou par réaction avec les roches.
- 3) Seulement deux eaux homogènes sont impliquées dans ce mélange. Dans ces conditions, les caractéristiques isotopiques de l'eau thermale peuvent être déterminées indirectement à partir d'un mélange d'eaux, sans analyse directe de l'eau thermale en profondeur.

2.2.3 Le facteur temps dans les systèmes hydrothermaux

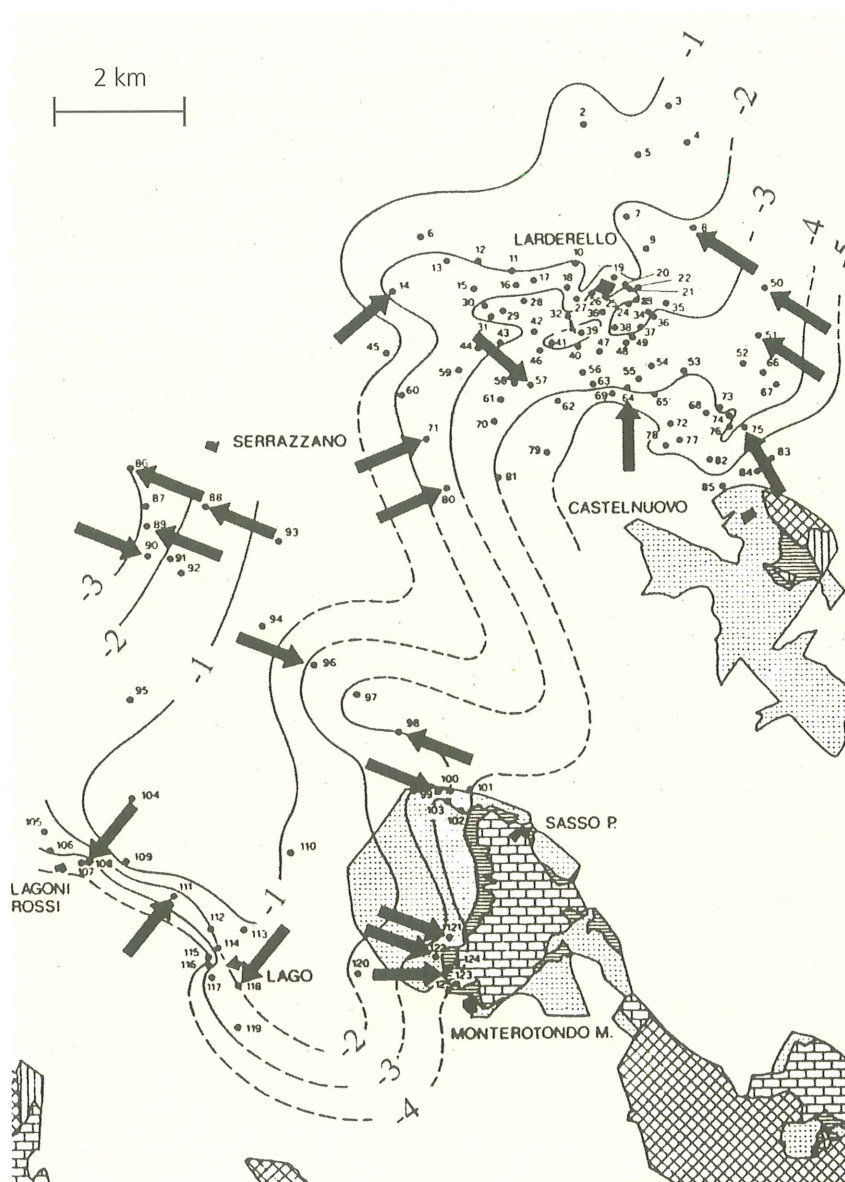
Les systèmes hydrothermaux ne sont pas figés. Les isotopes du milieu sont particulièrement bien adaptés au contrôle de l'évolution temporelle d'un site géothermique en cours d'exploitation. La détection de faibles variations dans le temps des teneurs isotopiques peut aider à évaluer la stabilité temporelle d'un champ géothermique, suivant le même type d'approche que pour les eaux non-thermales (voir 2.1.4).

Variations isotopiques en fonction du temps et du taux d'exploitation

La baisse de teneur en gaz observée à Larderello (Panichi & Gonfiantini, 1978), a été mise en relation avec une augmentation de la proportion de vapeur provenant de l'évaporation d'eau souterraine peu profonde et récente. Cette hypothèse est confirmée par les variations des $\delta^{18}\text{O}$ observées au cours du temps. La Figure 2.16 montre schématiquement ces variations. Il apparaît que les puits de la zone centrale n'ont pas subi de modification, ce qui indique qu'ils sont alimentés jusqu'à maintenant par un type unique de vapeur, probablement produite dans les profondeurs de la zone centrale. Dans la zone périphérique caractérisée par des $\delta^{18}\text{O}$ de -1 à -4 ‰ au sud et à l'est de Larderello, les compositions isotopiques tendent vers des valeurs positives.

Ceci est dû à l'élargissement de la zone dans laquelle la contribution de la vapeur profonde prévaut. Au contraire, dans la zone la plus externe (au sud et à l'ouest de Larderello), où les compositions atteignent des $\delta^{18}\text{O}$ de -3 à -5 ‰, la vapeur tend vers des valeurs négatives. La contribution relative de l'eau provenant du niveau perméable affleurant augmente.

Figure 2.16 Représentation schématique des variations en oxygène-18 dans des échantillons de vapeur à Larderello, sur une période de 5 ans. Les $\delta^{18}\text{O}$ sont représentés par les traits continus et interrompus. Le sens des flèches indique une augmentation ou une baisse de la concentration en oxygène-18 suivant qu'elles partent de valeurs plus petites (plus négatives) ou plus grandes (d'après Panichi & Gonfiantini, 1978).



Temps de séjour

Le tritium et le carbone-14 ne sont pas facilement utilisables dans les systèmes hydrothermaux pour estimer les temps de séjour. La période de demi-vie du tritium est souvent trop courte pour les durées mises en jeu, et l'activité en carbone-14 est modifiée par des échanges avec le gaz carbonique et les carbonates ne contenant plus d'isotope radioactif. Le problème de la teneur initiale en carbone-14 est, ici, encore un problème majeur. Le tritium peut cependant donner des informations sur les mélanges que subit l'eau thermique en rencontrant des eaux plus récentes (Clark *et al.*, 1989). L'argon-39 pourrait permettre à l'avenir d'estimer les temps de séjour dans les systèmes hydrothermaux.

Une méthode indirecte d'approximation des temps de séjour par les isotopes du milieu est proposée par

Árnason (1977 a) sur des systèmes hydrothermaux islandais. La répartition géographique du deutérium dans les précipitations, conséquence de la combinaison de l'effet d'altitude et de l'effet de continentalité, permet de comparer la composition en deutérium des eaux souterraines à celle des précipitations. L'auteur suppose que lorsqu'une source froide ou chaude présente un $\delta^2\text{H}$ proche de la moyenne des précipitations de la même zone, la recharge est locale. La différence d'altitude jusqu'au champ géothermal divisée par la distance donne le gradient hydraulique moyen. En testant quelques valeurs pour l'épaisseur de l'aquifère et pour la porosité effective, l'auteur calcule la vitesse effective moyenne par la relation de Darcy, et en déduit le temps moyen de séjour.

2.2.4 Géothermométrie

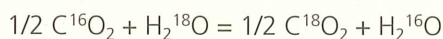
On désigne par géothermométrie les techniques chimiques ou isotopiques permettant d'estimer la température des fluides hydrothermaux en profondeur. Cette méthode de mesure indirecte permet de travailler sur les fluides en surface, sans appareillage particulier.

Principe

Le principe de base pour l'utilisation des isotopes est que la distribution des isotopes entre deux réactants participant à un équilibre est une fonction de la température. Si l'équilibre a été établi et n'a pas été modifié, il est alors possible d'estimer la température en profondeur en se basant sur les compositions en isotopes stables de chaque réactant.

En géothermométrie, pour décrire les réactions équilibrées, on utilise le facteur de fractionnement α plutôt que la constante d'équilibre K . α est le rapport des teneurs isotopiques dans les deux composés à l'équilibre. Il est identique à K si l'on écrit l'équation de façon à ce que l'échange isotopique ne mette en jeu qu'un seul atome (en choisissant les coefficients stœchiométriques appropriés).

Par exemple pour l'équilibre



on a :

$$K = \frac{[\text{C}^{18}\text{O}_2]^{1/2}[\text{H}_2^{16}\text{O}]}{[\text{C}^{16}\text{O}_2]^{1/2}[\text{H}_2^{18}\text{O}]} = \frac{[^{18}\text{O}/^{16}\text{O}]_{\text{CO}_2}}{[^{18}\text{O}/^{16}\text{O}]_{\text{H}_2\text{O}}} = \alpha$$

ce qui s'écrit en notation δ :

$$\alpha = \frac{1000 + \delta_{\text{CO}_2}}{1000 + \delta_{\text{H}_2\text{O}}}$$

Rigoureusement, le coefficient α doit être exprimé en fonction des activités thermodynamiques et non pas des concentrations (les activités étant assimilables ici à des concentrations efficaces). Il est possible de calculer les coefficients de fractionnement théoriques de nombreuses réactions isotopiques à partir des données spectrographiques des fréquences de vibration moléculaire. Pour tous les éléments sauf l'hydrogène, le facteur de fractionnement est proche de un pour toutes les réactions ayant lieu à des températures proches de celles des systèmes hydrothermaux. Le coefficient de fractionnement étant fonction de la température, il est possible de déterminer la température à laquelle la signature isotopique a été acquise par les différents composés. La relation entre le coefficient de fractionnement et la température est donnée au Tableau 2.2 pour chaque géothermomètre considéré.

Les géothermomètres isotopiques

Les isotopes du carbone ont été les premiers à être appliqués à la thermométrie des fluides hydrothermaux. Un des problèmes principaux de ces géothermomètres réside dans la variation de composition isotopique que peut subir l'eau au cours de son trajet dans le système. Le Tableau 2.2 donne un aperçu des différents géothermomètres les plus souvent utilisés dans les systèmes hydrothermaux.

Árnason (1977 b) a étudié le géothermomètre hydrogène dissous / eau liquide sur des zones géothermales

Géothermomètre	Coefficient de fractionnement α	Variation de α avec la température
$^{13}\text{CH}_4(\text{g}) / ^{12}\text{CO}_2(\text{g})$	$\alpha = \frac{1'000 + (\delta^{13}\text{C})_{\text{CO}_2}}{1'000 + (\delta^{13}\text{C})_{\text{CH}_4}}$	$1'000 \ln \alpha = -9,01 + 15,301 \times 10^3 \times T^{-1} + 2,361 \times 10^6 \times T^{-2}$ Relation valable entre 100 et 400°C.
$\text{H}_2^{18}\text{O}(\text{v}) / \text{C}^{16}\text{O}_2(\text{g})$	$\alpha = \frac{1'000 + (\delta^{18}\text{O})_{\text{CO}_2}}{1'000 + (\delta^{18}\text{O})_{\text{H}_2\text{O vapeur}}}$	$1'000 \ln \alpha = -8,87 + 7,85 \times 10^3 \times T^{-1} + 2,94 \times 10^6 \times T^{-2}$ Relation valable entre 100 et 400°C.
$\text{S}^{18}\text{O}_4^{2-}(\text{d}) / \text{H}_2^{16}\text{O}(\text{l})$	$\alpha = \frac{1'000 + (\delta^{18}\text{O})_{\text{SO}_4^{2-}}}{1'000 + (\delta^{18}\text{O})_{\text{H}_2\text{O}}}$	$1'000 \ln \alpha = -5,6 + 3,25 \times 10^6 \times T^{-2}, \text{ et}$ $1'000 \ln \alpha = -4,1 + 2,88 \times 10^6 \times T^{-2}$ Résultats similaires entre 0 et 300°C
$\text{C}^2\text{H}^1\text{H}_3(\text{g}) / ^1\text{H}_2(\text{g})$	$\alpha = \frac{1'000 + (\delta^2\text{H})_{\text{CH}_4}}{1'000 + (\delta^2\text{H})_{\text{H}_2}}$	$1'000 \ln \alpha = -238,3 + 289,0 \times 10^3 \times T^{-1} + 31,86 \times 10^6 \times T^{-2}$ Relation valable entre 100 et 400°C.

Tableau 2.2 Géothermomètres utilisés dans les systèmes hydrothermaux, et valeur du coefficient de fractionnement des échanges isotopiques en fonction de la température absolue. l: liquide; g: gaz; v: vapeur; d: dissous (d'après Panichi & Gonfiantini, in IAEA 1981).

d'Islande. L'équilibre considéré fait intervenir le deutérium selon la réaction:



Les températures isotopiques obtenues ont été comparées aux températures calculées à l'aide de la composition en silice de l'eau (un géothermomètre non isotopique), et aux températures directement mesurées dans des forages. Quand les échantillons ont été prélevés directement d'émanations naturelles à la surface, les températures isotopiques étaient inférieures aux plus hautes températures mesurées dans les forages de la même zone géothermique. La température isotopique pourrait dans ce cas représenter la température de l'aquifère le plus proche de la surface. Il est également possible que le rapport isotopique d'équilibre ait été modifié au cours de la remontée et du refroidissement des fluides, donnant des températures isotopiques systématiquement trop basses. Quand les échantillons ont été prélevés directement dans les forages, les températures isotopiques étaient comparables aux températures mesurées au fond du forage, ou plus élevées.

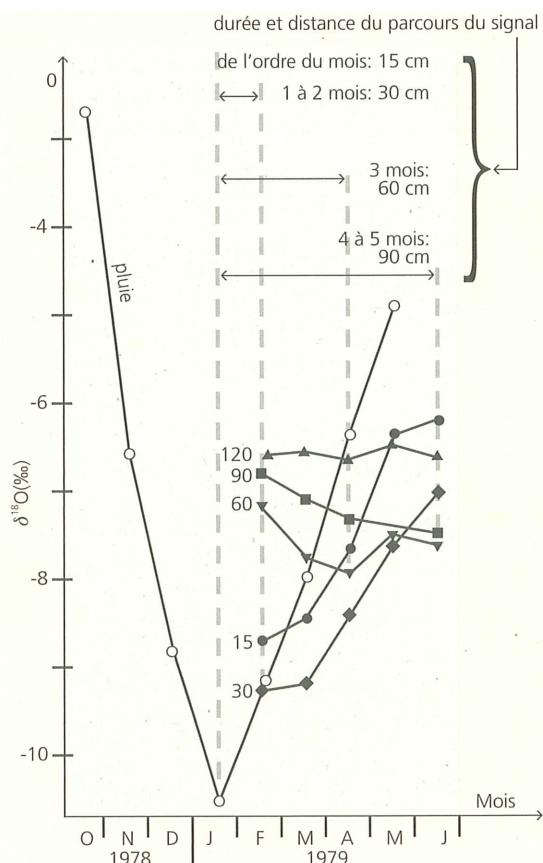


Figure 2.17 Oxygène-18 dans les pluies (cercles blancs) et dans le sol en fonction de la profondeur (symboles noirs), d'après Merot (1985).

2.3 Eau des horizons pédologiques

La dégradation de la qualité de l'eau des nappes, liée à l'emploi massif d'herbicides, de pesticides et d'engrais chimiques ou naturels, a accru l'intérêt porté aux problèmes de l'eau et des solutés dans les sols. L'étude du transfert de l'eau par les isotopes du milieu prend une importance toujours croissante dans ce domaine. Il est souvent difficile dans la littérature de faire la distinction entre les articles qui traitent de la zone non-saturée et ceux qui traitent du déplacement de l'eau dans les sols. Rappelons que Lozet & Mathieu (1990) définissent un sol comme le produit de l'altération, du remaniement et de l'organisation des couches supérieures de la croûte terrestre sous l'action de la vie, de l'atmosphère et des échanges d'énergie qui s'y manifestent. Le sol peut donc être ou ne pas être saturé en eau. De la même façon, la zone non-saturée peut être située dans la roche mère, dans le sol, ou dans les deux en même temps.

Le rôle important des isotopes du milieu pour l'étude de la zone non-saturée dans la gestion des ressources en eau a déjà été démontré aux paragraphes 2.1.2 et 2.1.3, sans distinction entre les différents environnements géologiques possibles. Dans ce chapitre, il ne sera question que des mouvements de l'eau dans les sols, que ce soit en régime saturé ou non. Le transport des polluants dans la zone non-saturée est traité au paragraphe 2.5.3.

Les caractéristiques hydrauliques les plus importantes du sol sont bien mises en évidence par l'oxygène-18 (Hamdi, 1990). Des analyses d'oxygène-18 effectuées sur différents types de sols ont montré l'influence de la capacité de rétention des différents horizons (en particulier des horizons organiques) sur les vitesses de transfert.

Les relations entre l'organisation du sol et les mouvements de l'eau ont été mises en évidence par Diab *et al.* (1988) sur un glossaqualf (sol caractérisé par la pénétration sous forme de langues d'horizons albiqes pauvres en argiles et en oxydes de fer dans un horizon argileux). Deux traceurs ont été utilisés: le bleu de méthylène et l'oxygène-18. Les deux approches ont mené à des conclusions similaires. Nous ne traiterons ici que de l'approche isotopique. La variabilité de la composition en oxygène-18 est plus forte au sein de la matrice que dans les langues. Les mélanges sont donc plus importants dans les langues albiqes. Par comparaison des compositions isotopiques dans le sol et dans les précipitations, il apparaît que la composition isotopique de l'eau contenue dans les langues correspond aux valeurs récentes des précipitations, alors que l'eau de la matrice reflète mieux la composition des précipitations de l'hiver. A la même profondeur, l'eau contenue dans

les langues est plus jeune que l'eau de la matrice. Les langues albiqes sont donc des chemins préférentiels de transfert qui court-circuitent la matrice en conditions saturées. Ces résultats sont attribués à la taille, la distribution et à la continuité des systèmes de pores. L'étude de la dynamique des écoulements de l'eau dans les sols nécessite une estimation du temps. Grâce au tritium, Siwertz (1973) a pu accéder à ce paramètre dans l'eau des sols. En alliant cet isotope radioactif à l'oxygène-18, deux éléments fondamentaux sont apparus. D'une part, les mécanismes sont différents suivant les saisons, l'eau circulant essentiellement dans la macroporosité du sol de l'été à l'automne, et dans la microporosité de l'hiver au printemps. D'autre part, durant le processus d'infiltration rapide, l'eau qui transite (essentiellement de l'eau gravifique) se mélange très peu à l'eau de rétention présente dans le sol. Pendant l'infiltration lente, le phénomène dominant est un mélange dispersif. Ces deux mécanismes ne peuvent pas avoir lieu simultanément, sauf pendant la courte période de transition.

On peut également accéder au facteur temps en utilisant les isotopes stables. C'est ce que montre Merot (1985) dans une étude du transfert vertical de l'eau dans un sol de Bretagne, en France. L'évaporation a été négligée comme facteur d'enrichissement isotopique car la campagne de mesure s'est effectuée sous une forte humidité et une évaporation faible. Comme en 2.1.2, on suppose que l'écoulement est de type piston.

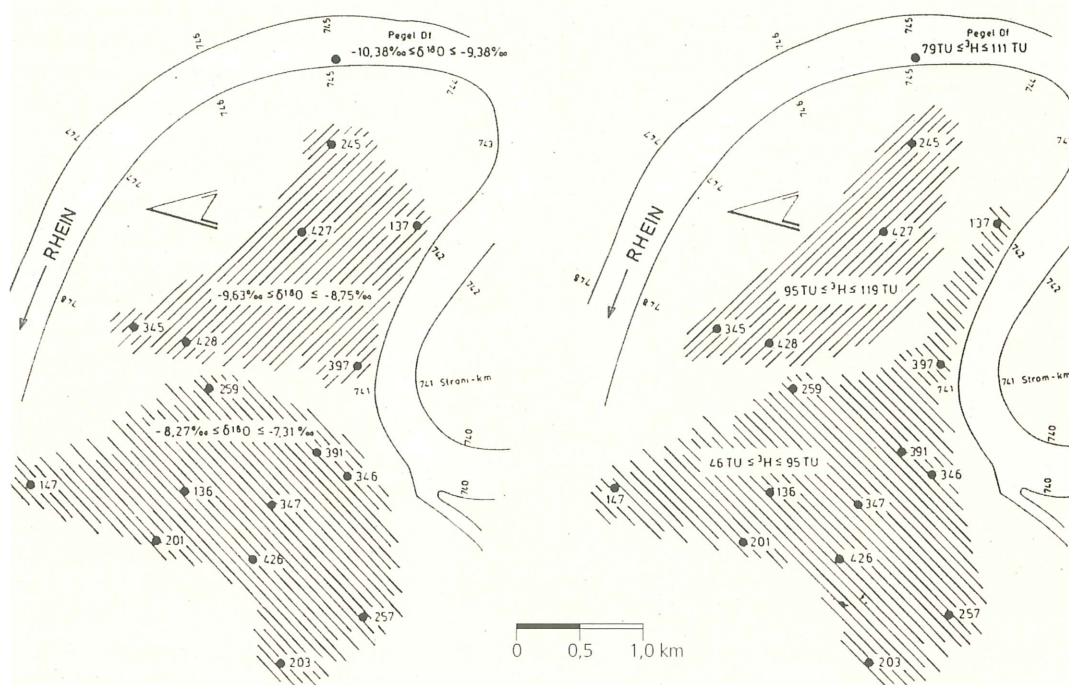
L'homogénéisation des constituants de l'eau est faible, mais les écarts s'estompent avec la profondeur.

Le temps moyen de transfert de l'eau dans le sol peut être estimé graphiquement. Sur la Figure 2.17 sont reportées les teneurs d'entrée en oxygène-18 dans la pluie et les variations mensuelles dans le sol à différentes profondeurs (en cm). On y observe à la fois un écartement important du signal depuis la surface jusqu'à 120 cm de profondeur, et un déphasage qui permet d'estimer le temps de transfert de l'eau depuis la surface: il est de l'ordre du mois à 15 cm et de l'ordre de 1 à 2 mois à 30 cm. A 60 cm, le signal est bien marqué et indique un temps de transfert moyen de 3 mois. Il faut 4 à 5 mois pour qu'il atteigne 90 cm. Enfin, à 120 cm, le signal est trop écrasé pour être interprété. Dans les premiers mètres du sol, l'écoulement est donc bien de type piston.

2.4 Communications entre eux souterraines et eaux de surface

Les connexions potentielles entre les eaux de surface et les eaux souterraines peuvent être étudiées par la piézométrie, les méthodes de traçage ou l'hydrochimie. Mais du fait des fortes anisotropies de la perméabilité dans les dépôts alluviaux, il est souvent difficile de savoir dans quelle mesure la carte piézométrique reflète les transferts de masses d'eau. Les méthodes faisant

Figure 2.18 Rive gauche du Rhin près de Düsseldorf (Allemagne). Répartition des teneurs en oxygène-18 à gauche, et activités en tritium à droite. TU: unités tritium (UT); «Pegel»: station de mesure du niveau du Rhin; «Strom-km»: kilométrage le long du Rhin. D'après Drost et al. (1982).



intervenir des traceurs colorés ou la chimie des eaux sont quant à elles limitées par la mauvaise connaissance des interactions entre ces substances et le milieu. L'évaporation des eaux de surface provoque un enrichissement en isotopes lourds par rapport aux eaux souterraines.

Dans les zones montagneuses, les bassins versants des cours d'eau sont situés en altitude. On peut donc s'attendre la plupart du temps à des différences de composition isotopique entre l'eau des cours d'eau et l'eau des nappes souterraines locales. Nous traiterons dans ce chapitre des connexions entre les cours d'eau et les eaux souterraines, de l'infiltration à partir des lacs d'accumulation, et de la décomposition des hydrogrammes.

Les interactions entre la neige ou la glace et les eaux souterraines se faisant essentiellement par l'intermédiaire des eaux de surface, nous ne ferons qu'allusion à ce problème au paragraphe traitant de la contribution des eaux souterraines et de surface au débit total des cours d'eau. Les lecteurs souhaitant en savoir plus sur le comportement des isotopes dans la neige et dans la glace peuvent consulter Árnason *in* IAEA (1981), Martinec (1972), et Moser & Stichler *in* Fritz & Fontes (1980) ou *in* Moser & Rauert (1980).

2.4.1 Infiltration d'un cours d'eau dans la nappe (Uferfiltration)

L'identification des zones d'infiltration de cours d'eau est importante pour l'implantation et la gestion des champs de captage d'eau souterraine, pour l'évaluation des risques de pollution, et pour certains problèmes

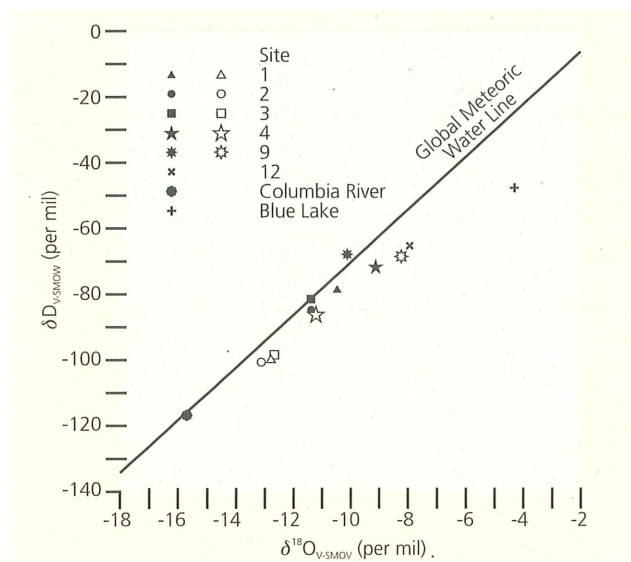


Figure 2.19 Composition en deutérium et en oxygène-18 avant (symboles noirs) et après (symboles blancs) le test de pompage pour différents sites de prélèvement. Les déviations sont données en ‰ (d'après McCarthy *et al.*, 1992).

de génie civil ou de génie hydraulique. Les isotopes du milieu sont des outils précieux pour l'observation et la détermination de la proportion d'eau de rivière infiltrée dans les aquifères. Nous allons illustrer ces aspects qualitatifs et quantitatifs par deux exemples.

Etude qualitative

La Figure 2.18 montre le site situé près de Düsseldorf (Allemagne), sur la rive gauche du Rhin. L'aquifère isolé par un méandre est constitué de 5 à 20 m de sables et graviers. De nombreux puits d'observation de l'eau ont permis à Drost *et al.* (1982) d'effectuer des mesures in situ et des analyses d'oxygène-18 et de tritium sur des échantillons prélevés. Les vitesses de filtration s'étendent de 0,04 à 4,4 m x d⁻¹ (m x d⁻¹ = mètres par jour). Les analyses isotopiques différencient deux types d'eau souterraine à l'intérieur du méandre.

Dans la partie est, les $\delta^{18}O$ sont compris entre -9,63 et -8,75 ‰, et les activités en tritium entre 95 et 119 UT. Par rapport à la partie est, les eaux de la partie ouest sont enrichies en oxygène-18 (-8,27 à -7,31 ‰), et appauvries en tritium (46 à 95 UT). La zone de faible activité en tritium s'étire près des berges vers le sud-est. Pour identifier les eaux d'infiltration, la composition isotopique des eaux du Rhin devait être déterminée. Les $\delta^{18}O$ atteignent en été la valeur minimale de -10,32 ‰ et en hiver la valeur maximale de -9,38 ‰. Les activités en tritium subissent la décroissance habituelle, et sont passées de 120 UT en 1980 à 79 UT en 1981. La comparaison de ces données permet de penser que l'eau de la zone la plus à l'est provient essentiellement de l'infiltration des eaux du Rhin. Les teneurs en oxygène-18 montrent que l'infiltration se fait plutôt en hiver, c'est-à-dire en période de crue du Rhin. L'activité des eaux du Rhin étant de 79 UT en 1981, l'eau souterraine doit être plus ancienne que ces eaux d'infiltration (activités en tritium comprises entre 95 et 119 UT).

Etude quantitative

De nombreux modèles d'interaction entre les eaux souterraines et les eaux de surface ont été développés. Cependant, il existe actuellement peu de méthodes pour estimer la fraction d'eau souterraine provenant d'une rivière. McCarthy *et al.* (1992) ont utilisé le deutérium et l'oxygène-18 comme traceurs naturels pour l'investigation des relations entre l'aquifère graveleux du Blue Lake et la rivière Columbia dans le nord-ouest de l'Oregon. Des séries temporelles de données au cours d'un test d'aquifère permettent une détermination de l'effet du pompage de l'eau sur ces relations. Les deux hypothèses testées étaient: 1) l'aquifère et la rivière sont-ils connectés?; 2) quelle est la proportion de l'eau pompée provenant de la rivière? On peut répondre par l'affirmative à la première question car les isotopes

stables ont montré une évolution de la composition des eaux de l'aquifère au cours du pompage.

Le test a été effectué sur cinq puits de production alimentés par l'aquifère des graviers du Blue Lake. Le pompage a commencé le 5 mars 1990 sur les sites 1, 2, 3, 6 et 7 et a duré sept jours. Le débit total moyen de pompage a été de $2 \text{ m}^3 \times \text{s}^{-1}$, pour des débits individuels de $0,2$ à $0,5 \text{ m}^3 \times \text{s}^{-1}$ par puits. A partir du 7 août 1990, le puits 1 a pompé pendant 22 jours supplémentaires un débit de $0,4 \text{ m}^3 \times \text{s}^{-1}$. Les variations de composition isotopique observées pendant ce test sont illustrées par la Figure 2.19. Les compositions isotopiques des sites 1 à 4 se déplacent de façon significative vers celle de la rivière Columbia.

Il restait à quantifier cet apport d'eau de surface. Sur la base d'une simple théorie de mélange (conservation de la matière), il est possible d'estimer la contribution de la rivière à l'eau produite par chaque puits en utilisant la relation:

$$PR_t = \frac{C_i - C_t}{C_i - CR} \times 100$$

PR_t étant la contribution de la rivière au produit du puits considéré au temps t , C_i la composition isotopique initiale de l'eau souterraine dans le puits, C_t la composition isotopique dans le puits au temps t , et CR la composition isotopique de la rivière Columbia. Cette équation suppose qu'initialement la contribution de la rivière à l'eau produite par le puits est négligeable, et que la composition isotopique de la rivière est constante pendant la période d'étude. Les calculs sur la base des compositions en deutérium et en oxygène-18 observées après 5 à 6 jours de pompage indiquent que la rivière Columbia contribue pour environ 40 à 50 % à l'eau produite par les puits 1, 2 et 3. Au site 1 par exemple, une variation du $\delta^{18}\text{O}$ de -10,6 à -12,9 ‰ entre le 5 et le 11 mars, et un $\delta^{18}\text{O}$ de -15,7 ‰ pour la rivière Columbia indiquent une contribution de la rivière de 45 % par rapport au total produit par le puits. Deux jours après que le pompage ait cessé, 30 % de l'eau du puits 4 provenait de la rivière Columbia.

2.4.2 Etanchéité des lacs d'accumulation

Des échanges entre l'eau souterraine et l'eau d'un lac peuvent influencer une nappe exploitée pour son eau potable, un ouvrage de barrage, ou encore un canal. Une fuite peut menacer la stabilité de l'ouvrage ou tout simplement diminuer son rendement économique. Elle peut concerner l'ouvrage lui-même, ses fondations, ou son environnement géologique, et peut être selon les cas ponctuelle ou étendue. Dans tous les cas, il est impératif de localiser et de quantifier la fuite.

A titre d'exemple, il était prévu de construire un barrage pour produire de l'électricité sur la rivière Vjosa en Albanie. Malheureusement, on suspectait une connexion entre la rivière et les sources de Poçeme situées de l'autre côté de la montagne. Si cette connexion était prouvée, il faudrait alors choisir un autre site. Une campagne de mesure des isotopes du milieu a débuté en juin 1986 pour une période d'un an. Les données isotopiques ont montré que l'eau des sources provenait bien de la rivière, et ce site a été abandonné (Akiti *et al.*, 1990). Cet exemple montre bien la capacité des méthodes isotopiques à résoudre des problèmes concrets, aux retombées économiques considérables. Plusieurs méthodes sont utilisées dans ce type d'investigations. On met en oeuvre principalement les techniques de marquage et la méthode des bilans de masse. Nous ne traiterons ici que des méthodes faisant intervenir les isotopes du milieu. Les lecteurs intéressés par les méthodes de traçage peuvent se procurer les actes du symposium de l'IAEA de 1970 (Isotope Hydrology), qui consacre un chapitre aux fuites à travers les barrages ou les canaux (deux articles sur quatre sont en russe), ou consulter: pour les isotopes stables, Ploethner & Geyh (1990); pour les isotopes stables associés à l'hydrochimie, Thierrin & Schotterer (1990); pour les injections de tritium, Aoki *et al.* (1996); pour les injections de tritium associées aux isotopes stables, Abidin *et al.* (1996); pour le tritium associé au brome-85, Nair *et al.* (1980); et enfin Plata Bedmar & Iraguen (1992) qui ont mis en oeuvre toute une batterie de méthodes de traçage: oxygène-18, deutérium, tritium, carbone-13, iode-131, brome-82, tritium injecté, et pour finir l'inévitable uranine.

Une étude quantitative des relations entre un lac et un système d'eaux souterraines n'est pas possible avec un nombre réduit d'échantillons dans le cas où les compositions isotopiques des eaux souterraines et du lac varient. Les variations saisonnières de la composition isotopique du lac sont en général le facteur limitant de cette méthode. Pour une variabilité des compositions isotopiques de l'eau du lac de $\pm \Delta$ ‰ et une différence de A ‰ entre l'eau souterraine et l'eau du lac, Payne *in* IAEA (1981) exprime la limite de détection de la contribution des eaux de surface aux échantillons d'eau souterraine par le rapport Δ / A .

La méthode des bilans de masse appliquée aux isotopes stables constitue un outil d'intégration de la complexité spatiale et temporelle des écoulements autour d'un lac, et se substitue efficacement aux méthodes traditionnelles. Krabbenhoft *et al.* (1990, *part* 1) donnent le détail de cette méthode et l'accompagnent d'un exemple. Le bilan de masse d'un lac à l'équilibre avec son environnement est donné par la relation:

$$\frac{dV}{dt} = G_i + S_i - G_o - S_o + P - E = 0$$

G_i et S_i étant respectivement les entrées d'eau souterraine et de surface, G_o et S_o les sorties d'eau souterraine et de surface, P les précipitations, E l'évaporation, V le volume d'eau dans le lac, et t le temps. Les termes de droite peuvent être exprimés dans toutes les dimensions ($[L \times T^{-1}]$ ou $[L^3 \times T^{-1}]$) si les variations du niveau du lac n'entraînent pas de variations considérables de sa surface. De la même façon, le bilan de masse pour les isotopes s'écrit :

$$\frac{d(V\delta_L)}{dt} = G_i\delta_{Gi} + S_i\delta_{Si} - G_o\delta_L - S_o\delta_L + P\delta_P - E\delta_E = 0$$

chaque terme de l'équation étant multiplié par la déviation isotopique de l'eau considérée (L pour lac). En combinant les deux équations ci-dessus, on obtient une expression de l'entrée d'eau souterraine :

$$G_i = \frac{[P(\delta_L - \delta_P) + S_i(\delta_L - \delta_{Si}) + E(\delta_E - \delta_L)]}{(\delta_{Gi} - \delta_L)}$$

Les sorties d'eau sont alors assimilées au résidu du bilan hydrologique du système. Dans cette équation, l'entrée d'eau est exprimée indépendamment de la sortie d'eau souterraine, ce qui est très important puisque les deux termes sont difficiles à exprimer. Tous les termes de cette dernière équation sont directement mesurables, à l'exception de la composition isotopique δ_E de la vapeur d'eau du lac. Ce terme est donc la principale source d'erreur. Pour le calculer, on peut utiliser la relation :

$$\delta_E = \frac{(\alpha^* \delta_L - h\delta_A - \epsilon)}{(1 - h + \Delta\epsilon \times 10^{-3})}$$

où α^* est le facteur de fractionnement isotopique à l'équilibre (fonction de la température), $\Delta\epsilon$ le facteur de fractionnement cinétique exprimé en ‰ avec $\Delta\epsilon = K(1 - h)$ et $K = 14,3$ pour l'oxygène-18, ϵ le facteur de fractionnement total exprimé en ‰ avec $\epsilon = 1000(1 - \alpha^*) + \Delta\epsilon$, h l'humidité relative (fonction de la température), et δ_A la composition isotopique de la vapeur atmosphérique locale. La relation donnant δ_E en fonction des facteurs de fractionnement est dérivée d'un modèle multicouche qui décrit le comportement isotopique des masses d'eau à l'évaporation. En principe, pour obtenir des résultats précis il est nécessaire de mesurer tous les paramètres, y compris δ_A .

Cette approche mathématique a été appliquée au lac Sparkling aux Etats-Unis. Afin d'utiliser des données déjà existantes, les valeurs mensuelles du facteur de

fractionnement cinétique ont été calculées sur la base de mesures journalières de l'humidité au dessus d'un lac situé à 1 km au sud-ouest du lac Sparkling. Le facteur de fractionnement à l'équilibre a été calculé pour des périodes d'un mois. Ces deux facteurs de fractionnement ont permis de calculer la composition isotopique mensuelle de la vapeur s'échappant du lac Sparkling. Ces valeurs mensuelles ont été pondérées par les taux d'évaporation mensuels pour obtenir la valeur moyenne annuelle de $\delta_E = -16,5$ ‰. Les précipitations mensuelles ont été pondérées de la même façon, et combinées à des analyses isotopiques de glace pour estimer la composition isotopique moyenne annuelle de la pluie. Le flux entrant d'eau souterraine ainsi calculé atteint $29 \text{ cm} \times \text{a}^{-1}$. Le lac Sparkling n'ayant pas d'affluent ni d'effluent de surface, le bilan hydrologique donne un flux de sortie d'eau souterraine de $54 \text{ cm} \times \text{a}^{-1}$ (les précipitations et l'évaporation étant respectivement de 79 et $54 \text{ cm} \times \text{a}^{-1}$).

Krabbenhoft *et al.* (1990, part 2) proposent une approche tridimensionnelle de la modélisation des échanges entre les lacs et les eaux souterraines, en appliquant leurs résultats à un lac du Wisconsin (Etats-Unis).

2.4.3 Décomposition des hydrogrammes

Les relations entre les précipitations, les eaux souterraines, et les débits des cours d'eau sont un des problèmes les plus importants en hydrologie. Ces relations sont la clé des mécanismes qui règlent les débits des cours d'eau et qui parfois engendrent des inondations au cours des orages ou pendant la période de fonte des neiges. La recharge d'un cours d'eau est fonction du climat, de la géologie, de la topographie, des sols, de la végétation, de la nivologie et de la glaciologie, ainsi que de l'aménagement du territoire. L'importance des différents paramètres peut varier suivant les endroits, et parfois même dans les limites du bassin d'alimentation. Dans tous les cas, on admet qu'il existe trois composantes dans l'alimentation des cours d'eau : le ruissellement de surface, l'écoulement de subsurface, et l'écoulement souterrain. Weizu (1992) a montré par des études expérimentales que cet écoulement souterrain pouvait provenir essentiellement de la zone capillaire constituant l'interface entre les zones saturée et non-saturée. Plusieurs approches sont applicables à l'étude de ces processus : 1) suivi hydrométrique à l'aide de moulinets, de pluviomètres, de puits d'observation, ou de tensiomètres par exemple ; 2) simulations mathématiques ; et 3) suivi des espèces dissoutes ou des isotopes du milieu. Nous allons bien entendu nous intéresser à ce dernier point.

Le bilan des débits en un point précis d'un cours d'eau quelconque est donné par la relation (Freeze & Cherry, 1979) :

$$Q = Q_p + Q_o + Q_s + Q_g$$

Q est le débit du cours d'eau, Q_p , Q_o , Q_s , et Q_g représentent respectivement les contributions des précipitations tombant directement sur le cours d'eau, du ruissellement de surface, et des écoulements de subsurface et souterrains. Dans la plupart des cas, Q_p est négligeable devant Q . On simplifie cette relation en regroupant Q_o et Q_s en un terme Q_d que l'on désigne par ruissellement direct de surface. On obtient alors:

$$Q = Q_d + Q_g$$

En termes de bilan de masse isotopique, chaque débit de l'équation précédente peut être multiplié par la quantité C d'isotope dans l'eau respective (concentration ou activité suivant que l'on parle d'isotope stable ou de radioisotope). On obtient alors:

$$C \times Q = C_d \times Q_d + C_g \times Q_g$$

La combinaison de ces deux dernières équations nous donne l'expression de la contribution des eaux souterraines au débit total du cours d'eau:

$$\frac{Q_g}{Q} = \frac{C - C_d}{C_g - C_d}$$

Cette formule simple a été appliquée par Martinec (1972) sur un bassin versant du Nord de la République Tchèque, la vallée de Modry Dul. L'objectif était

d'étudier l'influence de la fonte du manteau neigeux sur l'hydrologie du bassin versant. Le tritium a été choisi comme marqueur du fait de la constance de son activité dans le manteau neigeux. L'activité moyenne C_g des eaux souterraines atteignait 730 UT en 1966, celle du manteau neigeux C_d , 250 UT.

D'après les théories admises à l'époque, l'activité C du cours d'eau en période de fonte des neiges aurait dû être proche de 250 UT, puisque l'on supposait à l'époque que la neige fondue participait pour plus de 95 % au débit total du cours d'eau. Or la Figure 2.20 montre que l'activité dans le cours d'eau était beaucoup plus élevée (apports d'eau ancienne). L'application de la relation précédente, en tenant compte des variations dans le temps de l'activité en tritium dans le cours d'eau, a montré que la contribution des eaux souterraines au débit total du cours d'eau avait été largement sous-estimée. On remarquera également que cette contribution diminue quand le débit total augmente, ce qui diminue l'activité de l'eau (l'eau de fonte prenant alors de plus en plus d'importance). Une telle contribution des eaux souterraines amène à envisager un processus particulier d'écoulement. La fonte du manteau neigeux entraîne une augmentation très rapide du potentiel hydraulique dans l'aquifère, et simultanément une augmentation du débit total d'exfiltration des eaux souterraines. Ce n'est qu'avec un certain retard que les eaux de fonte contribueront directement à l'écoulement dans le cours d'eau.

Sklash & Farvolden (1980) ont appliqué la même méthode à un épisode pluvieux survenu en Ontario (Canada), au cours duquel il est tombé 100 mm d'eau en trois jours. Ces auteurs ont choisi d'utiliser l'oxygène-18. La déviation isotopique de la pluie était de -18,1 ‰, et celle du débit de base avant l'événement de -7 ‰ (le 22 avril 1977). L'eau du cours d'eau s'est fortement appauvrie au cours de cette période, et a atteint des valeurs proches de -8,5 ‰ le 25 avril 1977. Par une application numérique de l'équation ci-dessus, on s'aperçoit que l'eau souterraine a contribué pour plus de 85 % au débit total du cours d'eau, ce qui va dans le sens des conclusions de Martinec (1972). On trouvera entre autres dans Bariac *et al.* (1995), Harum & Fank (1992), et Rodhe (1989) des exemples du même type.

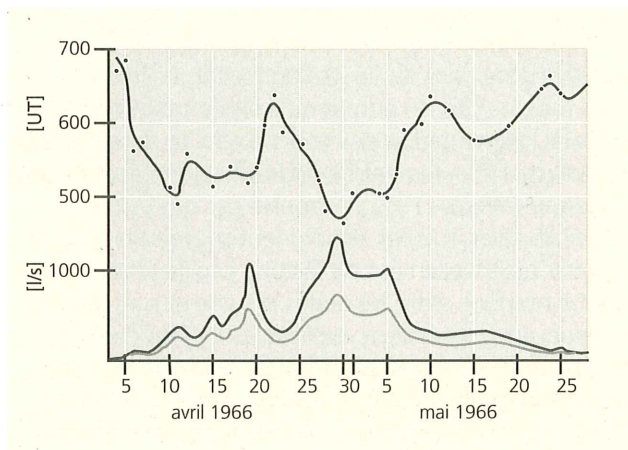


Figure 2.20 En haut, évolution dans le temps de l'activité en tritium dans le cours d'eau de la vallée de Modry Dul (République Tchèque), en période de fonte des neiges (UT = unités tritium). En bas: débit total du cours d'eau (traits noir) et contribution des eaux souterraines au débit du cours d'eau (trait gris). D'après Martinec (1972).

2.5 Contamination des eaux souterraines

Toute activité intensive, qu'elle soit industrielle ou agricole, peut conduire à une pollution si les rejets de substances dans l'environnement ne sont pas maîtrisés. Ces pollutions de surface influent sur le milieu et en particulier sur les nappes d'eau souterraine. Toutes les techniques sont utilisables pour traiter les problèmes de pollution des eaux souterraines, et en particulier les méthodes isotopiques développées dans les chapitres précédents sur lesquelles nous ne reviendrons pas. Nous ne donnerons pas de recette infaillible pour résoudre les problèmes de contamination des eaux (sinon qu'il vaut mieux prévenir que guérir! cf. paragraphe 2.5.1), mais nous allons tenter de montrer, par plusieurs exemples, de quelle façon les isotopes du milieu contribuent à mieux traiter les problèmes de pollution des eaux souterraines.

2.5.1 Zones de protection

Dans certains pays dont la Suisse, les limites des zones de protection sont définies notamment en fonction des temps de résidence de l'eau dans la zone saturée (Blau, 1990). Les radioisotopes sont donc un outil précieux de délimitation des zones de protection. Cependant, les modèles de détermination des âges sont affectés par deux processus: la diffusion et les mélanges d'eaux isotopiquement différentes. L'interprétation de toute datation isotopique nécessite donc une étude hydrogéologique complète, car la seule radiodotation de l'eau peut mener à des résultats erronés (voir 2.1.5). Les âges radiométriques risquent d'être confondus avec les âges réels. C'est pourquoi Matthess *et al.* (1976), après avoir tenté de délimiter des zones de protection par le tritium et le carbone-14, proposent de ne prendre en compte que les activités mesurées sans aucun calcul d'âge. Une alternative serait de donner une interprétation détaillée des données sur la base d'observations hydrauliques, hydrogéologiques, chimiques et isotopiques, avec des conclusions utilisables pour les autorités responsables de la détermination des zones de protection.

L'évaluation de la vulnérabilité des eaux souterraines est confrontée à de nombreux facteurs de nature différente, qu'il est souvent difficile d'évaluer objectivement. Un nouveau concept de combinaison de ces différents facteurs a été proposé par Gellermann *et al.* (1990). Ces auteurs proposent de définir un indice de protection qui serait la somme d'un indice d'autoépuration, d'un indice de retard, et d'un indice de dilution. Les deux premiers indices sont spécifiques de chaque polluant et donc difficiles à estimer. Le dernier, correspondant au minimum de l'indice de protection, représente

la fraction d'eau récente, et peut être calculé par les méthodes isotopiques. Cette approche particulièrement objective fait malheureusement appel aux modélisations, et l'on sait combien le choix du modèle peut influencer le résultat.

2.5.2 Origine d'une contamination

Le cas d'une pollution d'un aquifère par des composés organo-chlorés au sud de Francfort est présenté par Dörr & Werner (1996). La station d'épuration des eaux voisine a rapidement été mise en cause car son exutoire sillonne le bassin versant de l'aquifère, et du fait de traces de bore et de phosphates dans les analyses. L'Allemagne appliquant le principe du pollueur-payeur, une étude plus complète a été mise en oeuvre pour définir si et dans quelle mesure la station d'épuration était responsable. Le deutérium et l'oxygène-18 ont confirmé la connection entre l'exutoire de la station d'épuration et les eaux souterraines (voir 2.4), sans pour autant donner la preuve d'une contamination. Un comptage indirect du tritium par l'hélium a donné des âges précis en fonction de la distance à la station d'épuration, desquels on a déduit une vitesse de filtration (voir 2.1.5). Les résultats de ces investigations ont été confrontés à différents scénarii. Il est alors apparu que la station n'est pas la source de la contamination, mais qu'il existe probablement un ancien dépôt de déchets industriels sur le site même de cette station.

2.5.3 Déplacements des polluants dans la zone non-saturée

Les mouvements de l'eau dans la zone non-saturée ont déjà fait l'objet des sections 2.1.2, 2.1.3 et 2.3, et il est conseillé de s'y reporter pour une meilleure compréhension de l'apport des méthodes isotopiques pour l'étude de la zone non-saturée. Nous traiterons ici de l'apport des méthodes isotopiques dans le traitement des pollutions en relation avec la zone non-saturée.

Une étude expérimentale mettant en oeuvre deux lysimètres en vue de caractériser le transport des polluants dans la zone non-saturée a donné d'intéressants résultats sur le transport de l'eau dans les pores, et en particulier sur l'influence de la végétation (Papesch & Rank, 1995). Le site de l'un des lysimètres était cultivé (colza), alors que l'autre était en jachère après avoir porté du maïs en été. Les essais ont consisté à étudier le comportement d'eau tritiée injectée dans le milieu par arrosage en mesurant périodiquement les compositions isotopiques des percolats traversant ces lysimètres. Les signaux de sortie du tritium sont très amortis pour le lysimètre cultivé, alors que l'on retrouve pratiquement la forme du signal d'entrée pour celui en jachère. Les auteurs interprètent ces résultats de la manière suivante

pour le lysimètre cultivé au colza: à chaque arrosage, une petite partie de l'eau tritiée passe dans le percolat par l'intermédiaire de la macroporosit , mais la majeure partie de l'eau triti e est captur e par le sol. Le tritium est lib r  progressivement et augmente peu   peu dans le percolat. Dans le lysim tre en friche, le sol pr sente une forte macroporosit  due probablement   la d composition des racines de ma s. Un brutal lessivage des macropores se produit apr s arrosage. Seulement une petite partie de l'eau d'arrosage reste stock e dans le sol, et le lysim tre restitue tr s rapidement le tritium inject  sans amortir le signal d'entr e. Ces r sultats montrent bien l'influence de la porositt  et du mode de culture sur le d placement de l'eau et des substances qu'elle transporte.

Il ne suffit pas d' tudier les mouvements de l'eau pour traiter un probl me de pollution. On doit tenir compte de nombreux facteurs comme la dispersion, la densitt , la r activit  chimique, la d gradabilit  du compos , ou un  ventuel facteur de retardement. French *et al.* (1996) par exemple ont propos  une m thode de calcul des dispersivit s longitudinales et transversales dans la zone non-satur e   l'aide de plusieurs traceurs dont de l'eau triti e. Cette  tude avait pour objet de pr ciser les modalit s de transport de l'eau, des antigels, et du propyl ne glycol sous les pistes d'un a roport en projet   Gardermoen en Norv ge.

La complexit  de ces processus de transport des polluants dans la zone non-satur e n cessite la plupart du temps une approche par la mod lisation math matique. Maciejewski *et al.* (1996), ont utilis  les variations naturelles en deut rium, mesur es entre 1984 et 1991 dans des lysim tres, pour calibrer des mod les de transports de type mod les empiriques (voir 1.3.1). Un des mod les  tait le mod le dispersif vu en 1.3.1. L'autre mod le, beaucoup plus complet du point de vue hydrog ologique, prenait en compte deux phases aqueuses (l'une mobile, l'autre immobile), ainsi que le gradient de potentiel hydraulique et la perm abilit  (d termin e par des essais en colonne). L'ajustement des donn es mesur es et des concentrations simul es par ces deux mod les math matiques a permis de calculer le temps de transit moyen et la dispersivit  longitudinale, mais aussi des param tres sp cifiques   la zone non satur e comme le rapport volumique entre l'eau mobile et l'eau immobile, et le coefficient d' change du traceur entre ces deux phases.

2.5.4 R le des aquitards

Par d finition, les aquitards sont des niveaux constitu s de mat riaux de faible perm abilit , ne laissant passer l'eau que tr s lentement. Les aquitards r gionaux jouent un r le important dans l' volution chimique et physique des syst mes d'eau souterraine. Ils enregistrent

l' volution de l'eau souterraine dans la composition chimique et isotopique de l'eau contenue dans leur porositt . Love *et al.* (1996) ont montr  gr ce   l' tude du deut rium et des chlorures sur un aquitard d'Australie m ridionale que si cette couche joue bien le r le de barri re, on ne peut pas exclure les transports d'eau et de solut s par l'intermédiaire de chemins pr f rentiels, en particulier par les failles. Remenda *et al.* (1996) ont montr , en mesurant la perm abilit  dans un aquitard   l'aide de profils en isotopes stables, que les tests conventionnels ont tendance   surestimer la perm abilit . La premi re  tude de cas ci-dessous illustre   nouveau l'importance de ces couches peu perm ables, et le r le que peuvent jouer les isotopes dans ce genre d'investigations.

2.5.5  tudes de cas

Pollution urbaine

L'aquif re de la molasse d'eau douce sup rieure tertiaire de la r gion de Munich (M nchen-Allemagne) est riche en eau et est exploit  par de nombreux puits atteignant 250 m de profondeur. L'eau profonde est potable sans traitement. En revanche, l'eau de l'aquif re quaternaire sus-jacent est de plus en plus pollu e. Un niveau peu perm able de 30 m d' paisseur contenant des lentilles sableuses s pare plus ou moins bien les deux aquif res. Il  tait capital pour les ressources en eau de la zone urbaine de Munich d' valuer dans quelle mesure l'eau de l'aquif re profond peut  tre contamin e par l'eau

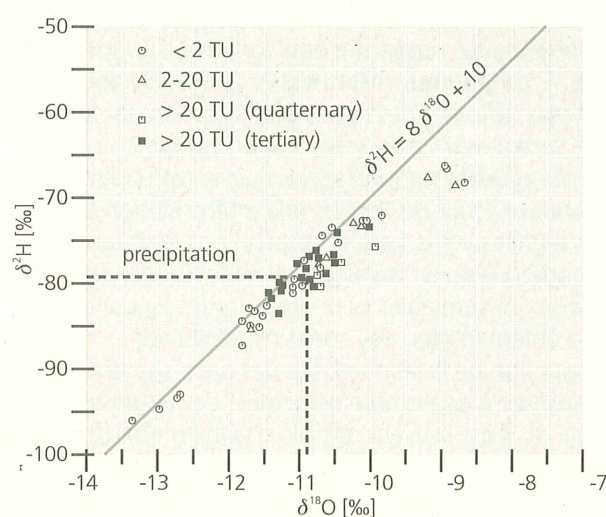


Figure 2.21 Relation deut rium/oxyg ne-18 des eaux souterraines des aquif res du Tertiaire et du Quaternaire, et valeur annuelle moyenne dans les pr cipitations sur la zone  tudi e. La ligne m t eorologique mondiale et les activit s en tritium sont  galement indiqu es. TU = unit  tritium, UT. D'apr s Rauert *et al.*, (1993).

polluée de subsurface. Une étude détaillée de la situation a alors été mise en oeuvre (Rauert *et al.*, 1993). Les activités en tritium de l'eau de l'aquifère quaternaire s'étendent de 26 à 88 UT, celles de l'aquifère tertiaire de 0,7 à 82 UT. La présence de tritium dans l'aquifère tertiaire montre bien que l'aquitard ne joue pas bien son rôle de barrière. Les teneurs en nitrates, sulfates, chlorures, hydrocarbures et l'activité en tritium diminuent en fonction de la profondeur. Les profils de tous ces éléments étant similaires, on peut penser qu'ils sont dus à des entrées simultanées de ces substances provenant du salage des routes en hiver, de l'agriculture, et des industries.

La profondeur H du front de tritium (45 à 55 m) a servi à calculer par la formule simple ci-dessous la recharge moyenne R de l'aquifère, en tenant compte du temps écoulé depuis le premier essai atomique en atmosphère (1952), de la porosité effective η (estimée à 0,1 par modélisations), et de la surface S considérée:

$$R = H \times S \times \eta / t$$

La recharge calculée se situe entre 150 et 200 mm $\times a^{-1}$. Sur un graphe deutérium en fonction de l'oxygène-18 (Figure 2.21), on peut distinguer trois groupes d'eaux souterraines:

- Les quelques eaux les plus pauvres en isotopes lourds, mais toujours sur la ligne météorique, ont probablement été infiltrées sous un climat plus froid que le climat actuel (Pléistocène).
- Les eaux de composition intermédiaire représentent les eaux récentes.
- Les eaux les plus riches et légèrement décalées vers la droite ont probablement été influencées par l'évaporation (lacs au sud de Munich ou eau industrielle de refroidissement).

Ces principaux résultats (et d'autres omis pour plus de clarté) ont permis aux auteurs de formuler les quelques recommandations et obligations suivantes pour l'exploitation des eaux souterraines:

- L'exploitation des eaux souterraines est limitée aux usages nécessitant une qualité d'eau de boisson.
- Les pompages doivent être limités et ne pas être concentrés dans certaines zones.
- La qualité de l'eau doit être préservée et toute injection dans le sous sol d'eau de refroidissement ou d'eau usée et interdite.
- Les vieux trous de forage mettant en communication les deux aquifères doivent être bouchés.

Pollution par les nitrates

L'agriculture intensive utilise de grandes quantités de fertilisants azotés. Ces composés utilisés en excès libèrent des ions nitrates dans le sous-sol, ce qui engendre de graves problèmes de contamination des eaux souterraines. Si les teneurs en oxygène-18 et en azote-15 des ions nitrates peuvent être directement utilisées pour caractériser la pollution (Kendall *et al.*, 1996), on s'attache en général à mettre en relation les concentrations en nitrates et les mouvements de l'eau. Les mécanismes de transport des nitrates dans un aquifère multi-stratifié des environs de Constance (Allemagne) ont été mis en évidence par Watzel & Bertleff (1992). Les isotopes stables ont permis de différencier les diverses composantes de l'eau souterraine (apports des précipitations locales et de l'eau d'un système karstique voisin), alors que le tritium a donné les temps de transit. Dans une étude de la dégradation de la qualité des eaux souterraines dans une vallée agricole de Californie (Etats-Unis), Lee Davisson & Criss (1996) ont associé les variations de composition isotopique de l'eau à l'influence de l'irrigation. Dans l'état initial, les $\delta^{18}O$ des eaux souterraines étaient relativement homogènes (de l'ordre de $-7,0 \pm 0,5 \text{ ‰}$), indiquant une recharge par les eaux météoriques locales ($1 \text{ à } 3 \text{ m} \times a^{-1}$). Actuellement l'ouest de la vallée, dans la région de la ville de Davis, montre une distribution dominée par les eaux d'irrigation partiellement évaporées et enrichies en isotopes stables. Dans la partie est de la vallée, près de Brentwood, le faible

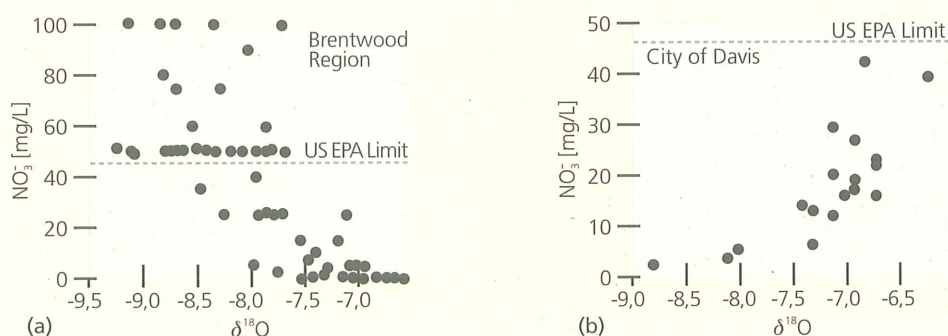


Figure 2.22 Concentration en nitrates dissous en fonction de l'oxygène-18 pour les régions de Brentwood (a) et de la ville de Davis (b), d'après Lee Davisson & Criss (1996).

enrichissement en oxygène-18 indique une recharge par des eaux de rivière drainant les reliefs de la Sierra Nevada. Comme le montre la Figure 2.22, les teneurs en oxygène-18 sont fortement corrélées avec les concentrations en nitrates.

L'augmentation des nitrates dans la région de Brentwood, irriguée essentiellement par de l'eau de montagne, est accompagnée d'un appauvrissement en oxygène-18, alors que dans la région de la ville de Davis, où de l'eau d'origine souterraine partiellement évaporée au cours de l'irrigation s'est infiltrée, cette augmentation est associée à un enrichissement en oxygène-18.

Pollution par les dépôts de déchets

Les déchets solides deviennent des sources de contamination des eaux souterraines quand ils sont déposés sur ou sous la surface du sol. La propagation de la pollution est limitée dans le temps et dans l'espace du fait de l'action épurative de certains phénomènes biologiques, physiques ou chimiques. De nombreux marqueurs ont été utilisés pour tracer la migration des lixiviats de décharge, et en particulier les chlorures et les bromures. Nous allons voir que les isotopes de l'oxygène et de l'hydrogène sont de plus en plus utilisés dans l'étude de ce type de pollution.

Les isotopes stables subissent dans les décharges un fractionnement notable par des mécanismes probablement aussi divers que complexes (processus biochimiques et biophysiques du type réduction anaérobie et oxydation aérobie, échanges gazeux etc.). L'enrichissement isotopique qui en résulte permet l'utilisation du deutérium et de l'oxygène-18 comme traceurs de la pollution des eaux souterraines (Fritz *et al.*, 1976).

Un site expérimental a été créé à Breitenau en Autriche

en vue d'étudier les processus bio-physico-chimiques au sein d'une décharge de déchets domestiques (Rank *et al.*, 1992). On a pu montrer en particulier que le début de la phase méthanogénique (production de grandes quantités de méthane dans les déchets) est caractérisée par un fort enrichissement en deutérium des lixiviats, alors que le méthane s'appauvrit peu à peu (Rank *et al.*, 1996).

Ce fractionnement isotopique est accompagné par un enrichissement progressif en tritium des lixiviats (Tazioli, 1996). Les mécanismes gouvernant les deux phénomènes sont cependant fondamentalement différents. Le tritium proviendrait simplement de la dégradation d'objets contenant des substances tritiées, comme les peintures luminescentes ou les tubes d'éclairage par exemple (voir 1.2.4). L'activité en tritium requise pour une montre par exemple est de 40×10^6 Bq, et les pertes sont estimées à environ 11'000 Bq par jour. Les pertes des sources gazeuses de lumière sont proches de 400 Bq par jour (rappelons qu'une unité tritium équivaut à $0,119 \text{ Bq} \times \text{l}^{-1}$). Une étude de plusieurs sites britanniques a montré que les activités en tritium dans les lixiviats pouvaient atteindre 3000 UT (Robinson & Gronow, 1995). Nous allons voir ci-dessous que les activités en tritium des lixiviats peuvent être encore plus importantes. Egboka *et al.* (1983) ont montré l'intérêt de ce tritium pour estimer la recharge à travers une décharge et la dispersion du panache de pollution dans l'aquifère sous-jacent.

Une série de mesures du tritium dans des lixiviats de décharge et dans des eaux contaminées a été effectuée au GEOLEP par l'auteur de ce présent rapport, et en collaboration avec M. Looser qui vient de terminer un travail de doctorat sur les traces inorganiques comme indicateur de pollution. Les activités des échantillons

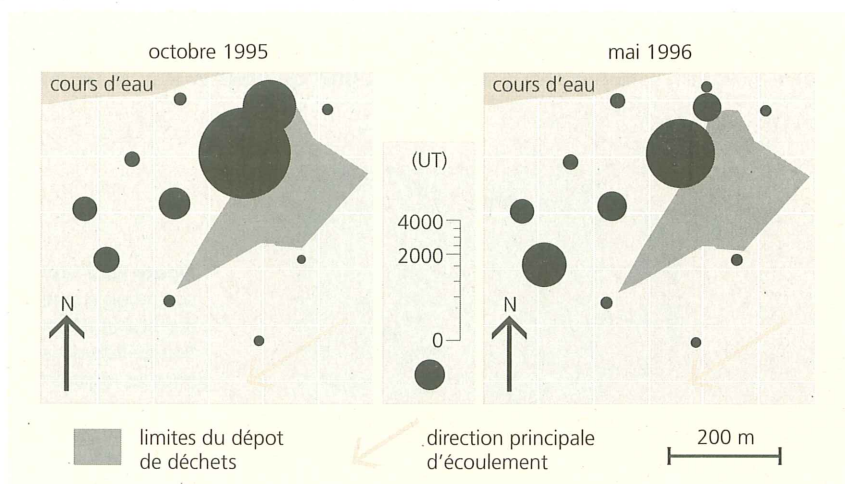


Figure 2.23 Evolution des activités en tritium entre 1995 et 1996 dans les eaux souterraines de la décharge de Châtillon (près de Genève en Suisse) ; tiré de Etcheverry & Parriaux (1998). Le diamètre des cercles est proportionnel à l'activité en tritium. Les données de 1996 ont été fournies par le Service cantonal de géologie du Canton de Genève, que nous remercions.

s'étendent du bruit de fond habituel pour les eaux souterraines jusqu'à plus de 24'000 UT pour les lixiviats. Nous avons utilisé le tritium comme traceur de pollution sur le site de la décharge de Châtillon près de Genève (Figure 2.23). L'aquifère, qui est pollué par ce site, est constitué essentiellement de graviers sableux bien perméables. L'écoulement est contrôlé par les variations de niveau d'un barrage sur le Rhône. L'écoulement, orienté du nord-est vers le sud-ouest, est dévié vers le sud en période de crue.

Les activités mesurées permettent de localiser approximativement la source principale de tritium (dans la partie nord du site), où les percolats étaient rejetés ponctuellement jusqu'en 1988. On remarque des activités très faibles dans la partie la plus à l'est, en amont de la décharge. La pollution tritiée se déplace bien selon les lignes de courants allant du nord-est vers le sud-ouest. Ces résultats concordent avec les concentrations anormales en bromures et en chlorures par exemple (Looser, 1997). Bien que les mesures n'aient pas été effectuées à la même saison, on peut proposer une interprétation de l'évolution entre 1995 et 1996. La similarité des résultats d'analyse de 1995 et de 1996 montre que la méthode est bien reproductible. On observe une diminution globale des activités, et une légère augmentation de l'activité dans le sens de l'écoulement. La diminution des activités est due à une dilution par les apports du Rhône en période de hautes-eaux. Ces apports d'eau du Rhône ont déplacé le pic de la pollution d'environ 300 m vers le sud-ouest. Cet exemple montre que le tritium est un bon marqueur de la pollution due à un dépôt de déchets. Cependant, l'applicabilité de ce marqueur est soumise à deux contraintes:

- Dans les niveaux peu perméables ou en dehors des axes principaux d'écoulement dans les niveaux plus perméables, l'eau se déplace très lentement. Une pollution ancienne peut être marquée par la présence de traces organiques ou inorganiques, alors que les activités en tritium sont très faibles. C'est ce que nous avons observé dans la zone au sud de la décharge de Châtillon, où des anomalies en sélénium et en titane indiquent une contamination sans tritium.
- Il existe des décharges ne contenant apparemment aucune source de tritium, ou pour lesquelles ces sources n'ont pas encore été mobilisées. Pourtant les traces inorganiques indiquent manifestement une contamination. C'est le cas par exemple des décharges des environs de Turin (Looser, 1997) ou pour certains percolats britanniques (Robinson & Gronow, 1995). L'absence de tritium ne signifie donc pas absence de pollution.

Pollution par les radionucléides

Les activités industrielles, de recherche ou encore militaires mettant en jeu des substances radioactives sont une source potentielle de pollution des eaux souterraines par des radionucléides. Pour évaluer le risque sanitaire potentiel encouru par diverses personnes en des endroits différents, Andricevic *et al.* (1994) utilisent une approche par les temps de transit en tenant compte de la désintégration radioactive. Dans cette approche, le principal paramètre est une fonction de densité de probabilité des temps de transit exprimée en fonction de la convection, de la dispersion, de l'adsorption, et de la désintégration. Le modèle est appliqué au site expérimental du Nevada (Nevada Test Site, NTS). Du fait de l'absence de phénomènes d'adsorption, la migration du tritium correspond au risque sanitaire le plus élevé dans l'environnement accessible. La prise en compte de l'adsorption et en particulier de la corrélation négative entre ce paramètre et la vitesse sont très importantes pour l'évaluation des temps d'arrivée des radionucléides en un lieu donné. Les résultats de cette analyse suggèrent que le tritium qui n'est pas adsorbé par l'aquifère et dont la demi-vie effective est courte (demi-vie physique et biologique; c'est à dire diminution de la concentration dans l'eau par désintégration radioactive et par l'activité biologique humaine respectivement), est responsable de 90 % du risque total en cas d'absorption par la population. Précisons sans vouloir banaliser la toxicité du tritium qu'il n'est question ici que de pollutions dues à de fortes activités en tritium occasionnées par des essais nucléaires, des dépôts de déchets radioactifs, ou par un accident dans une centrale nucléaire par exemple.

Le problème de la toxicité du tritium chez l'humain a déjà été traité en 1.2.7. Le paragraphe 2.6.3 traitera des sites de stockage souterrain des déchets radioactifs.

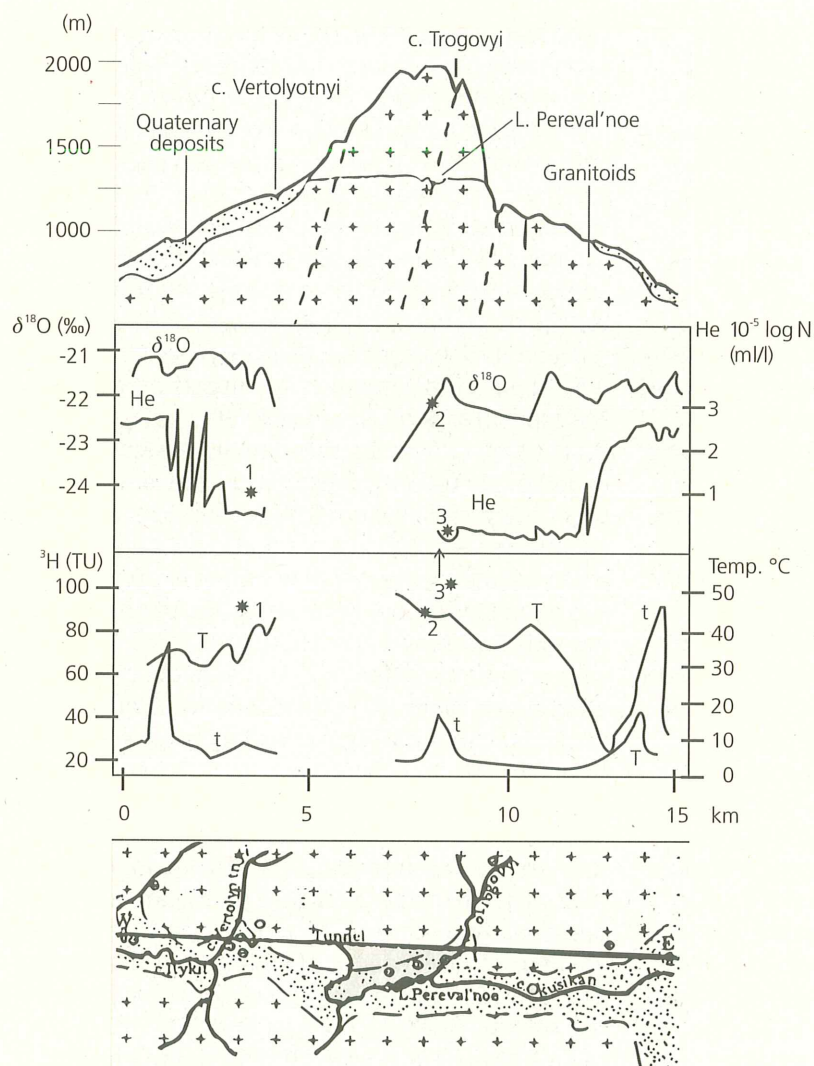
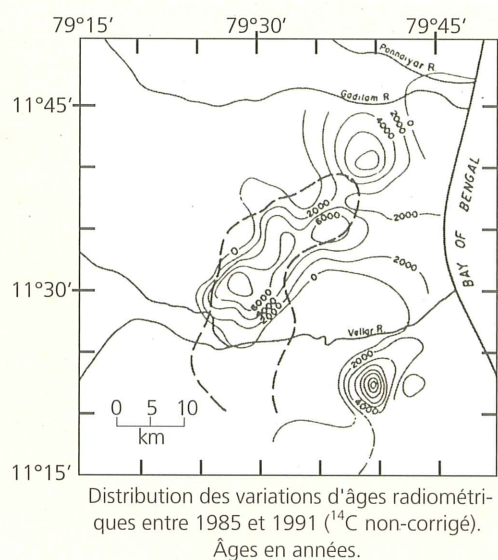
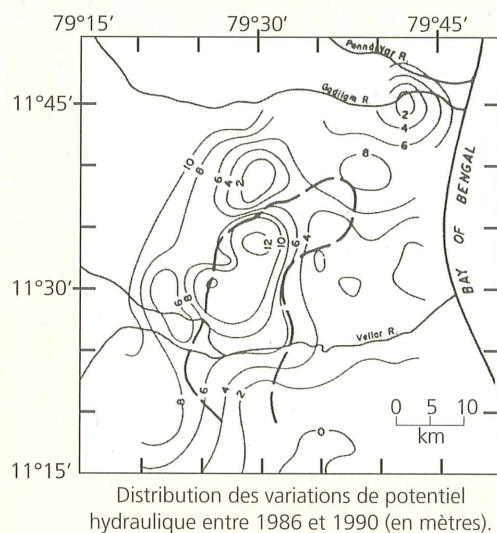


Figure 2.24 Tunnel Muya-nord dans la chaîne du Baïkal. De haut en bas: profil géologique simplifié à la verticale du tunnel avec altitudes en mètres; $\delta^{18}\text{O}$: teneur en oxygène-18 (‰) et He: teneur en hélium (ml/l); T: tritium (TU = unité tritium, UT) et t: température (°C); esquisse géologique suivant le tracé du tunnel (d'après Polyakov et al., 1996).

Figure 2.25 Effets de la dépressurisation d'un site minier sur les caractéristiques de l'aquifère. Le trait gras interrompu représente les limites du gisement de lignite (d'après Sukhija et al., 1996).



2.6 Travaux souterrains

Les eaux souterraines sont un des facteurs importants à prendre en compte pour déterminer les conditions de stabilité d'un ouvrage souterrain quelconque. Ces ouvrages influencent à leur tour les systèmes d'écoulement des eaux souterraines; ils peuvent en modifier fortement les configurations par modification des potentiels hydrauliques aux abords de l'ouvrage. Les tunnels sont des ouvrages linéaires par définition, les mines sont souvent ramifiées, et les sites de stockage de déchets radioactifs sont des combinaisons des deux styles. Pour les tunnels et les mines, on s'intéresse d'abord à la stabilité de l'ouvrage puis à son influence sur les charges hydrauliques dans les aquifères, alors que les sites de stockage de déchets associent à ces aspects un problème de pollution des nappes par des substances proprement indésirables. Pour ces raisons, et pour plus de clarté, ce chapitre a été subdivisé en trois parties.

2.6.1 Tunnels

Le tunnel du Mont-Blanc a donné l'occasion d'une importante étude hydrogéologique isotopique de ce massif (Fontes *et al.*, 1979). Ce travail étant cité dans la plupart des ouvrages, nous présenterons une étude russe plus récente et moins académique.

Le tunnel Muya-nord situé dans le nord-est de la chaîne du Baïkal s'intègre dans le cadre du projet ferroviaire Baïkal-Amur (Polyakov *et al.*, 1996). D'une longueur de 15,3 km, il doit traverser des granitoïdes d'âge protérozoïque à paléozoïque. Le tritium, l'hélium et l'oxygène-18 ont été mesurés pour évaluer la provenance des arrivées d'eau dans la partie déjà construite du tunnel. Aucun effet d'altitude n'est observable sur la majeure partie du profil (Figure 2.24). Un appauvrissement en oxygène-18 est cependant visible dans la partie centrale du tunnel. Si l'on compare les teneurs isotopiques de l'eau du tunnel à celles des lacs voisins, on peut estimer qu'il n'y a aucune contribution d'eau lacustre à l'eau souterraine. Plusieurs sources thermales ont été trouvées près des portails, à des températures proches de 45°C, mais avec des compositions isotopiques semblables à celles des eaux froides. L'augmentation de la quantité d'hélium (jusqu'à 1005×10^{-5} ml/l) confirme cependant la présence de circulations profondes. Les faibles activités en tritium (inférieures à 30 UT) sont caractéristiques d'eaux thermales à temps de séjour relativement long.

Les compositions en oxygène-18 montrent que la zone de recharge des eaux froides est la même que celle des eaux chaudes. Il est intéressant de noter la corrélation entre le tritium et l'altitude. Les temps de séjour de l'eau souterraine sont de l'ordre de 90 années dans les

zones non influencées par le tunnel, alors que dans la partie déjà construite, on atteint des temps de séjour de l'ordre d'une année, ce qui met en évidence l'effet drainant du tunnel.

On voit bien par cet exemple l'intérêt des isotopes de la molécule d'eau pour étudier le contexte hydrogéologique des grands ouvrages profonds. L'utilisation des traceurs habituels tels que les substances fluorescentes (uranine par exemple) est particulièrement mal adaptée à un tel cas, puisque le traçage aurait nécessité des quantités gigantesques de traceur fluorescent. L'épaisse couverture rocheuse et les faibles perméabilités de fracture auraient de plus nécessité plusieurs années de prélèvements et d'analyse, sans que l'on puisse assurer de retrouver le traceur aux exutoires (chemin emprunté inconnu ou par simple dégradation du traceur).

2.6.2 Mines

Sukhija *et al.* (1996) présentent une investigation par les isotopes du milieu et les chlorures de la dépressurisation d'un aquifère côtier d'une région minière de l'Inde. Les résultats montrent l'effet des pompages à grande échelle sur le régime hydrologique et les conséquences sur les distributions d'isotopes. Des variations communes au radiocarbonate et aux chlorures sont observées dans un secteur réduit entre la zone de recharge (à l'ouest) et la zone minière où le pompage est concentré. De plus, il existe une excellente corrélation entre l'augmentation au cours du temps des âges radiométriques de l'eau souterraine et le rabattement de la nappe entre 1985 et 1991 (Figure 2.25).

Ces variations sont concentrées à la zone exploitée pour sa lignite. Dans certains secteurs, les pompages intenses ont provoqué une augmentation de la salinité de l'eau souterraine par infiltration d'eau de mer (voir section 2.1.7).

Un deuxième cas d'application des méthodes isotopiques dans l'étude de l'hydrogéologie d'une zone minière est présenté par Malik *et al.* (1996). Les isotopes stables ont confirmé l'origine météorique de toutes les eaux, alors que le tritium a permis de différencier les eaux récentes d'eaux antérieures à 1952 (date du premier essai de bombe nucléaire en atmosphère).

2.6.3 Caractérisation des sites potentiels de stockage souterrain des déchets

Le problème majeur de l'utilisation de l'énergie nucléaire est la production de déchets radioactifs. L'intensité et la durée de la radioactivité varie suivant les types de déchets. Dans quelques années, un grand nombre d'installations de production d'énergie devront être démantelées. Certains résidus hautement radioactifs devront être stockés définitivement à défaut de pouvoir

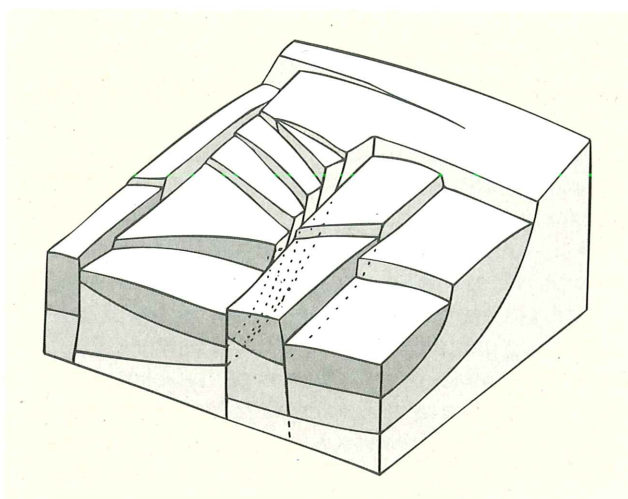


Figure 2.26 Schéma illustrant la complexité de la géométrie du glissement de Campo Vallemaggia (d'après Bonzanigo, 1994).

être traités. Pour différentes raisons, le mode de stockage le plus probable est souterrain. La connaissance des systèmes hydrogéologiques prend ici une importance considérable, que ce soit pour éviter ou prévoir les migrations de radionucléides au cas où une des nombreuses barrières prévues venait à faire défaut, ou pour simplement assurer la stabilité de l'ouvrage souterrain. Cette connaissance, dans laquelle la configuration et l'évolution dans le temps des systèmes hydrogéologiques sont fondamentales, a été détaillée du point de vue de l'apport des méthodes isotopiques par Balderer (1983) dans un rapport de la Cédra (Société coopérative nationale pour l'entreposage de déchets radioactifs), et plus récemment par Pearson *et al.* (1991).

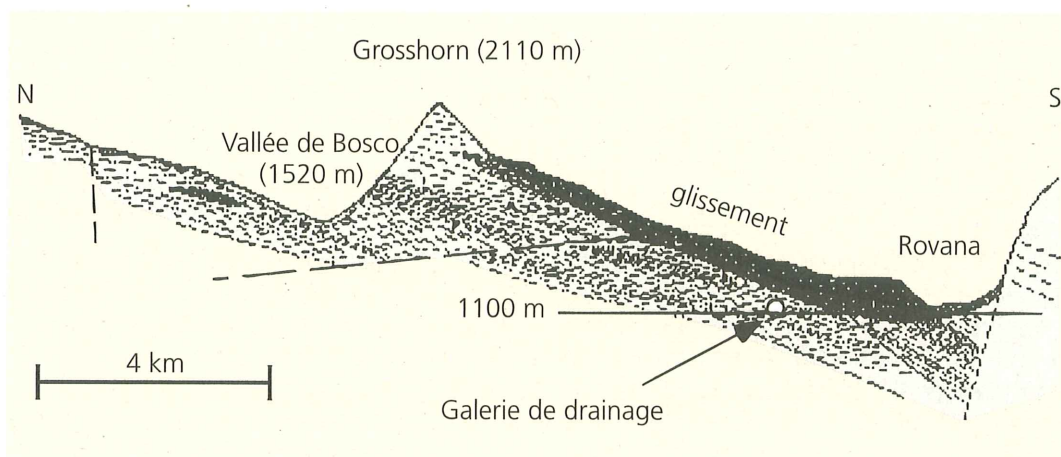
2.7 Hydrogéologie des versants instables

L'eau joue un rôle prépondérant dans la dynamique des instabilités de pente. Les différentes méthodes présentées dans les chapitres précédents peuvent être efficaces pour résoudre les problèmes hydrogéologiques concernant les glissements de terrain. Un glissement étant situé de par sa nature dans des régions au relief marqué, on pourra en premier lieu envisager de déterminer l'origine de l'eau en estimant l'altitude moyenne du bassin versant par la méthode présentée en 2.1.1. La recharge à travers la zone non saturée, l'éventuelle évaporation, les différentes composantes de l'eau, le temps de séjour moyen, ou encore les apports d'eaux de surface sont autant de paramètres qui pourront être évalués par les méthodes utilisant les isotopes du milieu (voir 2.1 à 2.4).

Un seul exemple d'application des méthodes isotopiques à l'étude de l'hydrogéologie des glissements de terrain a pu être recensé. Ceci s'explique en grande partie par le fait que les glissements sont généralement des phénomènes locaux de faible extension géographique, et à l'hydrogéologie peu contrastée du point de vue isotopique. Pour les gros glissements cependant, les travaux d'assainissement seraient sans aucun doute plus performants et mieux dimensionnés si l'étude hydrogéologique faisait appel aux méthodes isotopiques. Les marquages traditionnels en général mis en œuvre dans ce type d'étude ne couvrent pas tout le champ d'application des méthodes isotopiques.

Le glissement de Campo Vallemaggia situé dans le Val Rovana, confluent de la Maggia près du lac Majeur, est présenté par Bonzanigo (1994). Il s'agit d'un des plus grands phénomènes d'instabilité de pente d'Europe. Il couvre une surface de plus de 5 kilomètres carrés sur

Figure 2.27 Coupe géologique schématique du glissement de Campo Vallemaggia (Suisse) indiquant sa position par rapport à la rivière Rovana et à la vallée de Bosco, ainsi que la position de la galerie de drainage (modifié d'après Bonzanigo, 1994). Echelle verticale exagérée.



une épaisseur variable pouvant atteindre 250 mètres. De grands travaux d'assainissement ont été entrepris: un tunnel de déviation pour éloigner la rivière du pied du glissement et ainsi limiter l'affouillage des berges, et une galerie de drainage percée dans la roche en place sous le glissement, équipée de drains rayonnants. Le but de cette galerie est d'abattre les surpressions interstitielles présentes dans les diaclases. Ces pressions, qui peuvent selon les prévisions atteindre plus de 35 bars, sont sans doute alimentées par un bassin versant plus vaste que la seule vallée de Campo. De nombreux sondages ont mis en évidence la répartition irrégulière de ces surpressions. On ne peut donc pas définir de véritable niveau piézométrique. Les directions d'écoulement ne sont pas perpendiculaires aux équipotentielles, et le tenseur des perméabilités varie de plus au cours du temps. La Figure 2.26 illustre la complexité de la géométrie du glissement. Dans un tel contexte, il est impossible de construire un modèle sans de nombreuses données.

Afin de tenter d'expliquer les pressions très élevées, un bilan hydrologique du secteur a été établi. Il apparaît que le débit artésien représente plus de 5 % de toutes les eaux météoriques disponibles dans le bassin versant. Ce bilan peu réaliste a été complété par des analyses isotopiques. Les indications fournies par l'oxygène-18 et le deutérium indiquent, pour les eaux artésiennes et les sources permanentes importantes, une altitude de recharge fort constante ($-11,5 < \delta^{18}\text{O} < -10,5 \text{ ‰}$). En appliquant un gradient moyen mesuré sur les pluies locales, l'auteur obtient des altitudes de recharge entre 1500 et 1800 m, alors que les niveaux artésiens sont de l'ordre de 1400 à 1500 m. Un autre élément d'observation est la présence d'émanations d'hydrogène dans une source artésienne et dans un forage. La

géothermométrie appliquée à ce gaz permet d'estimer une température comprise entre 60 et 100°C, c'est-à-dire une percolation jusqu'à environ 2 kilomètres de profondeur.

L'auteur suppose sur la base de ces données qu'il existe une alimentation provenant d'un bassin versant voisin plus vaste que celui admis jusqu'alors. Il est possible qu'un réseau de failles entrecroisées puisse constituer des voies de percolation préférentielles, amenant de l'eau de la vallée de Bosco à la vallée de Campo (Figure 2.27).

Cette étude isotopique s'insère dans tout un programme de reconnaissance que nous ne développerons pas ici. Les méthodes isotopiques ne suffisent pas à elles seules à comprendre tout le phénomène, mais leur contribution à la compréhension de l'hydrogéologie du glissement est considérable.

Les sites potentiels qui mériteraient une investigation isotopique ne manquent pas. Citons seulement à titre d'exemple que ces méthodes vont probablement être mises en œuvre en France, dans l'Isère sur le glissement de Séchilienne.

Troisième partie:

Vers une meilleure utilisation des méthodes isotopiques dans la pratique de l'hydrogéologie

La dernière partie de cet ouvrage traite de la mise en œuvre des méthodes isotopiques en hydrogéologie. Dans un premier temps, l'utilité des réseaux d'observation des isotopes à l'échelle nationale est démontrée. Le réseau d'observation fédéral est brièvement présenté. A titre de conclusion, un chapitre entier est consacré à la pratique de l'hydrogéologie isotopique. Des conseils techniques permettent aux professionnels d'optimiser leur démarche. Les aspects purement législatifs sont exposés pour les radioisotopes, en particulier pour le tritium.

3.1 Nécessité d'un réseau d'observation des isotopes de la molécule d'eau

Nous l'avons vu tout au long du chapitre précédent, il n'est pas une application des isotopes du milieu en hydrogéologie qui ne fasse appel à un référentiel. Les variations des compositions isotopiques dans l'environnement sont telles que l'on doit constamment faire référence à des standards, à des moyennes, à des variations dans le temps ou dans l'espace, ou encore à des relations entre les isotopes et d'autres paramètres physiques. L'interprétation d'un résultat unique d'analyse isotopique, qu'il s'agisse d'un isotope stable ou d'un radioisotope, n'a aucun sens. On doit toujours comparer des valeurs entre elles. C'est pourquoi des réseaux d'observation sont nécessaires, à l'échelle mondiale comme nationale.

3.1.1 Réseau mondial

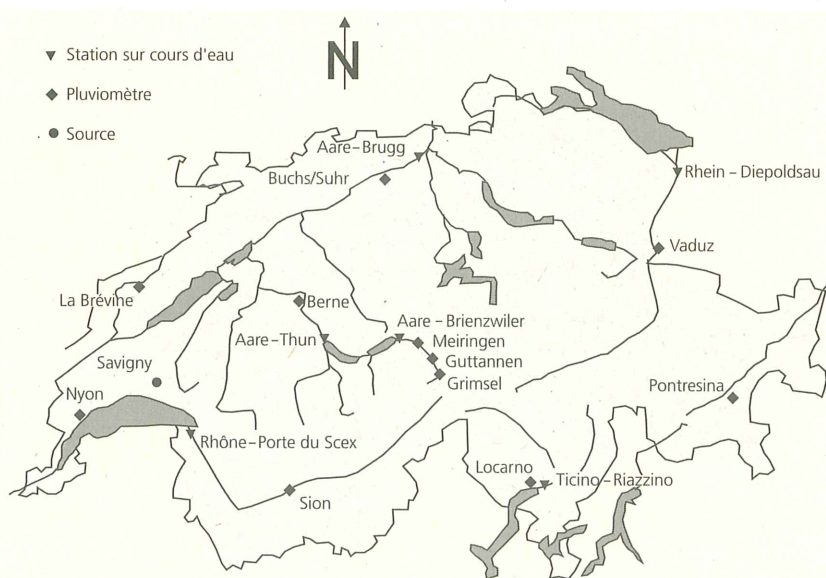
Le programme mondial d'observation des isotopes de l'oxygène et de l'hydrogène dans le cycle de l'eau a été mis sur pied par l'IAEA (Agence internationale de l'énergie atomique, AIEA) en collaboration avec l'Organisation Météorologique Mondiale en 1958, avec un réseau d'observation, devenu opérationnel en 1961. L'objectif initial de ce réseau était d'offrir un outil de planification et de développement des ressources en eau. Actuellement, les données isotopiques de ce réseau sont une aide précieuse pour les recherches sur les circulations atmosphériques et les changements climatiques (Rozanski *et al.*, 1993). En 1998, on comptait 176 stations actives réparties dans environ 90 pays, mais les perspectives vont vers une augmentation du nombre de stations et de réseaux nationaux (IAEA, 2000).

La Suisse a contribué, entre 1976 et 1992, à ce réseau mondial avec les 5 stations du profil Berne – Meiringen – Guttannen – Grimsel – Locarno. Tous les résultats sont centralisés à l'IAEA:

International Atomic Energy Agency
Section of Isotope Hydrology
Wagramerstrasse 5, PO Box 100
A-1400 Wien, Autriche

Ils sont publiés régulièrement dans des recueils de données (IAEA, 1969, 1970, 1971, 1973, 1975, 1979, 1983, 1986, 1990) et sont disponibles sous la forme de disquettes ou sur le site Internet: <http://isohis.iaea.org>.

Figure 3.1 Le réseau fédéral suisse d'observation des isotopes dans le cycle de l'eau. Situation géographique des stations de mesure, modifiée d'après Schotterer *et al.*, 2000. Le réseau actuel mesure à chaque station le tritium, l'oxygène-18, et le deutérium. Les deux premiers isotopes sont mesurés à l'Institut de physique de l'Université de Berne. L'Institut de minéralogie et pétrographie de l'Université de Lausanne se charge du deutérium. Toutes les données sont centralisées au Service géologique national et sont mises à disposition des intéressés.



3.1.2 Réseau suisse

La Suisse, dotée depuis 1976 d'un réseau d'observation des niveaux piézométriques dans les nappes d'eau souterraine (Buttet & Eberhard, 1995 ; Tripet & Buttet, 1995), a créé en 1992 un réseau d'observation des isotopes de l'oxygène et de l'hydrogène dans le cycle de l'eau. Ce réseau, décrit par Schotterer *et al.* (1995, 2000), est exploité par le Service géologique national (Office fédéral des eaux et de la géologie, OFEG). Il est opérationnel depuis 1992, et compte actuellement 18 stations, dont 11 pour les précipitations et 6 pour des eaux fluviales. La station de Savigny (source de Lutry), quant à elle, mesure les eaux à l'exutoire d'une nappe d'eau souterraine ; elle a été mise en service en 1996. La Figure 3.1 montre l'implantation géographique des différentes stations.

En fin d'année, les données des différents laboratoires (Université de Berne et Université de Lausanne) sont rassemblées par le Service géologique national. La base de données contient également les températures de l'air, les pressions de vapeur et les hauteurs de précipitations pour les pluviomètres, ainsi que les débits et les températures de l'eau pour les cours d'eau.

Diffusion des données

Les résultats des analyses sur chaque station sont gérés par le Service géologique national à Berne. Depuis 1997, ils sont publiés sous forme graphique dans l'Annuaire hydrologique de la Suisse, édité par l'Office fédéral des eaux et de la géologie, et accessible aussi par Internet (<http://www.bwg.admin.ch>). Les données sont disponibles sur demande sous format Excel ou format texte, six mois après la fin de chaque année.

Une planche de l'Atlas hydrologique de la Suisse traitant des isotopes de l'oxygène et de l'hydrogène a été publiée (Parriaux *et al.*, 2001). Cette planche est une synthèse, sous forme graphique, des données sur les stations fonctionnant ou ayant fonctionné en Suisse. La planche contient également une introduction aux méthodes isotopiques et des exemples d'application.

3.2 La pratique de l'hydrogéologie isotopique

La mise en oeuvre d'une campagne isotopique doit être planifiée comme toute étude hydrogéologique. Le choix d'utiliser telle ou telle méthode isotopique devrait être effectué en concertation avec des spécialistes. Il convient au préalable de se demander quel est le problème à résoudre. Dans l'éventail des techniques utilisées en hydrologie, une méthode sera choisie pour résoudre le problème, et il est possible que ce soit une méthode isotopique. Il va sans dire qu'effectuer des analyses isotopiques, et se demander ensuite ce que l'on peut bien faire des résultats, ne constitue sûrement pas la démarche optimale. On ne fait pas de mesures isotopiques pour faire des mesures isotopiques!

3.2.1 Choix des points de mesure

Pour les isotopes stables comme pour le tritium, le choix du nombre de points de mesure, et leur situation dans l'espace et le temps sont des paramètres déterminants. Ce choix sera effectué en fonction du problème à résoudre.

Vu que l'amplitude des variations saisonnières des compositions isotopiques dans les pluies peut dépasser 8 ‰ entre l'été et l'hiver, il est en principe indispensable d'effectuer les campagnes de mesure au moment où les teneurs isotopiques sont proches de la moyenne annuelle (voir 1.1.6), à savoir de mars à avril, ou de septembre à octobre.

3.2.2 Précautions à prendre au cours de l'échantillonnage

Le prélèvement d'échantillons pour des analyses d'oxygène-18 ou de deutérium ne requiert pas de précaution particulière. Il est conseillé d'utiliser des récipients en verre bien étanches et d'éviter toute évaporation. Les échantillons seront de préférence stockés au froid, en évitant bien entendu toute congélation!

Pour le prélèvement d'échantillons en vue de doser le tritium, on veillera à utiliser des récipients en plastique. Il est déconseillé de porter une montre ou tout objet phosphorescent pendant les manipulations. Pour le comptage indirect du tritium par l'hélium-3, dissous dans l'eau, tout échange gazeux avec l'air est à éviter. Des tubes à sertir spéciaux en cuivre ou en acier sont en général fournis par les laboratoires concernés.

3.2.3 Nécessité d'un multi-échantillonnage, évolution dans le temps des caractéristiques et séries temporelles de données (*time-data series*)

Les systèmes hydrologiques sont rarement en régime permanent, et leur étude nécessite parfois de coûteuses séries de mesures en fonction du temps. Les observations répétées sont la seule façon d'accéder à la dynamique des systèmes d'eaux souterraines, en particulier dans les zones montagneuses. Les séries temporelles de données constituent un outil très efficace pour définir les caractéristiques hydrologiques et géochimiques d'un système, nécessaires à l'élaboration de modèles hydrologiques conceptuels ou mathématiques. Les aspects méthodologiques de l'acquisition de séries temporelles de données sont discutés en détail dans Mazor (1976) et dans Mazor *et al.* (1990 a et 1990 b), et leur applicabilité aux mesures physiques, chimiques et isotopiques est démontrée à l'aide d'exemples de sources suisses.

3.2.4 Traçage par injection de radioisotopes

Il est possible de tracer les eaux souterraines par un radio-isotope, par exemple le tritium. Cependant, ces méthodes ne sont à envisager que dans des conditions exceptionnelles, s'il n'existe pas d'autre méthode permettant d'arriver au même résultat. Ceci peut être le cas pour les roches à faible perméabilité, par exemple dans le cadre de recherches scientifiques liées au stockage de déchets radioactifs. Dans ce cas, les traçages portent généralement sur des distances de quelques décimètres, éventuellement quelques mètres.

En Suisse, l'Ordonnance sur la radioprotection (ORaP) du 22 juin 1994 interdit toute manipulation de substance dont l'activité absolue en tritium dans l'eau serait supérieure à 600 kBq, ou dont l'activité spécifique dépasserait 6 kBq/l (soit environ 50'000 UT – voir chap. 1.2.7). Pour toute question relative aux autorisations ou aux manipulations de traceurs radio-isotopiques, il convient de contacter l'Office fédéral de la santé publique :

Office Fédéral de la Santé Publique, Division
de la radioprotection
Section de surveillance de la radioactivité
Chemin du Musée 3, CH-1700 Fribourg
<http://www.unifr.ch/suer>

3.2.5 Interprétation des résultats

Au cours de l'interprétation des résultats, une attention particulière sera portée à la précision des analyses. Il est malheureusement très courant de voir des résultats sans indication de la précision. Certaines droites de corrélation ne seraient pas si belles qu'elles en ont l'air si la précision des données était prise en compte. Pour la détermination des altitudes moyennes des bassins versants par exemple, la précision des mesures devra être comparée au gradient local des compositions isotopiques en fonction de l'altitude.

Finalement, il ressort du grand nombre de publications consultées sur le sujet que certaines études tendent à utiliser les isotopes pour cautionner des théories nébuleuses voire acrobatiques. De trois points alignés sur un graphique on déduit toute une série de résultats qui conduiront à une mini-découverte. On devrait parfois veiller à ne pas faire dire aux isotopes ce qu'ils ne peuvent pas dire.

Conclusions

Les isotopes de l'hydrogène et de l'oxygène contribuent efficacement à la résolution de nombreux problèmes pratiques que se posent les professionnels concernés par les eaux souterraines, qu'ils soient hydrogéologues, ingénieurs civils, ingénieurs ruraux, pédologues, agronomes, forestiers, ou encore spécialistes des problèmes d'environnement ou de pollution. Bien que ces isotopes ne soient pas utilisables dans toutes les situations, ils n'en restent pas moins un des outils les plus polyvalents de l'hydrogéologie moderne. La diversité des applications de ces traceurs idéaux que constituent les isotopes de la molécule d'eau est étonnante. Elle s'étend de la localisation d'une zone d'alimentation à l'estimation du temps de séjour moyen de l'eau, en passant par la mesure indirecte de la température dans un système hydrothermal, la surveillance de l'exploitation d'un aquifère, le traçage des circulations d'eau dans les horizons pédologiques, la localisation des pollutions, la caractérisation des écoulements autour des ouvrages souterrains et l'étude des instabilités de versant. L'étude des isotopes de l'oxygène et de l'hydrogène dans les eaux ne se limite pas à la recherche scientifique. La théorie de base des méthodes isotopiques est accessible à tout professionnel possédant des connaissances scientifiques en chimie, en physique, mais aussi et surtout en hydrogéologie. Il pourra utiliser lui-même ces méthodes dans la pratique, en sachant toutefois prendre conseil auprès de spécialistes dans les cas complexes.

Par une mise en œuvre réfléchie des techniques isotopiques, l'utilisateur peut résoudre efficacement un problème posé par les eaux souterraines, pour un coût raisonnable et sans injection de produits artificiels. Il ressort de la présente synthèse que ces techniques, devenues classiques dans le domaine scientifique, peuvent être opérationnelles dans de nombreuses branches de la pratique. La littérature citée est là pour en témoigner. Chaque article pourra servir de «guide» à toute personne intéressée par une application particulière. A la lumière des nombreux exemples étudiés, il apparaît que le principe de base des méthodes isotopiques consiste à comparer des valeurs mesurées à un référentiel statique (moyenne annuelle d'une station, standard de mesure, etc.) ou variable (évolution dans le temps ou répartition dans l'espace). Le nombre et la fréquence de mesure des stations de référence doivent être compatibles avec l'échelle du problème étudié. Le réseau mondial géré par l'IAEA est bien adapté à des études globales en climatologie ou en sciences de l'environnement. En revanche, des applications sur des systèmes plus petits, comme rencontrés souvent en hydrologie et en hydrogéologie, en météorologie, ou en glaciologie, nécessitent une couverture de stations de référence à l'échelle nationale et régionale, sur toutes les masses d'eau concernées. C'est là l'objectif du réseau fédéral d'observation des isotopes dans le cycle de l'eau. Les performances des méthodes isotopiques dépendent directement de l'efficacité de ce réseau d'observation.

Remerciements

L'auteur tient tout d'abord à remercier le Service géologique national à Berne qui a financé et soutenu ce travail, et tout particulièrement M. J.-P. Tripet, responsable de la section hydrogéologie, ainsi que MM. J.-L. Michelot (Laboratoire d'hydrologie et de géochimie isotopique, Université de Paris-Sud) et F. Pasquier (hydrogéologue conseil à Couvet), qui ont accepté de corriger ce rapport dans son intégralité, et qui ont donné de précieux conseils et remarques.

De nombreux professionnels m'ont également conseillé ou guidé dans les recherches bibliographiques.

Je tiens donc à remercier, dans l'ordre alphabétique des institutions:

Mme Gourcy, M. Araguas-Araguas, et M. Groening (Agence Internationale de l'Energie Atomique, Autriche), ainsi que MM. Dray et Olive (Centre de Recherche Géodynamique de Thonon-les-Bains, France), Balderer (Ecole Polytechnique Fédérale de Zurich, Suisse), Seiler (GSF - Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Allemagne), Berlie (Institut de radiophysique appliquée, EPFL, Suisse), et Bonzanigo (géologue conseil à Bellinzone, Suisse).

Bibliographie

La majorité des références citées dans cet ouvrage est disponible aux bibliothèques des Ecoles polytechniques fédérales qui, nous le rappelons, sont ouvertes au public. Ces bibliothèques mettent également à disposition

des usagers toute une logistique permettant des recherches bibliographiques sur des bases de données nationales ou internationales, ainsi que des prêts de documents provenant de bibliothèques suisses ou étrangères.

ABDESSELAM, M., LAMI, H. & MANIA, J., 1990. Le Djurdjura aquifère karstique de montagne de type alpin (Algérie). Mémoires of the 22nd Congress of IAH, vol. XXII/1, 434-443.

ABIDIN, Z., WANDOW, INDROYONO, ALIP, DJIONO, 1996. Leakage and water balance study of Mt Galunggung crater lake in west Java - Indonesia. Proceedings of a symposium on the «Isotopes techniques in water resources management» (IAEA, 1995), 189-192.

AKITI, T., EFTIMI, R., DHAME, L., ZOJER, H. & ZOETL, J., 1990. Environmental isotope study of the interconnection between the Vjosa river and the Pogeme springs in Albania. Mémoires of the 22nd Congress of IAH, vol. XXII/1, 452-458.

ANDRICEVIC, R., DANIELS, J. I. & JACOBSON, R. L., 1994. Radionuclide migration using a travel time transport approach and its application in risk analysis. *J. Hydrol.* **163**, 125-145.

AOKI, P. E., BOMBONATO, C. JR. & MALOSZEWSKI, P., 1996. Determination of hydrodynamic parameters in the Paiva Castro reservoir using artificial tritium. Proceedings of a symposium on the «Isotopes techniques in water resources management» (IAEA, 1995), 157-166.

ARAGUAS-ARAGUAS, L., ROZANSKI, K., GONFIANTINI, R. & LOUVAT, D., 1995. Isotopes effects accompanying vacuum extraction of soil water for stable isotope analyses. *J. Hydrol.* **168**, 159-171.

ÁRNASON, B., 1977 a. Hydrothermal systems in Iceland traced by deuterium. *Geothermics* **5**, 125-151.

ÁRNASON, B., 1977 b. The hydrogen-water isotope thermometer applied to geothermal areas in Iceland. *Geothermics* **5**, 75-80.

AWAD, M. A., BELACY, N., ALY, A. I. M. & ABOU-EL-NOUR, F., 1990. Deuterium, oxygene-18 and salt content of drinking water sources in Cairo. *Isotopenpraxis* **26**, 566-569.

BAKALOWICZ, M. & JUSSERAND, C., 1987. Etude de l'infiltration en milieu karstique par les méthodes géochimiques et isotopiques. Cas de la grotte de Niaux (Ariège, France). *Bull. Centre d'Hydrogéologie de Neuchâtel* (Suisse) **7**, 265-283.

BALDERER, W., 1983. Bedeutung der Isotopenmethoden bei der hydrogeologischen Charakterisierung potentieller Endlagerstandorte für hochradioactive Abfälle. Nagra-Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioactiver Abfälle - Technischer Bericht 83-04, Wettingen.

BALDERER, W., 1990. Paleoclimatic trends deduced in groundwaters within swiss molasse basin as evidence for the flow systems definition. Mémoires of the 22nd Congress of IAH, vol. XXII/1, 741-750.

BARIAC, T., MILLET, A., LADOUCHE, B., MATHIEU, R., GRIMALDI, C., GRIMALDI, M., HUBERT, P., MOLICOVA, H., BRUCKLER, L., BERTUZZI, P., BOULEGUE, J., BRUNET, Y., TOURNEBIZE, R. & GRANIER, A., 1995. Stream hydrograph separation on two small Guianese catchments. Tracer Technologies for Hydrological Systems, IAHS Publ., vol. 229, 193-209.

BARNES, C.J. & ALLISON, G.B., 1988. Tracing of water movement in the unsaturated zone using stable isotopes of hydrogen and oxygen. *J. Hydrol.* **100**, 143-176.

BENAVENTE, J., CARDENAL, J., CRUZ-SAN JULIAN, J., GARCIA LOPEZ, S., ARAGUAS-ARAGUAS, L. & LOPEZ-VERA, F., 1990. Content analy-

sis of stable isotopes in aquifers from the coastal mountainous chain of Gador-Lujar (southeast Andalusia, Spain). Mémoires of the 22nd Congress of IAH, vol. XXII/1, 415-424.

BLAU, R. V., 1990. Groundwater protection zones in Switzerland: state of art. Mémoires of the 22nd Congress of IAH, vol. XXII/2, 1077-1086.

BLAVOUX, B. & LETOLLE, R., 1995. Apports des techniques isotopiques à la connaissance des eaux souterraines. *Géochroniques* **54**, 12-15.

BLAVOUX, B. & MUDRY, J., 1990. Les teneurs en oxygène-18 en fonction de l'altitude des impluviums des réservoirs karstiques du Jura et du Vaucluse. Mémoires of the 22nd Congress of IAH, vol. XXII/1, 331-338.

BONZANIGO, L., 1994. Campo Vallemaggia: Grand glissement en milieu artésien discontinu. Publications de la Société Suisse de Mécanique des Sols et des Roches, No 129. Réunion de printemps, 29 avril 1994, Zürich, 41-46.

BRENDENKAMP, D.B., SCHUTTE, J.M. & Du TOIT, G.J., 1974. Recharge of a dolomitic aquifer as determined from tritium profiles. Proceedings of a symposium on the «Isotope techniques in groundwater hydrology» (IAEA, 1974), 73-96.

BUTTET, P. & EBERHARD, A., 1995. Le réseau fédéral d'observation des eaux souterraines. Service hydrologique et géologique national. Communications hydrologiques No. 22.

BUTTLE, J. M. & LEIGH, D. G., 1995. Isotopic and chemical tracing of macropore flow in laboratory columns under snowmelt conditions. Tracer Technologies for Hydrological Systems, IAHS Publ., vol. 229, 67-76.

CHAPMAN, J. B., INGRAHAM, N. L., HESS, J. W., 1992. Isotopic investigation of infiltration and unsaturated zone flow processes at Carlsbad Cavern, New-Mexico. *J. Hydrol.* **133**, 343-363.

CHESSSEL, S. & OLIVE, P., 1978. L'eau tritiée: Comptage par scintillation liquide après enrichissement électrolytique. Université Pierre et Marie Curie, Centre de Recherches Géodynamiques, Publication n°201, Thonon-les-Bains.

CLARK, I.D. & FRITZ, P., 1997. Environmental isotopes in hydrogeology. Lewis Publishers. 328 p.

CLARK, I.D., FRITZ, P. & SOUTHER, J.G., 1989. Geochemistry and isotope hydrogeology of the Mount Edziza - Mess Creek geothermal area. *Can. J. Earth-Sci.* **26**, 1160-1171.

CRAIG, H., 1961. Isotopic variations in meteoric waters. *Science* **133**, 1702-1703.

CRUZ-SAN JULIAN, J. J., BENAVENTE, J., MARTINEZ-GARRIDO, J. C., MORAL, F., ARAGUAS-ARAGUAS, L. & LOPEZ-VERA, F., 1990. Deuterium and oxygene-18 content in karstic aquifers in the sierras de Cazorla and Segura (Betic Cordillera, Spain). Mémoires of the 22nd Congress of IAH, vol. XXII/1, 425-433.

DIAB, M., MEROT, Ph. & CURMI, P., 1988. Water movement in a glosaqual as measured by two tracers. *Geoderma* **43**, 143-161.

- DÖRR, H. & WERNER, U., 1996. Use of isotopic methods to identify the source (location, time and duration) of a groundwater contamination. Proceedings of a symposium on the «Isotopes techniques in water resources management» (IAEA, 1995), 249-261.
- DROST, W., RAUERT, W., STICHLER, W. & LEHMANN, G., 1982. Isotopenhydrologische Untersuchungen im linksrheinischen Teil von Düsseldorf. In: Beitr. über hydrologische Tracermethoden und ihre Anwendungen. GSF-Ber. Nr. 290, 238-254.
- EGBOKA, B.C.E., CHERRY, J.A., FARVOLDEN, R.N. & FRIND, E.O., 1983. Migration of contaminants in groundwater at a landfill: A case study, 3. Tritium as an indicator of dispersion and recharge. *J. of Hydrology* **63**, 51-80.
- EISENLOHR, T., JECKELMANN, C., BALDERER, W., BERNASCONI, S., RAUERT, W. & TRIMBORN, P., 1996. Regional investigation of cold groundwater for determination of the recharge conditions in geothermal areas of Northwestern Turkey. Proceedings of a symposium on the «Isotopes techniques in water resources management» (IAEA, 1995), 431-437.
- ENGELN, G. B., 1990. Design and management methodologies for the water systems observation networks in mountainous areas. Mémoires of the 22nd Congress of IAH, vol. XXII/1, 698-710.
- EOS, 1996. Ratios for light-element isotopes standardized for better interlaboratory comparison. Transaction, American Geophysical Union, July 2, vol. 77/27, Washington, D.C.
- ETCHEVERRY, D. & PARRIAUX, A., 1998. Les méthodes isotopiques dans la pratique de l'hydrogéologie. *Gas - Wasser - Abwasser* **1/98**, 10-17.
- FONTES, J. Ch., BORTOLAMI G. C. & ZUPPI G. M., 1979. Hydrologie isotopique du massif du Mont-Blanc. Proceedings of a symposium on «Isotope Hydrology» (IAEA, 1978), 411-436.
- FREEZE, R.A. & CHERRY, J.A., 1979. Groundwater. Prentice-Hall, Englewood Cliff.
- FRENCH, H.K., LANGSHOLT, E. & KITTERØD, N.O., 1996. A multi-tracer study in the unsaturated zone of a heterogeneous formation. Proceedings of a symposium on the «Isotopes techniques in water resources management» (IAEA, 1995), 333-350.
- FRITZ, P. & FONTES, J.Ch., Eds., 1980. Handbook of environmental isotope geochemistry, vol. 1. Elsevier Scientific Publishing Company, Amsterdam.
- FRITZ, P. & FRAPE, K., 1980. Comments on the ^{18}O , ^2H , and chemical composition of saline groundwaters on the Canadian shield. Proceedings of a symposium on «Isotope studies of hydrologic processes» (IAEA, 1980), 57-63.
- FRITZ, P., MATTHESS, G. & BROWN, R.M., 1976. Deuterium and oxygen-18 as indicators of leachwater movement from a sanitary landfill. Proceedings of a symposium on the «Interpretation of environmental isotope and hydrochemical data in groundwater hydrology» (IAEA, 1976), 131-142.
- GASCOYNE, M. & KOTZER, T., 1995. Isotopic methods in hydrogeology and their application to the underground research laboratory, Manitoba. Chalk River Laboratories, A.E.C.L. - 11370, Chalk River.
- GAT, J.R., 1975. Elucidating salinisation mechanisms by stable isotope tracing of water sources. Proceeding of a symposium on «Brackish water as a factor in development» (Israel National Committee for Hydrology), 15-23.
- GAT, J.R., 1980. The isotopes of hydrogen and oxygen in precipitation. In Handbook of environmental isotope geochemistry (Fritz & Fontes Ed.), vol. 1, 21-47.
- GELLERMANN, R., JORDAN, H., HEBERT, D., FROELICH, K., SZYMEZAK, P. & MEINERT, N., 1990. A concept and isotope method for groundwater vulnerability assessment. *Isotopenpraxis* **26/12**, 561-565.
- GEYH, M. A. & SONNE, V., 1983. Monitoring of groundwater-budget changes with isotope techniques in the NE Mainz basin. Groundwater in water resources planning, U.N.E.S.C.O., 357-366.
- GONFIANTINI, R., CONRAD, G., FONTES, J. Ch., SAUZAY, G. & PAYNE, B.R., 1974. Etude isotopique de la nappe du Continental Intercalaire et des relations avec les autres nappes du Sahara septentrional. Proceedings of a symposium on the «Isotope Techniques in Groundwater hydrology» (IAEA, 1974), 227-241.
- GROSS, G. W., HOY, R. N., DUFFY, C. J. & REHFELDT, K. R., 1980. Isotopes studies of recharge in the Roswell basin. Isotope studies of hydrologic processes, 25-32.
- GÜTTINGER, H., 1980. Die Anwendung einer Fourier-Transformation zum Ausgleich von Saisonschwankungen bei der physikalisch-chemischen Charakterisierung von Fließgewässern. *Schweiz. Z. Hydrol.* **42/2**, 309-321.
- HAMDI, H., 1990. Essai de typologie de fonctionnement hydrique de différents sols par traçage isotopique naturel. Thèse de Doctorat de l'Université de Rennes I. Laboratoire de sciences du sol, Rennes.
- HARUM, T. & FANK, J., 1992. Hydrograph separation by means of natural tracers. *Tracer Hydrology*, 143-146.
- HARUM, T., LEDITZKI, H. P., ZOJER, H. & STICHLER, W., 1990. Utilisation de traceurs naturels pour la caractérisation de l'hydrodynamique et des changements temporaires dans deux systèmes aquifères karstiques. Mémoires of the 22nd Congress of IAH, vol. XXII/1, 392-404.
- HESSKE, S., 1995. Typologie des eaux souterraines de la molasse entre Chambéry et Linz (France, Suisse, Allemagne, Autriche). Thèse de Doctorat n. 1417, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne.
- HULSTON, J. R., 1977. Isotope work applied to geothermal systems at the institut of nuclear sciences, New Zealand. *Geothermics* **5**, 89-96.
- IAEA (1969, 1970, 1971, 1973, 1975, 1979, 1983, 1986, 1990). World survey of isotope concentrations in precipitation. Technical Reports Series Nos. 69, 177, 129, 147, 165, 192, 226, 264, 311, International Atomic Energy Agency, Vienna, 1969, 1970, 1971, 1973, 1975, 1979, 1983, 1986, 1990.
- IAEA, 1981. Stable isotope hydrology. Technical reports series 210, International Atomic Energy Agency, 337 p.
- IAEA, 2000. Information on the GNIP activities undertaken in 2000. Agence internationale de l'énergie atomique, Vienne.
- KATTAN, Z., 1996. Chemical and environmental isotope study of the fissured basaltic aquifer systems of the Yarmouk Basin (Syrian Arab Republic). Proceedings of symposium on the «Isotopes in water resources management» (I.A.E.A, 1995), 3-28.
- KENDALL, C., SILVA, S.R., CHANG, C.C.Y., BURNS, D.A., CAMPBELL, D.H. & SHANLEY, J.B., 1996. Use of the $\delta^{18}\text{O}$ and $\delta^{15}\text{N}$ of nitrate to determine sources of nitrate in early spring runoff in forested catchments. Proceedings of a symposium on the «Isotopes in water resources management» (I.A.E.A, 1995), 67-176.

- KRABbenhofT, P., BOWSER, C.J., ANDERSON, M.P. & VALLEY, J.W., 1990. Estimating groundwater exchange with lakes. Part 1-part 2. *Water Resources Research* **26/10**, 2445-2462.
- KROPF, S., 1996. Bestimmung der Altersverteilung junger Grundwässer mit Hilfe des Edelgasisotops Krypton-85 und Tritium. Diplomarbeit der Philosophisch-naturwiss. Fakultät der Universität Bern.
- KROUSE, H.R., 1980. Sulphur isotopes in our environment. In *Handbook of environmental isotope geochemistry* (Fritz & Fontes Ed.), vol. 1, pp. 435-471.
- KULLIN, M. & SCHMASSMANN, H., 1990. Continental and altitude (temperature) effects on $\delta^{18}\text{O}$ and $\delta^2\text{H}$ in Switzerland and adjacent regions. *Mémoires of the 22nd Congress of IAH*, vol. XXII/1, 339-346.
- LEE DAVISSON, M. & CRISS, R.E., 1996. Stable isotope and groundwater flow dynamics of agricultural irrigation recharge into groundwater resources of the Central Valley, California. *Proceedings of a symposium on the «Isotopes in water resources management»* (I.A.E.A., 1995), 405-418.
- LETOLLE, R., 1980. Nitrogen-15 in the natural environment. In *Handbook of environmental isotope geochemistry* (Fritz & Fontes Ed.), vol. 1, pp. 407-433.
- LOOSER, M., 1997. Etude des traces organiques comme indicateurs de pollution dans les eaux souterraines. Thèse de Doctorat. Laboratoire de géologie de l'Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne (GEOLEP-EPFL).
- LOVE, A. J., HERCZEG, A. L. & WALKER, G., 1996. Transport of water and solutes across a regional aquitard inferred from porewater deuterium and chlorid profiles. *Proceedings of a symposium on the «Isotopes in water resources management»* (I.A.E.A., 1995), 73-86.
- LOZET, J. & MATHIEU, C., 1990. Dictionnaire de science du sol. Technique et Documentation - Lavoisier. Deuxième édition.
- MACIEJEWSKI, S., TRIMBORN, P. KLOTZ, D. & MALOSZEWSKI, P., 1996. Investigation of water transport through unsaturated soils using environmental deuterium. *Proceedings of a symposium on the «Isotopes in water resources management»* (I.A.E.A., 1995), 303-314.
- MALIK, P., MICHALKO, J. MANSELL, S.J. & FENDEKOVA, M., 1996. Stable isotopes in karstic groundwaters of the Vel'ka Fatra mountains, Slovakia. *Proceedings of a symposium on the «Isotopes in water resources management»* (I.A.E.A., 1995), 191-193.
- MALOSZEWSKI, P. & ZUBER, A., 1982. Determining the turnover time of groundwater systems with the aid of environmental tracers. *J. Hydrol.* **57**, 207-231.
- MARTINEC, J., 1972. Tritium und Sauerstoff-18 bei Abflussuntersuchungen in repräsentativen Einzugsgebieten. *Gas - Wasser - Abwasser* **6**, 163-169.
- MATHIEU, R. & BARIAC, T., 1995. Etude isotopique de l'évaporation de l'eau dans un sol argileux, expérimentation et modélisation. *Hydrogéologie* **4**, 85-97.
- MATTHESS, G., MUENNICH, K.O. & SONNTAG, C., 1976. Practical problems of groundwater model ages for groundwater protection studies. *Proceedings of an advisory group meeting on the «Interpretation of environmental isotope and hydrochemical data in groundwater hydrology»* (IAEA, 1976), 185-194.
- MAZOR, E., 1976. Multitracing and multisampling in hydrological studies. *Proceedings of an advisory group meeting on the «Interpretation of environmental isotope and hydrochemical data in groundwater hydrology»* (IAEA, 1976), 7-36.
- MAZOR, E., 1991. Applied chemical and isotopic groundwater hydrology. Open University Press, Buckingham.
- MAZOR, E., JAFFE, F. C. & VUATAZ, F. D., 1990 a. Time-data series as a major diagnostic tool in groundwater hydrology: case studies from Switzerland I. *Mémoires of the 22nd Congress of IAH*, vol. XXII/1, 273-280.
- MAZOR, E., DUBOIS, J. D., SOOM-FLUCK, J. & WEXSTEEN, P., 1990 b. Time-data series as a major diagnostic tool in groundwater hydrology: case studies from Switzerland II. *Mémoires of the 22nd Congress of IAH*, vol. XXII/1, 281-288.
- MCCARTHY, K. A., MCFARLAND, W. D., WILKINSON, J. M. & WHITE, L. D., 1992. The dynamic relationship between groundwater and the Columbia River: using deuterium and oxygen-18 as tracers. *J. Hydrol.* **135**, 1-12.
- MELAYAH, A., BRUCKLER, L. & BARIAC, T., 1996. Modeling the transport of water stable isotopes in unsaturated soils under natural conditions. Part 1: Theory. Part 2: Comparison with field experiments. *Water Resources Research* **32**, 2047-2065.
- MERLIVAT, L. & VUILLAUME, Y., 1970. Caractérisation de l'intrusion marine, dans la nappe de la Crau, à l'aide du deutérium. *Bull. B.R.G.M.*, Sec. III, n°2, 81-85.
- MEROT, P., 1985. Etude du transfert vertical de l'eau dans un sol par traçage isotopique en abondance naturelle. *C. R. Acad. Sc. Paris*, t. 300, série II, vol. **20**, 1033-1038.
- MOOK, W.G., 1980. Carbon-14 in hydrogeological studies. In *Handbook of environmental isotope geochemistry* (Fritz & Fontes Ed.), vol. 1, 49-74.
- MOSER, H., 1992. Umweltisotope. In *Geohydrologische Markierungstechnik*, Lehrbuch der Hydrogeologie Band 8, Käss, W., 265-287.
- MOSER, H. & RAUERT, W., 1980. Isotopenmethoden in der Hydrologie. Lehrbuch der Hydrogeologie Band 8. Gebrüder Borntraeger, Berlin.
- MUDRY, J., BLAVOUX, B., DRAY, M. & VUYLSTEEK, G., 1990. Différenciation du fonctionnement de deux sources du massif karstique du Niffon (Haute-Savoie) à partir des données physico-chimiques et isotopiques. *Mémoires of the 22nd Congress of IAH*, vol. XXII/1, 375-382.
- NAIR, A.R., JAIN, S.K., RAO, S.M., EAPEN, A.C. & JOSHI, N.R., 1980. Radiotracer technique to study the efficacy of Bangarwadi percolation tank. *Nuclear Techniques in Hydrology*, 219-230.
- NOIR, A., 1993. Préparation des échantillons pour le dosage du rapport $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$. Rapport interne du Centre de Recherches Géodynamiques de Thonon-les-Bains, Université Pierre et Marie Curie.
- OESCHGER, H., 1972. Neue Möglichkeiten der Isotopenhydrologie, Datierung mit Hilfe von Edelgasisotopen. *Gas - Wasser - Abwasser* **9**, 291-293.
- O.M.S. (Organisation Mondiale de la Santé), 1985. Recommandations. Directives de qualité pour l'eau de boisson, vol. 1.
- ORaP, 1994. Ordonnance sur la radioprotection du 22 juin 1994. Conseil fédéral suisse.
- PANICHI, C. & GONFIANTINI, R., 1978. Environmental isotopes in geothermal studies. *Geothermics* **5**, 143-161.
- PAPESCH, W. & RANK, D., 1995. Isotopen Untersuchungen zur Erfassung der Wasserbewegung in der ungesättigten und gesättigten Zone (Leibnitzer Feld). *Österreichische Wasser- und Abfallwirtschaft* **7/8**, 180-184.

- PARRIAUX, A. & BENSIMON, M., 1990. Some rules for the design and the management of observation networks for groundwater resources. *Mémoires of the 22nd Congress of IAH*, vol. XXII/1, 719-727.
- PARRIAUX, A., ETCHEVERRY, D., VAUDAN, J., 2001. Isotopes dans le cycle de l'eau. Atlas hydrologique de la Suisse, Feuille 6.2. Service hydrologique et géologique national.
- PARRIAUX, A., LISZKAY, M., MUELLER, I. & DELLA VALLE, G., 1988. Guide pratique pour l'usage des traceurs artificiels en hydrogéologie. Société Géologique Suisse, groupe des hydrogéologues.
- PAYNE, B.R., 1988. The status of isotope hydrology today. *J. Hydrol.* **100**, 207-237.
- PEARSON, F.J., BALDERER, W., LOOSLI, H.H., LEHMANN, B.E., MATTER, A., PETERS, T., SCHMASSMANN, H. & GAUTSCHI, A., 1991. Applied isotope hydrogeology. A case study in northern Switzerland. *Studies in environmental science* 43. Elsevier, Amsterdam.
- PEARSON, F.J. & RIGHTMIRE, C.T., 1980. Sulphur and oxygen isotopes in aqueous sulphur compounds. *In Handbook of environmental isotope geochemistry* (Fritz & Fontes Ed.), vol. 1, 227-258.
- PLATA BEDMAR, A., IRAGUEN I., E., 1992. Leakage study at lake Laja, Chile. *Tracer Hydrology*, 387-396.
- PLOETHNER, D. & GEYH, M.A., 1990. $\delta^{18}\text{O}$ values as tracer of artificial groundwater recharge downstream of a reservoir. *Mémoires of the 22nd Congress of IAH*, vol. XXII/1, 533-539.
- POLYAKOV, V.A., MEDVEDEV, S.A. & PYATNITSKIY, N.V., 1996. An isotopic and hydrochemical study of the groundwater inflow into the north-Muya tunnel. *Proceedings of a symposium on the «Isotopes in Water Resources Management»* (I.A.E.A., 1995), 214-216.
- PRZEWLOCKI, K., 1975. Hydrologic interpretation of the environmental isotope data in the Eastern Styrian Basin. *Steir. Beitr. Hydrogeol.* **27**, 85-133.
- PRZEWLOCKI, K. & YURTSEVER, Y., 1974. Some conceptual mathematical models and digital simulation approach in the use of tracers in hydrological systems. *In Isotope Techniques in Groundwater Hydrology 1974*, Vol. II. Int. At. Energy Agency (I.A.E.A.), Vienna, 425-450.
- RANK, D., PAPESCH, W. & RAJNER, V., 1992. Environmental isotopes study at the Breitenau Experimental landfill (Lower Austria). *Tracer Hydrology*, 173-177.
- RANK, D., PAPESCH, W. & RAJNER, V., 1996. Environmental isotopes study at a research landfill (Breitenau, Lower Austria). *Proceedings of a symposium on the «Isotopes in water resources management»* (I.A.E.A., 1995), 379-381.
- RAUERT, W., WOLF, M., WEISE, S. M., ANDRES, G. & EGGER, R., 1993. Isotope-hydrogeological case study on the penetration of pollution into the deep Tertiary aquifer in the area of Munich, Germany. *J. of Contam. Hydrol.* **14**, 15-38.
- REMENDA, V. H., VAN DER KAMP, G. & CHERRY, J. A., 1996. Use of vertical profiles of $\delta^{18}\text{O}$ to constrain estimates of hydraulic conductivity in a thick, unfractured aquitard. *Water Resour. Res.* **32**, No. 10, 2979-2987.
- RICHTER, J., 1995. Methodische und regionale Beiträge zur Auswertung von Umweltisotopendaten in der Hydrogeologie. *Steir. Beitr. z. Hydrogeologie* **46**, p. 89-196.
- RICHTER, J., SZYMEZAK, P., ABRAHAM, T. & JORDAN, H., 1993. Use of combination of lumped parameter models to interpret groundwater isotopic data. *J. Contam. Hydrol.* **14**, 1-13.
- RICHTER, J., SZYMCZAK, P. & JORDAN, H., 1992. A computer program for the interpretation of isotope hydrogeologic data. *Tracer Hydrology*, 461-462.
- ROBINSON, H. D. & GRONOW, J. R., 1995. Tritium levels in leachate from domestic wastes in landfill sites. *Proceedings of a symposium on «Landfill»*, 377-390.
- RODHE, A., 1989. On the generation of stream runoff in till soils. *Nordic Hydrology* **20**, 1-8.
- ROZANSKI, K., ARAGUAS-ARAGUAS, L. & GONFIANTINI, R., 1993. Isotopic patterns in modern global precipitation. *Climate change in continental isotopic records. Geophysical monograph* **78**, 1-36.
- ROZANSKI, K., GONFIANTINI, R. & ARAGUAS-ARAGUAS, L., 1991. Tritium in the global atmosphere: Distribution patterns and recent trends. *J. Phys. G: Nucl. Part. Phys.* **17**, 523-536.
- SAKAI, H. & MATSUBAYA, O., 1977. Stable isotopic studies of Japanese geothermal systems. *Geothermics* **5**, 97-124.
- SCHLOSSER, P., 1992. Tritium/ ^3He dating of waters in natural systems. *Proceedings of a consultant meeting on the «Isotopes of noble gases as tracers in environmental studies»* (IAEA, 1992), 123-145.
- SCHLOSSER, P., STUTE, M., DOERR, H., SONNTAG, C. & MUENNICH, K. O., 1988. Tritium/ ^3He dating of shallow groundwater. *Earth Planet. Sci. Lett.* **89**, 353-362.
- SCHOTTERER, U., MUELLER, I. & SIEGENTHALER, U., 1987. Réflexions sur le fonctionnement des «blocs» capacitifs, peu perméables, dans le karst, étudié en période d'étiage à la source de l'Areuse (Jura Neuchâtel, Suisse). *Bull. Centre d'Hydrogéologie de Neuchâtel* **7**, 247-252.
- SCHOTTERER, U., STOCKER, T., BÜRKI, H., HUNZIKER, J., KOZEL, R., GRASSO, D.A., & TRIPET, J.-P., 2000. Das Schweizer Isotopen-Messnetz, Trends 1992-1999. *Gas - Wasser - Abwasser* **10/2000**, 733-741.
- SCHOTTERER, U., STOCKER, T., HUNZIKER, J., BUTTET, P. & TRIPET, J.-P., 1995. Isotope im Wasserkreislauf. Ein neues eidgenössisches Messnetz. *Gas - Wasser - Abwasser* **9/95**, 714-720.
- SIEGENTHALER, U. & OESCHGER, H., 1980. Correlation of ^{18}O in precipitation with temperature and altitude. *Nature* **285**, 314-317.
- SIWERTZ, E., 1973. Etude expérimentale par le tritium et l'oxygène-18 de l'infiltration sur les lysimètres et le bassin de Thonon. *Centre de Recherches Géodynamiques. Université Paris VI. Thonon-les-Bains*.
- SKLASH, M. G., FARVOLDEN, R.N., 1980. The use of environmental isotopes in the study of high-runoff episodes in streams. *Proceedings of a symposium on «Isotopes studies of hydrologic processes»* (IAEA, 1980), 65-73.
- SUKHIJA, B. S., REDDY, D. V., NAGABHUSHANAM, P., SYED HUSSAIN & GIRI, V. Y., 1996. The use of environmental isotopes and chlorid as natural tracers to investigate the effects of depressurisation of a coastal aquifer for lignite mining, India. *Hydrogeology J.* **4**, n°2, 70-88.
- TAKEDA, H., 1995. Metabolic and dosimetric study to estimate an annual limit on intake for organic tritium. *Fusion Technology* **28**, 964-969.
- TAUPIN, J.D., DEVER, L., FONTES, J. Ch., GUERO, Y., OUSMANE, B. & VACHIER, P., 1992. Evaluation de l'évaporation à travers les sols par modélisation des profils isotopiques sous climat sahélien: exemple de la vallée du Niger. *Proceeding of the Niamey workshop on «Soil water balance in the Soudano-Sahelian zone»* (IAHS), 159-171.
- TAZIOLI, G., 1996. The use of isotope techniques in groundwater pollution studies due to industrial activities. *Proceedings of the 1st international conference on «The impact of industry on groundwater resources»*, 565-571.

THIERRIN, J. & SCHOTTERER, U., 1990. Influence du lac de barrage de la Gruyère sur les eaux de la nappe phréatique des graviers de la Tuffière (Suisse occidentale). Mémoires of the 22nd Congress of IAH, vol. XXII/1, 540-548.

TRIPET, J.P. & BUTTET, P., 1995. Groundwater level monitoring in Switzerland. Proceedings of a symposium on «the role of geology and hydrogeology in environmental protection» (Geological Survey of Ireland), 1-6.

VUATAZ, F.D., 1983. Hydrology, geochemistry and geothermal aspects of the thermal waters from Switzerland and adjacent alpine regions. *J. Volcanol. Geothermal Res.* **19**, 73-97.

WATZEL, R. & BERTLEFF, B., 1992. Use of tracing tests in geotechnics. *Tracer Hydrology*, 179-184.

WEIZU, G., 1992. Challenge on some rainfall-runoff conceptions traced by environmental isotopes in experimental catchments. *Tracer Hydrology*, 397-403.

WENDEBOURG, J., 1990. Transport modeling of environmental isotopes in the upper Jurassic (Malm) Aquifer of the western molasse basin of Germany. Mémoires of the 22nd Congress of IAH, vol. XXII/1, 405-413.

YURTSEVER, Y. & PAYNE, B.R., 1979. Application of environmental isotopes to groundwater investigation in Qatar. Proceedings of an international symposium on «Isotope hydrology» (IAEA, 1978), vol.2, 465-490.

ZUBER, A., 1986. Mathematical modeling for the interpretation of environmental radioisotopes in groundwater systems. *In Handbook of environmental isotope geochemistry* (Fritz & Fontes Ed.), vol. 2, 1-59.

