

Earth and Life Institute - Environmental Sciences

Université catholique de Louvain

Évaluation de l'impact du PGDA sur les profils de nitrate en zone non-saturée à grande profondeur : développement méthodologique

Projet Carottage - PGDA

Sébastien Petit
Marnik Vanclooster

Mai 2014 - Septembre 2014

Table des matières

1 Introduction **1**
1.1 Contexte de la convention . . . 1
1.2 Objectifs . . . 2
1.3 Méthodologie générale . . . 2

2 Parcelles d'étude **5**
2.1 Critères de sélection . . . 5
2.2 Contextes hydro-géologiques . . . 6
2.2.1 Sables du Bruxellien . . . 6
2.2.2 Crétacé du Hesbaye . . . 8
2.3 Localisation des parcelles . . . 8
2.4 Itinéraires agronomiques . . . 9

3 Chantiers de carottage en profondeur **13**
3.1 Techniques de forage retenues . . . 13
3.2 Analyses laboratoires et dispositifs expérimentaux . . . 15
3.2.1 Analyse des carottes solides . . . 15
3.2.2 Analyse des échantillons d'eau . . . 16
3.3 Bilan de la campagne de terrain . . . 19

4 Analyses préliminaires **21**
4.1 Résultats analytiques . . . 21
4.2 Analyse statistique des historiques azotés en surface et en profondeur . . . 23
4.3 Bilans de masse . . . 24

5 Modélisation conceptuelle **29**
5.1 L'azote nitrique comme traceur conservatif . . . 30
5.1.1 Méthodologie . . . 30
5.1.2 Résultats et interprétations . . . 32
5.2 Les traceurs de l'âge apparent de l'eau . . . 34
5.2.1 Méthodologie . . . 35
5.2.2 Résultats analytiques . . . 41
5.2.3 Interprétation . . . 42

6 Modélisation numérique **47**
6.1 Le modèle WAVEmat . . . 47
6.2 Méthodologie . . . 48
6.2.1 Paramétrisation . . . 48
6.2.2 Conditions limites en surface . . . 51
6.3 Résultats . . . 52
6.4 Interprétation . . . 59

7 Conclusion **61**

8 Bibliographie **67**

9 Annexes **71**

Chapitre 1

Introduction

1.1 Contexte de la convention

Pour répondre aux exigences de la Directive Nitrate et protéger la qualité des eaux contre la pollution d'origine agricole, la Région wallonne a déployé, à partir de 2002, le Programme de Gestion Durable de l'Azote (PGDA) en agriculture qui comprend plusieurs dispositions permettant de réduire les pertes de nitrates à partir de la zone racinaire des parcelles agricoles.

La Commission a cependant adressé récemment une mise en demeure à la Région wallonne, face aux résultats du PGDA sur la qualité des nappes phréatiques, jugés décevants. Suite à ce manque de résultats, un procès européen sur base de l'Article 5.5. de la Directive Nitrate est à craindre. Outre les frais du procès et les efforts dégagés en pure perte pour y répondre, ce ne sont pas tant les amendes et les astreintes qui sont à appréhender, mais un renforcement obligatoire des mesures imposées, qui freinerait grandement la viabilité de nos exploitations agricoles.

Toutefois, la diminution des pertes de nitrates à partir de la zone racinaire ne se traduit pas immédiatement par une amélioration de la situation au niveau des nappes. Les effets du PGDA ne se sentiront donc qu'avec un certain retard. Le délai d'impact dépendra des conditions environnementales (types de sols, caractéristique agricole, conditions hydrogéologiques) des exploitations concernées. Ainsi, il est possible que la dégradation des eaux souterraines persiste un certain temps, malgré la mise en place de la législation.

Un temps de retard dans l'observation de l'impact des modifications de pratiques culturales peut être dû à différents facteurs propres à nos régions :

– La profondeur importante des nappes dans les régions vulnérables aux pollutions azotées (30 à 70 m), combinée à une incertitude persistante sur la dynamique de recharge des nappes en réponse aux dynamiques climatiques. En effet, pour les sables du bruxellien par exemple, les temps de transferts estimés au travers des sous-sols varient de 3 à 14 m/an suivant les méthodes envisagées (Mattern et al 2010). Cette problématique démontre la nécessité d'obtenir des résultats empiriques des teneurs en nitrates en profondeur.

– Suite aux fortes charges azotées ayant précédé l'appropriation du PGDA par le monde agricole wallon, les sous-sols demeurent encore chargés en azote. Même si la charge apportée en surface a considérablement décru, l'eau de la recharge de la nappe continue de se charger par « nettoyage » au travers du profil de sol.

L'effet de la législation peut être prédite dans une certaine mesure par des modèles mathématiques tels que EPIC-Grid, mais la Commission européenne est beaucoup plus à l'aise avec des mesures directes, qui peuvent valider et/ou améliorer le modèle.

1.2 Objectifs

L'objectif principal de cette étude est d'**appuyer le développement et l'implémentation d'une méthodologie permettant de contribuer à la validation expérimentale du PGDA**, tant pour servir éventuellement à l'argumentation wallonne face à un procès européen, que pour consolider les modèles sur lesquels la Région wallonne s'appuie.

Les objectifs spécifiques suivant sont mis en évidence :

– Fournir des mesures directes, qui peuvent valider et consolider les modèles sur lesquels la Région wallonne s'appuie (EPIC-grid).
– Interpréter les profils de nitrates du sous-sol non-saturé de parcelles agricoles soumises à des modifications importantes de la gestion des intrants azotés depuis le lancement du PGDA.
– Estimer les temps de transferts le long de ces profils.
– Fournir une estimation du temps de retard à l'observation de l'impact du PGDA sur la qualité nitrique des aquifères wallonnes.

1.3 Méthodologie générale

L'UCL, partenaire scientifique dans la structure d'encadrement Nitrawal, à côté de l'Université de Liège-Gembloux Agro-BioTech (ULg-GxABT), est un acteur central dans l'étude et le conseil quant au Programme de Gestion Durable de l'Azote (PGDA).

La méthodologie développée sera basée sur une interprétation des profils de nitrates en profondeur, d'une caractérisation complète des profils de sol et sur le suivi de traceurs hydrologiques liés à l'âge de l'eau. La méthodologie sera appliquée sur 3 sites agricoles pilotes du réseau de suivi scientifique du PGDA, qui ont été soumis aux modifications importantes de la gestion des intrants depuis le lancement du programme et qui ont été suivis en termes d'itinéraire agronomique et performance environnementale.

Les sites d'étude seront sélectionnés de façon à pouvoir extraire des carottes de sol sans mélanger les différentes couches sur une profondeur suffisamment importante que pour pouvoir être témoin des historiques culturaux en jeu.

Au sein du réseau des fermes de référence mis en place par la structure d'encadrement Nitrawal, les itinéraires culturaux respectueux du PGDA sont connus sur une période de 15 ans pour

plusieurs dizaines de parcelles agricoles wallonnes. Les chroniques annuelles d'Azote Potentiellement Lessivable à l'automne (APL) sont également connues pour ces parcelles. Certaines ont encore fait l'objet d'un suivi lysimétrique continu grâce à la Convention Lysimètre.

En recoupant les informations culturales avec une mesure précise du profil des teneurs en nitrate dans le sous-sol à l'approche de la nappe, nous pourrons déterminer si les concentrations en nitrates mesurées au toit de la nappe correspondent bien à l'importance de l'APL mesuré en surface et au volume d'azote nitrique quittant la zone racinaire. Par ailleurs nous pourrons nous situer quant au temps de retard, inhérent au sous-sol, encore nécessaire à l'observation de l'impact du changement de pratiques.

Le projet "Carottage-PGDA" s'est articulé en 5 grandes étapes :

1. Sélection des parcelles d'étude à partir desquelles seront extraites les données analytiques *(Chapitre II)*.
2. Forage en profondeur, extraction des carottes de sols et analyses laboratoire *(Chapitre III)*.
3. Synthèse des résultats de terrain et analyses statistiques préliminaires *(Chapitre IV)*.
4. Modélisation du transfert de l'eau et des nitrates à travers les profils non-saturés par des approches conceptuelles et numériques *(Chapitres V et VI)*.
5. Synthèse des résultats et conclusions *(Chapitre VII)*.

L'agenda final des 5 mois de projet pour l'année 2014 est présenté à la figure 1.1.

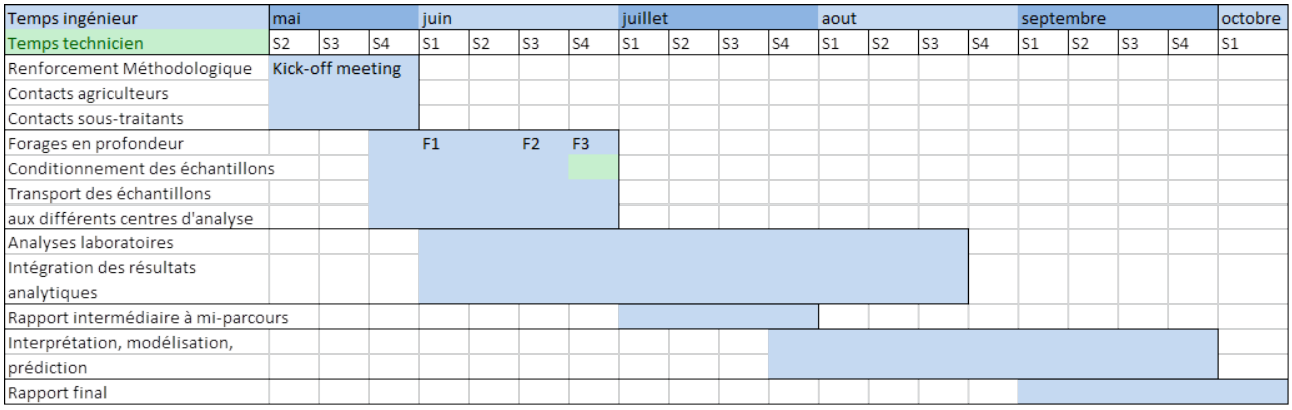


FIGURE 1.1 – Agenda des réalisations du projet "Carottage-PGDA, Développement méthodologique" pour 2014

Chapitre 2

Parcelles d'étude

Dans cette partie nous proposons une méthodologie pour la sélection des parcelles d'étude afin d'être représentatif des régions wallonnes les plus à risque vis-à-vis des pollutions des aquifères aux nitrates. Nous proposons de limiter le nombre de chantiers afin d'investiger un maximum de paramètres dans nos interprétations. Nous sélectionnons 3 parcelles agricoles pour lesquelles l'efficacité du PGDA sera évaluée.

2.1 Critères de sélection

Les parcelles doivent répondre aux critères de sélection suivants :

- Appartenir au réseau des fermes de référence dont les itinéraires culturaux respectueux du PGDA sont connus sur des périodes de 10 à 15 ans.
- Disposer d'un suivi APL annuel complet sur la même période de temps.
- Être située en zone vulnérable.
- Être située sur une nappe de profondeur adéquate (20 à 30 m), sans devoir être trop profonde pour ne pas entrainer de coûts de forage trop élevés. Le profil non saturé doit contenir des traces de l'historique des pratiques culturales depuis les débuts du PGDA.
- Présenter un sous-sol qui pourra être foré avec précision.
- Ne pas être sujette à des pollutions azotées autres que agricoles.
- Avoir fait l'objet d'un accident cultural dans le passé (excès de fertilisation, retournement de prairie ancienne,...) pouvant se marquer dans le profil azoté de profondeur.
- Présenter une diversité d'itinéraires culturaux.

Au vu de ces critères et de l'état actuel des aquifères wallonnes quant aux pollutions azotées (Annexe, figures 9.1 et 9.2), les parcelles sélectionnées devront être choisies parmi les aquifères suivantes :

- Nappe des Sables Bruxelliens ;
- Nappe du Crétacé de Hesbaye ;
- Territoire du Sud Namurois ;
- Alluvions de l'Escaut (territoire de la commune de Comines-Warneton) ;

– Craies du Pays de Herve.

Dans les alluvions de l'Escaut les nappes sont peu profondes et les enjeux agricoles liés à la qualité de l'eau sont bien connus et ne nécessitent pas d'investigations dans le cadre du présent projet. Le territoire du Sud Namurois est le dernier à être entré en zone vulnérable en Wallonie et ses sous-sols, de type karstiques, sont beaucoup trop complexes pour entrer dans une première étude de développement méthodologique. Les zones des Sables du Bruxellien (SdB) et les craies du Crétacé du Hesbaye sont donc privilégiées dans notre sélection de parcelles.

Une première sélection de 10 parcelles cohérentes avec les critères agronomiques est réalisée en collaboration avec les organes scientifiques de l'UCL et de $ULg\text{-}GxABT$ dans la structure d'encadrement *Nitrawal*.

Une étude hydrogéologique des régions d'étude nous permet d'exclure une première série de ces parcelles. La carte des hauteurs piézométriques en SdB réalisée par Mattern (2009) est mise à contribution. En SdB également, il convient de sélectionner des zones où le risque de présence de bancs de grès en surface est limité (Cfr. section 2.2).

La sélection finale des 3 parcelles est réalisée suite à des observations de terrain : topographie, structure du sol appropriée aux machines de forage, état de développement et type de culture en place, enthousiasme de l'agriculteur pour le projet.

Deux parcelles en SdB et une parcelle en Hesbaye entrent finalement dans l'ensemble de nos critères d'étude et feront l'objet d'un carottage en profondeur.

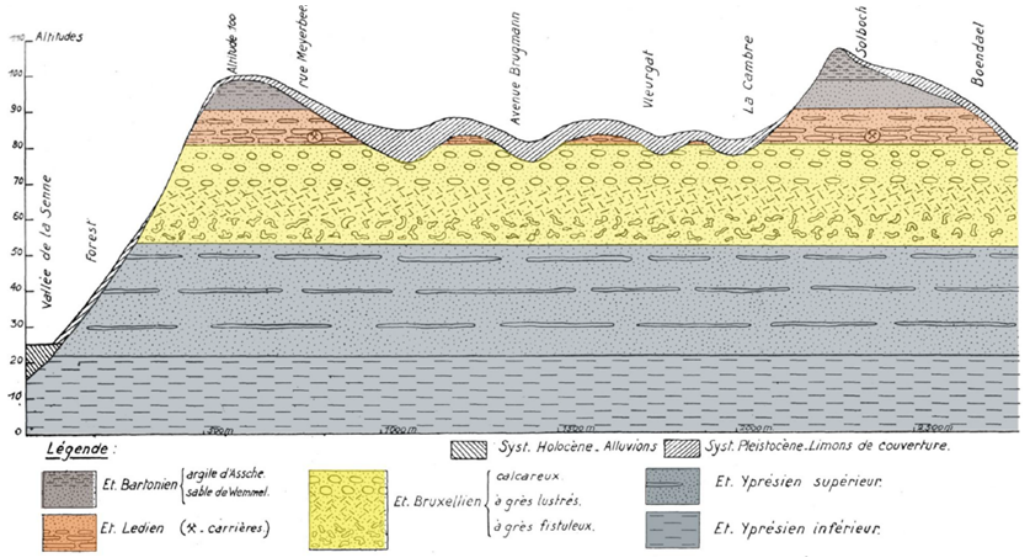
2.2 Contextes hydro-géologiques

2.2.1 Sables du Bruxellien

Les SdB sont composés en principe du sommet à la base (Figure 2.1, SBGIMR (2013)) :
– d'un niveau de grès calcareux perforé avec de nombreuses coquilles ;
– de sables fins très calcareux, sans stratification apparente avec des bancs de grès calcareux relativement réguliers ;
– de sables assez fins un peu calcareux à stratification relativement régulière avec des "moêllons" de "grès lustrés" dispersés ;
– de sables quartzeux, assez grossiers, à. stratification entrecroisée avec des "grès fistuleux" ;
– de sables grossiers, siliceux blancs ou rougeâtres.

Ces différenciations lithologiques sont parfois difficiles à établir avec précision, la formation étant souvent décalcifiée par les circulations d'eaux souterraines. Le niveau de la nappe

FIGURE 2.1 – Coupe diagramme O-E passant par l'altitude 100 et le Solboch



phréatique est donc déterminant dans l'étude géotechnique de ces terrains. L'épaisseur de cette formation varie de 0 à 44 m. Elle n'existe dans son entièreté que sous les sables et grès lédiens où son épaisseur atteint 44 m.

Le *Lédien* affleure largement entre les vallées de l'Escaut et de la Dyle, en Flandre Orientale et dans le Nord du Brabant. Il s'enfonce en pente douce vers le N.-N.-O. et est recouvert par les sables et les argiles du *Bartonien*. Il se compose de sables micacés, calcarifères, devenant glauconifères à l'ouest de la Dendre. Dans ces sables se trouvent généralement 3 à 4 bancs de sable fortement aggloméré par du carbonate calcique généralement dénommés grès lédiens ou calcaire sableux.

On retrouve des bancs de pierres de 15 à 25 cm de hauteur, parfois jusqu'à 40 cm (SBGIMR (2013)) sur des surfaces très variables. Ils se composent principalement de carbonate de calcium ($CaCO_3$, 50 à 70 %), d'oxyde de fer et d'aluminium (Al_2O_3 et Fe_2O_3 : 1 à 2%) et d'une partie insoluble à l'HCl (30 à 45%). Ces grès calcaires peuvent s'altérer en sable, sable limoneux, limon sableux et quelquefois en argile sableuse (argile de dissolution). Des blocs épars, des rognons ou des bancs de grès calcaires fissurés ou cohérents peuvent subsister dans les matériaux d'altération (Meryckx et al. (1958)).

Les limons, constitués de fines particules de quartz, d'argile et de calcite sont de couleur brun-jaune à gris-jaune ou gris brun selon leur altération. Vers la base, les limons deviennent fréquemment contaminés par des particules silteuses et sableuses issues du substratum tertiaire. Ils sont parfois inter stratifiés sur de grandes surfaces de lentilles graveleuses composées de silex pluri centimétriques souvent brisés, à surface altérée, enrobés dans une matrice sablo-limoneuse (Delcambre and Pingot (2002)).

2.2.2 Crétacé du Hesbaye

Le plateau de Hesbaye s'étant sur environs 350 km^2 en faible pente vers le Nord-Est avec des altitudes allant de 80 à 206 m.

La succession lithologique de cette formation s'enchaine comme suite (Figure 9.4, annexe 9, Brouyère et al. (2004)) :

- couche de loess quaternaire d'épaisseur variable ;
- dépôts de sable tertiaire localisés ;
- une épaisseur de conglomérat allant jusqu'à 10 m ;
- un sous-sol crayeux dont l'épaisseur varie entre quelques mètres et plus de 70 m ;
- plusieurs mètres d'argile à smectite considérés comme la base de l'aquifère.

L'épaisseur du profil non saturé augmente à mesure que l'on s'éloigne du passage du Geer et de ses affluents la Yerne et la Roua mais il ne dépasse que rarement les 30 à 40 m de profondeur. A part dans le Nord du bassin, l'aquifère est non confinée et se situe donc à une certaine profondeur au niveau du sous-sol de craie.

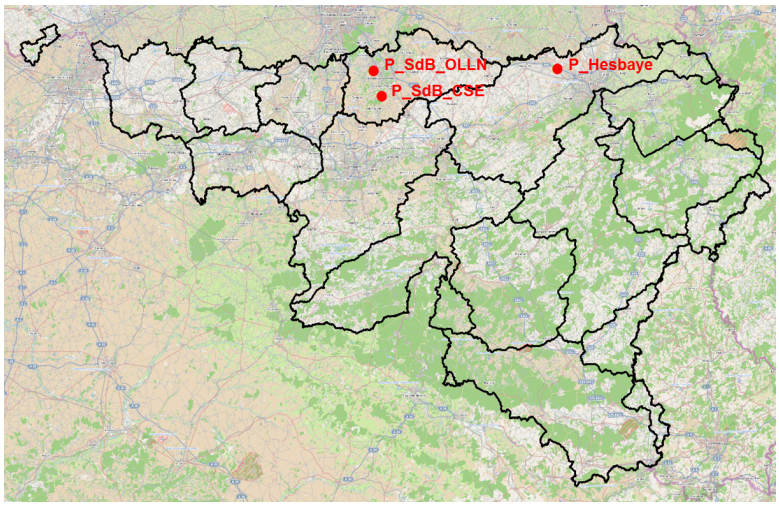
La craie et la présence d'un horizon de conglomérat important sont les principales différences par rapport aux sous-sols des SdB. Le conglomérat est un matériau hétérogène issu de la dissolution des craies. Cet horizon présente des silex de tailles variables, du sable, de l'argile et des résidus phosphatés (Brouyère et al. (2004)).

Les propriétés hydrauliques particulières de "double porosité" de la craie sont soulignées dans de nombreuses études (Brouyère et al. (2004), Orban et al. (2006)). La craie est caractérisée par une porosité importante et une faible conductivité à saturation. La porosité associée aux fissures est très faible mais leur contribution à la conductivité à saturation est prédominante. La plupart du temps l'infiltration n'est pas suffisante pour saturer le milieu. Lors de période de recharge importante cependant, l'eau excédentaire rempli le réseau de fissures et les solutés sont rapidement entrainés vers la profondeur, tandis qu'une part de l'eau reste immobile dans la matrice crayeuse.

2.3 Localisation des parcelles

Deux parcelles en SdB et une parcelle en Hesbaye entrent finalement dans notre étude (Figure 2.2). La délimitation des parcelles, le point de forage et la présence d'ouvrages de prélèvement de la nappe à proximité direct des parcelles sont localisés à la figure 2.3.

FIGURE 2.2 – Localisation des parcelles d'étude



2.4 Itinéraires agronomiques

Trois agriculteurs sont directement impliqués dans ce projet et mettent à disposition, contre dédommagement, une de leur parcelle suivie rigoureusement depuis le début du PGDA. Les emblavements successifs, les apports de fumures organiques et minérales et l'APL évaluée en octobre, novembre et/ou décembre sont repris synthétiquement à la figure 2.4.

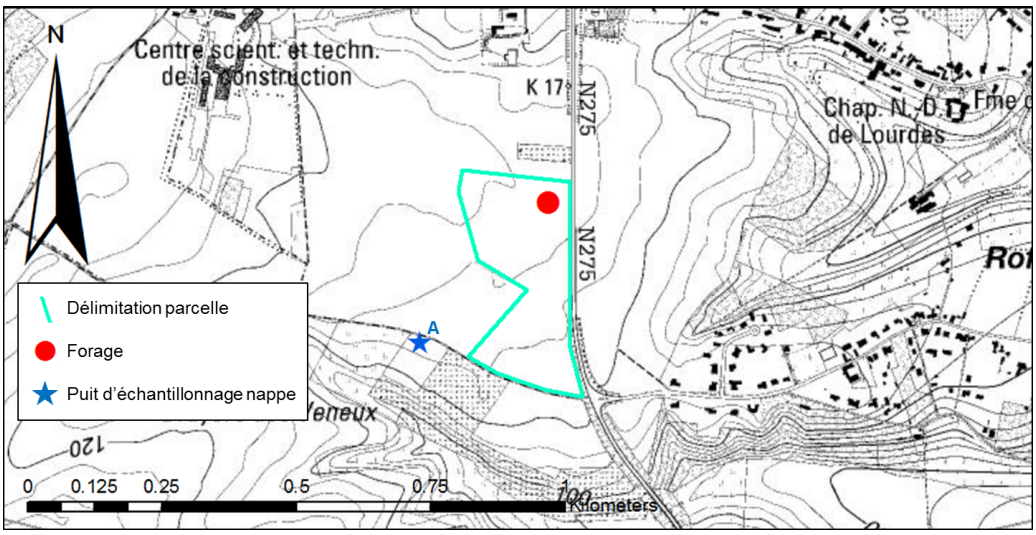
L'agriculteur d'Ottignies est producteur laitier et de volaille, ce qui détermine les matières organiques à sa disposition pour les fumures de ses parcelles. La parcelle sélectionnée a fait l'objet d'une succession froment-betterave depuis de nombreuses années. L'agriculteur de Court-St-Etienne est uniquement en grandes cultures. Il a la particularité de pratiquer la culture d'endives et de pois de conserverie. Il travail en non-labour et attache une importance particulière à la couverture permanente de ses terres. Pour la Hesbaye, nous avons sélectionné un itinéraire typique de grandes cultures, représentatif de la surface agricole mais non représentatif des cultures les plus à risques dans cette région. Les rotations légumières étant déjà suivies par *Grenera*[1].

Les "accidents culturaux" en terme d'APL, marqués sur une concentration plus élevée en nitrate en surface, qui pourront potentiellement être retrouvés en profondeur sont :

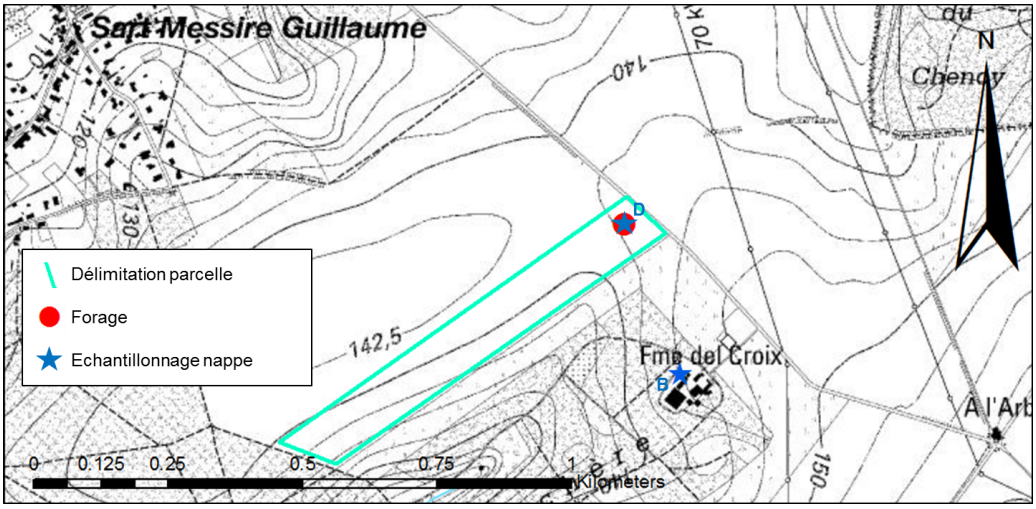
- pour la parcelle P_SdB_OTT, un APL plus élevé que 100 pour 2005-2006 faisant suite à une forte fertilisation organique après betterave.
- Pour la parcelle P_SdB_CSE, un pic APL de 220 isolé en 2005. La culture de lin laissant régulièrement des reliquats élevés.
- Pour la parcelle $P_Hesbaye$, deux APL plus élevés que 200 en 2004 et 2007.

1. le Groupe de Recherche en Environnement et Ressources Azotées, organe de l'Université *Liège-GblxABT*

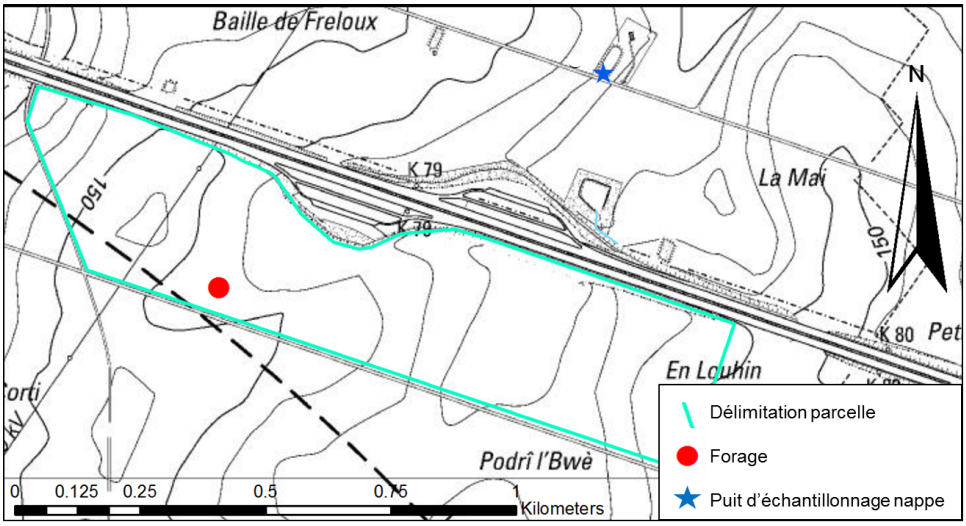
FIGURE 2.3 – Délimitations des parcelles d'étude



(a) Parcelle *P_SdB_OTT*

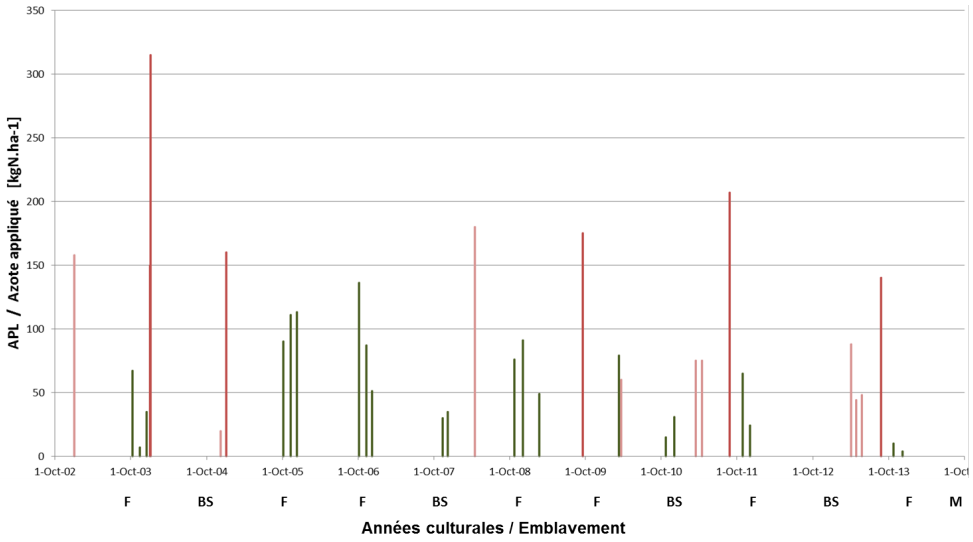


(b) Parcelle *P_SdB_CSE*

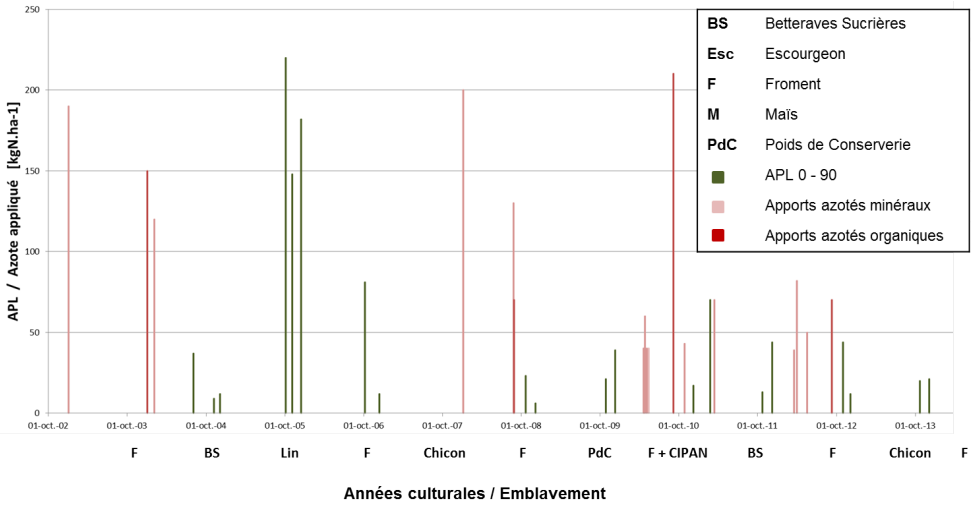


(c) Parcelle *P_Hesbaye*

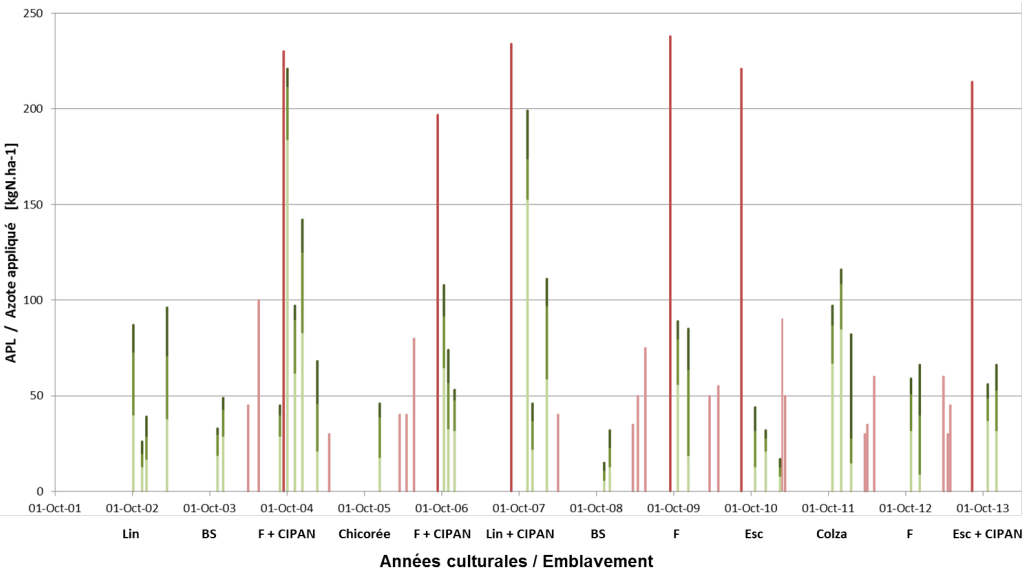
FIGURE 2.4 – Itinéraires cultural des parcelles d'étude



(a) Parcelle *P_SdB_OTT*



(b) Parcelle *P_SdB_CSE*



(c) Parcelle *P_Hesbaye*

Chapitre 3

Chantiers de carottage en profondeur

Chacune des parcelles d'étude est sondée par carottage en profondeur pour extraction d'échantillons par horizons de 50 cm jusqu'au toit de la nappe.

Le site de forage est choisi en bordure de parcelle afin de limiter les dégâts inhérents aux cultures en place et les dédommagements aux agriculteurs. Une distance minimale de 50 m des extrémités est tout de même respectée afin d'éviter tout effet de bord. Avant les travaux il convient de localiser de manière précise les sites de forage sur le portail du *Point de Contact fédéral Informations Câbles et Conduites* [1] afin de s'assurer de l'absence d'impétrant à proximité directe. Une réponse est donnée dans les 21 jours qui suivent la demande avec d'éventuels plans de localisation des conduites. La consultation des communes concernées afin de s'assurer que toutes les entreprises possédant des impétrants soient bien recensées sur le portail est préférable.

Les échantillons de sols sont conservés durant tout le processus, entre l'extraction en champ et les analyses en laboratoire, à une température comprise entre 1^oC et 4^oC afin de limiter toute activité bactérienne et altération de la teneur des éléments. Des échantillons d'eau prélevés dans les aquifères sont également prélevés et analysés suivant le protocole explicité plus bas.

3.1 Techniques de forage retenues

L'objectif est de sélectionner la technique de forage la plus apte à traverser les sous-sols de la région, notamment les bancs de grès en SdB (Cfr. section 2.2.1), tout en garantissant une précision sur la profondeur des carottes de terre ramenées en surface. D'autres critères entrent en jeu : le poids de la machine et le temps de forage pour limiter les dégâts aux parcelles, la non utilisation de fluides de forage pour empêcher toute contamination des eaux des échantillons prélevés, le conditionnement des carottes de sol, l'expérience des foreurs pour ce type de travaux.

Les entreprises régionales spécialisées suivantes ont été consultées via un appel d'offre concurrentiel :

1. Portail KLIM-CICC : https ://www.klim-cicc.be/klim2/home.jsp

- Eco-Planning sprl (Court-Saint-Etienne)
- Geofotech sprl (Walhain)
- Geoprobe Environmental Technologies (Waterloo)
- Siterem SA (LLN)
- Smet GWT Wallonie (Fleurus)

Il s'est révélé dans un premier temps que certaines techniques *Geoprobe* pourraient fournir un carottage de précision en profondeur. *Geofotech sprl* ne travaille qu'avec des machines de faibles puissances pour l'échantillonnage de grande précision des couches superficielles. *Geoprobe Environmental Technologies* dispose cependant du modèle *Geoprobe* à tête de forage *roto-sonic*. Ce modèle est puissant, relativement léger (8,7 tones) et maniable. Il permet à priori de traverser des concrétions à l'aide de sa tête de forage à rotation et vibrations. Il fait une utilisation limitée des fluides de forage pour refroidir la tête et conditionne les carottes dans des gaines de 75,6 mm de diamètre interne fois 1,5 m de long.

Cette technique a été évaluée lors du premier forage sur la parcelle d'Ottignies. Les qualités de maniement de la machine, de précision d'échantillonnage et de conditionnement des échantillons ont été vérifiées. La machine a cependant souffert sur trois points majeurs :

- dans une succession typique des SdB d'horizons concrétionnés et d'horizons plus légers de sable, la tête de forage ne prend pas appui, casse les concrétions sans les forer, de sorte que la carotte n'entre pas dans la gaine d'échantillonnage mais est repoussée vers l'extérieur.
- après 15 m de forage, la machine montre des limites de puissance de rotation face aux frictions croissantes le long du profil foré.
- au vu de ces deux contraintes, et certainement par un manque d'expérience dans l'utilisation de ce nouveau modèle Geoprobe, des quantités importantes de fluide de forage (eau de pluie) ont été nécessaires. Ceux-ci ont fait l'objet d'une analyse nitrate garantissant la non contamination des échantillons.

Ce premier forage à Ottignies a donc été excellent jusque 13,5 m. L'avancement en profondeur a alors été de plus en plus laborieux. Les carottes extraites n'étaient plus complètes et le foreur s'est trouvé dans l'impossibilité de poursuivre après 20 m de profondeur, avant l'atteinte du toit de la nappe. Les carottes extraites jusque 20 m sont tout de même exploitables mais nous avons décidé de nous diriger vers d'autres techniques de forage pour le carottage des parcelles suivantes.

L'entreprise *Smet-GWT* a proposé une solution adéquate dans les temps escomptés. Les forages à Court-St-Etienne et en Hesbaye ont été menés à l'aide de 3 techniques de forage suivant les profondeurs et la dureté des horizons :

Tarière : une visse munie d'une tête de forage (tarière), d'un diamètre de 180 mm et d'une longueur de 1,5 m est enfoncée dans le sol. Une buse de diamètres 219 mm habille la tarière avant que celle-ci soit tirée en surface par un treuil. La tarière est alors échantillonné

pour prélèvement de deux horizons de 50 *cm*. Un enchainement de buses sont enfoncées à mesure que le forage avance.

Chape : pour des horizons trop durs pour la tête de forage de la tarière, la chape est fixée au treuil de la machine. Elle entre dans l'habillage des buses et frappe le sol en récupérant par à-coups une carotte de sol de 1 *m*.

Bouteille : lorsque le sous-sol est très humide il ne peut être contenu dans la tarière ou la chape lors de la remontée en surface. La "bouteille" est alors fixée au treuil et comme la chape elle s'enfonce par à-coups dans le sol et est munie d'un clapet qui garde l'échantillon liquéfié. Cette dernière technique fut particulièrement utile pour les profondeurs des craies du Hesbaye.

Le forage à Court-St-Etienne a ainsi été mené dans les meilleures conditions jusqu'à une profondeur de 23 *m*. 7,5 *m* de limon sont traversés. Le reste du profil est composé de sables grossiers verts et jaunes, avec des horizons plus ou moins indurés mais sans concrétions gréseuses. La nappe a été atteinte après 21,5 *m* faisant remonter du sable saturé sous pression jusqu'à 16 *m*. Le carottage a ainsi été poursuivi jusque 23 *m* par séquence de remontées de sable et de nettoyage du profil. Une fois les gaines placées jusque 23 *m*, la hauteur d'eau du forage s'est stabilisée à 21,5 *m* et la nappe a pu être échantillonnée.

En Hesbaye, nous prévoyons une profondeur de nappe à 30 *m* suivant les coupes hydrogéologiques de la carte numérique des sols belges. Le forage a cependant été stoppé à 38 *m* avant atteinte de l'aquifère. Le manque d'information sur la profondeur actuelle de la nappe ne justifiant plus le coût de forage de chaque mètre supplémentaire. Le profil de succession de 13 *m* de limon, 5,5 *m* de conglomérat et 19,5 *m* de craie étant déjà une source d'information considérable pour le recoupement de l'historique cultural.

3.2 Analyses laboratoires et dispositifs expérimentaux

3.2.1 Analyse des carottes solides

Pour chaque horizon de 50 *cm* de sol, un échantillon d'environ 1 *kg* est prélevé sur la tarière. Ces échantillons sont ensuite tamisés. 300 *g* de sol par carotte sont finalement envoyés au laboratoire sous sachets plastiques stockés en *frigobox*.

Les analyses suivantes sont réalisées par le centre expérimental de l'UCL de Michamps (Centre d'information agricole de la Province du Luxembourg) dont le laboratoire d'étude de qualité est accrédité par BELAC sous le *n°138-TEST*, selon la norme *NBN EN ISO/IEC 17025 :2005*.

Dosage des nitrates : La méthodologie développée par les partenaires scientifiques de *Nitrawal* pour l'évaluation des APL de références est appliquée. Cette méthodologie comprend les

étapes suivantes :

- homogénéisation des carottes de terre par tamisage (8mm) des échantillons. La charge caillouteuse est évaluée en % ;
- introduction de 60 g de terre non séchée dans un flacon d'extraction avec 300 ml de solution de KCl 0,1 N ;
- agitation des flacons fermés hermétiquement au sein de l'agitateur rotatif durant 30 minutes suivie de 30 minutes de décantation ;
- filtration du surnageant pour dosage du nitrate.
- dosage du nitrate par titrimétrie : réduction du nitrate en ammonium après distillation et entraînement à la vapeur.

Le résultat est donné en concentration d'azote nitrique par litre de solution titrée (C_t). Il convient de corriger cette concentration afin de soustraire les 300 ml de solution KCl ajoutés pour l'extraction et ainsi obtenir la concentration réelle en azote nitrique par litre de solution de l'échantillon de 60 g de sol (C_r) (équation 3.1).

$$C_r = C_t \frac{300 + (60\,\theta_s)}{(60\,\theta_s)} \, [mgN - NO_3^-.L^{-1}] \tag{3.1}$$

Teneur en eau massique (θ_s) : Détermination par pesée des poids humides et secs de 60 g de sol frais. La teneur en eau volumique (θ_v) le long du profil est obtenue par estimation des densités apparentes des horizons de sol. Comme pour l'évaluation de l'APL, une densité de 1,35 $g.cm^{-3}$ est estimée pour l'horizon de surface (0 - 50 cm) et 1,50 $g.cm^{-3}$ pour le reste du profil.

Granulométrie et carbone total : Détermination sur des échantillons broyés à 2mm.

Dosage des cations majeurs (Ca^{++}, Mg^{++}, Na^+, K^+, NH_4^+) et du PO_4^- : Détermination par spectrométrie torche à plasma (ICP) sur des échantillons broyés mis en solution.

Azote total : Détermination par la méthode de Kjeldahl.

3.2.2 Analyse des échantillons d'eau

En plus de la caractérisation des profils non saturés, nous échantillonnons l'eau des aquifères directement sous la parcelle d'étude, dans la mesure du possible, et dans un ouvrage situé à proximité de la parcelle (Cfr. section 2.3). Les analyses d'eau portent sur la teneur en nitrate, l'activité en tritium et la teneur en $CFCs$ et SF_6. Ces dernières mesures étant valorisées par des modélisations conceptuelles pour l'estimation de l'âge de l'eau et l'évaluation d'un temps de transfert de l'eau vers la nappe (Cfr. section 5.2).

Dosage des nitrates : L'analyse nitrate de tous les échantillons d'eau est également réalisée par le centre de *Michamps*.

Activité tritium : La mesure de l'activité en tritium de l'eau correspond au comptage des particules β émises par l'échantillon d'eau par unité de temps, soit le nombre de désintégrations par unité de temps et de masse (Arnaud and Baran (2009)). Les unités sont les unités tritium (UT). 1 UT correspond à un atome de ^3H pour 1018 atomes de ^2H et ^1H.

L'analyse de la teneur en eau tritiée demande le recueil de 1 à 1,5 litres d'eau par échantillon. Suivant la teneur en eau du profil de sol cela représente un volume de sol important, dont l'eau des pores doit être récupérée par *Lyophilisation* Tasneem et al. (2009). Dans le cadre de ce projet nous n'avons pu réaliser d'analyse tritium qu'au toit de la nappe par le prélèvement direct d'eau en milieu saturé et non le long du profil non saturé (Cfr. section 5.2.1.1).

Ces analyses sont sous-traitées au laboratoire *Isodetect GmbH*, localisé au *German Research Center for Environmental Health* à Neuherberg, Munich.

Il faut noter que l'analyse de l'activité en tritium d'échantillons d'eau représente une contrainte considérable dans un tel projet. Le comptage des particules β, pour une limite de détection adéquate avec nos objectifs de datation, nécessite un temps considérable par échantillon. Aucun laboratoire belge n'a été identifié pour fournir une telle précision dans les délais escomptés pour 4 à 5 échantillons d'eau.

$CFCs$ **et** SF_6 **:** L'analyse de la concentration trace de ces gaz dans l'eau demande un investissement considérable dans les techniques d'échantillonnage de l'aquifère. Les échantillons d'eau doivent être enfermés dans des containers hermétiques appropriés sans entrer en contact avec l'atmosphère et sans entrer en contact avec une série de matériaux susceptibles d'altérer leur concentration trace. Le dispositif de la figure 3.1 est mis en place afin d'éviter tout contact de l'eau prélevée dans la nappe avec l'air ambiant. Ce dispositif comprend les éléments suivants :

(a) seau en métal de 50 L
(b) tuyau relié à la pompe à immersion
(c) bouteille en vers d'échantillonnage
(d) bouchon en verre
(e) fermeture en acier inoxydable pour la bouteille en verre
(f) container de sécurité en métal contenant (c)
(g) couvercle de (f) avec joins d'étanchéité
(h) fermeture en acier de (g)

Le dispositif doit être entièrement immergé sous l'eau de forage durant le processus d'échantillonnage. Après remplissage de 3 équivalents du compartiment (a), les flacons sont sellés sous

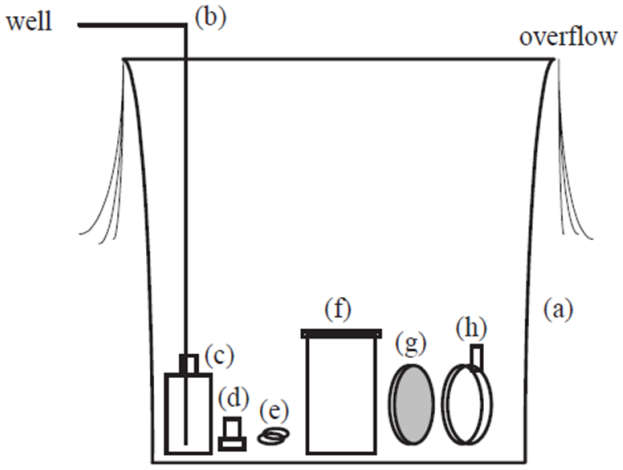


FIGURE 3.1 – Méthodologie pour la prise d'échantillons d'eau pour l'analyse des teneurs en gaz $CFCs$ et SF_6 (IAEA (2006))

l'eau enfermés dans un second container de sécurité pour le transport au laboratoire.

D'autres considérations sont à prendre en compte dans ce dispositif pour une évaluation précise de l'âge de l'eau. Un nombre important de matériaux en caoutchouc synthétique sont sources de molécules contaminantes de l'eau échantillonnée. Ils emmagasinent les $CFCs$ de l'air et les relâchent progressivement dans l'échantillon d'eau après prélèvement (Dunkle et al. (1993)). Une liste exhaustive de ces matériaux avec leur potentiel de contamination est recensée dans (IAEA (2006)). Nous évitons toute utilisation de ceux-ci dans notre système expérimental. Les flacons d'échantillonnage spécifiques sont fournis par le centre d'analyse allemand *Isodetect GmbH* chargé de la partie analytique de l'évaluation des traceurs gazeux.

Nous utilisons une pompe à immersion *MP1 Grundfos* pour le remplissage du compartiment (a) du dispositif. Certains composants internes peuvent être à l'origine d'une faible contamination des traceurs $CFCs$. Une rondelle et une bague d'étanchéité sont composées de PTFE (Polytétrafluoroethylène ou Teflon) pouvant affecter la teneur en CFC-11 et CFC-113 (Cfr. Caractéristiques générales pompe). (IAEA (2006)) renseigne une contamination faible du CFC-11 et moyenne du CFC-113 après passage de N_2 dans un tube de Teflon de 2 mètres de long. La surface de contact considérablement réduite des joins de la pompe réduit ce risque de sous estimation de l'âge apparent de l'eau.

Un tuyau flexible de 40 mètres de long relie la pompe à immersion au dispositif d'échantillonnage. Ce tube est en PVC alimentaire Plutone A, renforcé d'anneaux en acier. (IAEA (2006)) présente une étude datant l'eau au CFC-12 prélevée au sein de piézomètres en PVC de même type sans reporter de pollutions. L'acier n'entraine aucun risque de contamination.

Des contaminations dues à une pollution diffuse de zones industrielles ou urbaines est encore à envisager (IAEA (2006)). Un dixième du contenu en $CFC-12$ d'un frigo d'ancienne géné-

ration peut augmenter la concentration d'une aquifère d'un facteur 10 (Darling et al. (2012)). Dans le milieu agricole, une contamination au $CFC-11$ et $CFC-12$ peu encore provenir de certains pesticides ou d'eau d'irrigation contaminée. L'huile est un contaminent potentiel. De manière générale, le $CFC-113$ est moins affecté par des sources anthropogéniques. Les sources de SF_6 sont les équipement électriques de haut voltage, la fonte d'Al et de Mg ou les décharges (Darling et al. (2012)).

3.3 Bilan de la campagne de terrain

Le tableau de la figure 3.2, synthétise les travaux réalisés durant la campagne de terrain. Trois forages ont été réalisés à des profondeurs de 20, 23 et 38 m, avec échantillonnage de carottes de sol remaniées tous les 50 cm.

Pour la parcelle à Ottignies, la machine de carottage *Geoprobe* n'ayant pas réussi à atteindre la nappe à une profondeur évaluée à 25 m, un puit situé à 385 m du forage a été échantillonné pour analyse NO_3^-, ^3H, $CFCs$ et SF_6. De même pour la parcelle en Hesbaye, dont la nappe s'est révélée plus profonde que les estimations disponibles pour la région, un piézomètre de la Compagnie Liégeoise des Eaux situé à 790 m en aval a été échantillonné. En plus de l'échantillonnage de la nappe sous la parcelle de Court-St-Etienne, nous avons échantillonné un puit à 343 m de la parcelle pour comparaison. Les caractéristiques de ces ouvrages sont reprises à la figure 3.3.

FIGURE 3.2 – Synthèse de la campagne de terrain

Parcelle	***P_SdB_OLLN***	***P_SdB_CSE***	***P_Hesbaye***
Profondeur nappe	~25m	21.5m	~40-45m
Profondeur forage	20m	23m	38m
Echantillonnage nappe			
NO_3	puits	parcelle + puits	piézomètre
^3H	puits	parcelle + puits	piézomètre
CFCs/SF_6	puits	puits	piézomètre

FIGURE 3.3 – Caractéristiques des ouvrages d'échantillonnage des aquifères

Ouvrage	**Distance au forage (m)**	**Altitude au forage (m)**	**Altitude à l'ouvrage (m)**	**Hauteur piézométrique (m)**	**Niveau d'eau (m)**	**Profondeur ouvrage (m)**	**Profondeur crépine (m)**
Puits OLLN	385	113	112	91	29-30 (moy 2013-2014)	65	inconnue
Puits CSE	343	142	142	126	16 (Mattern, 2009)	42	inconnue
Piezo HesB-F3	790	147	142	109	33 (07/07/2014)	56	inconnue

Chapitre 4

Analyses préliminaires

4.1 Résultats analytiques

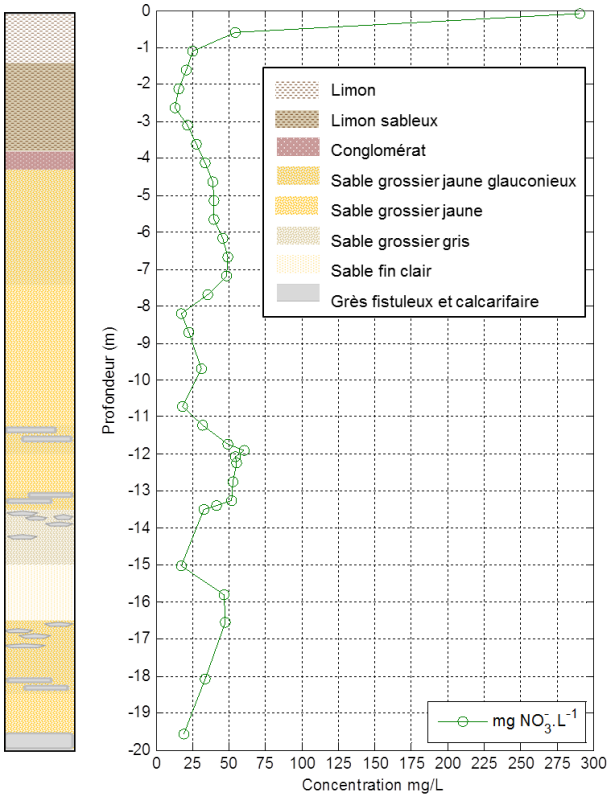


FIGURE 4.1 – Profil de concentration totale en NO_3^- (Parcelle P_SdB_OTT)

Les figures 4.1, 4.2 et 4.3 présentent les résultats d'analyses nitrate le long des profils de sol. Les profils exprimés en concentration nitrique totale sont issus de la méthodologie explicitée plus haut (équation 3.1). Les profils lithologiques sont établis à partir d'observations qualitatives des carottes solides.

Dans ce rapport nous ferons référence à ces profils nitrates suivant différentes unités. La norme de potabilité de l'eau fixée par l'OMS s'exprime en mg de nitrate par litre d'eau

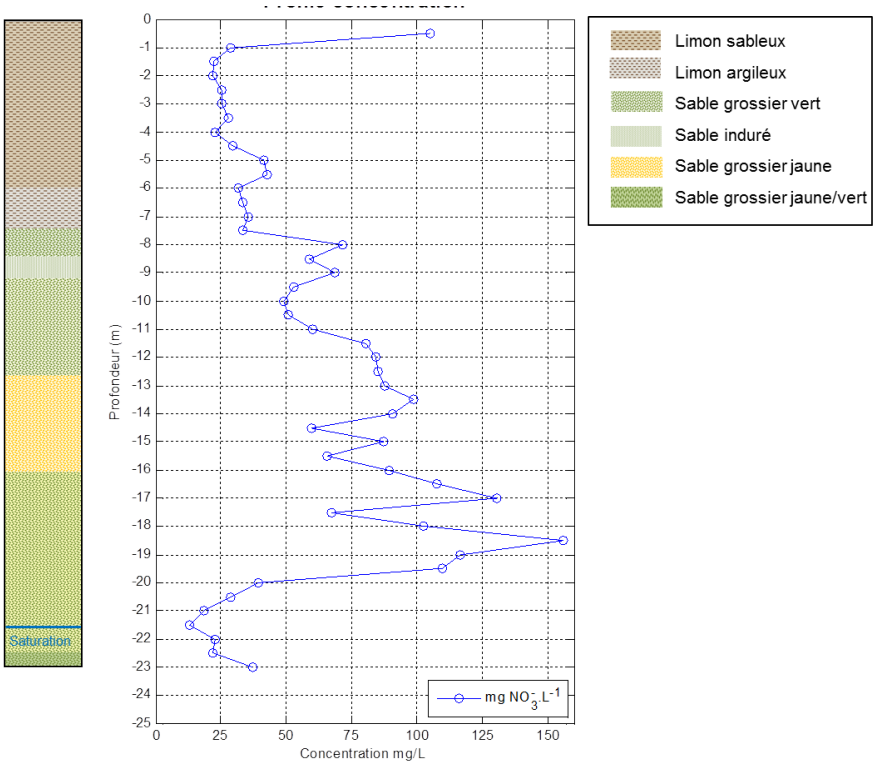


FIGURE 4.2 – Profil de concentration totale en NO_3^- (Parcelle P_SdB_CSE)

($mgNO_3^-.L^{-1}$). Les APL s'expriment en kg d'azote nitrique par hectare sur un horizon de 90 cm ($kgN-NO_3^-.ha^{-1}$).

La conversion entre $x\,kg.ha^{-1}$ et $y\,mg.L^{-1}$ nécessite la connaissance du volume d'eau $V_i\,[L]$ présent dans le volume de sol de 1 ha $[10^4\,m^2]$ multipliée par l'épaisseur $z_i\,[m]$ de l'horizon i considéré (équation 4.1). θ_i étant la teneur en eau de l'horizon i.

$$y\,[mg.L^{-1}]\frac{V_i\,[L]}{10^6\,[mg]} = x\,[kg.ha^{-1}] \tag{4.1}$$

$$V_i = \theta_i\,z_i\,10^4\,10^3\;[L] \tag{4.2}$$

Le passage d'une quantité x d'azote nitrique $N-NO_3^-$ ($M = 14\ g.mol^{-1}$) en une quantité y de nitrate NO_3^- ($M = 62\ g.mol^{-1}$) se fait par multiplication de la quantité d'azote nitrique par le rapport de leurs masses molaires M respectives. Ce rapport vaut 4.43.

$$y\,[mg\,NO_3^-] = x\,[mg\,N-NO_3^-]\,\frac{14+48}{14} \tag{4.3}$$

Les profils nitriques exprimés en $kgN-NO_3^-.ha^{-1}$, $kgNO_3^-.ha^{-1}$, $mgN-NO_3^-.L^{-1}$ et $mgNO_3^-.L^{-1}$ sont repris à l'annexe 9 pour les 3 parcelles.

Les profils granulométriques, de teneur en eau et des éléments majeurs adsorbés sur le complexe d'échange sont repris en annexe 9.

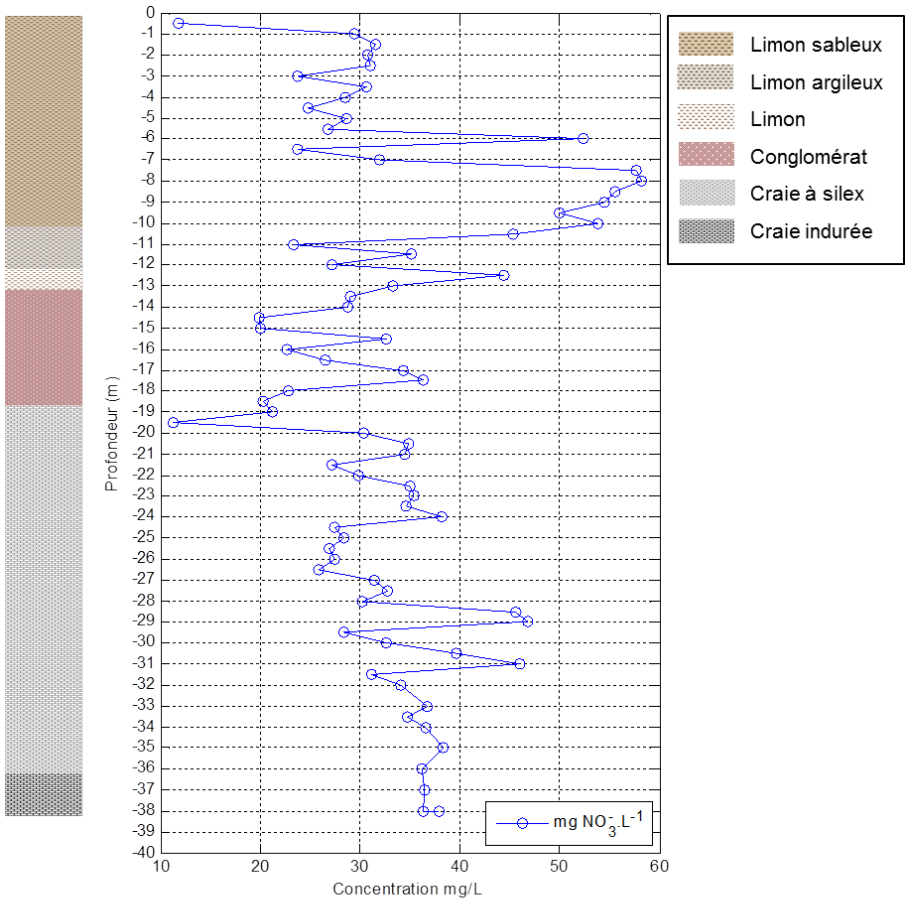


FIGURE 4.3 – Profil de concentration totale en NO_3^- (Parcelle $P_Hesbaye$)

4.2 Analyse statistique des historiques azotés en surface et en profondeur

Une première observation intéressante des résultats analytiques est l'observation de la tendance des profils nitrates, dont la teneur semble augmenter avec la profondeur, alors que les APL actuels sont à la baisse par rapport aux APL historiques (Section 2.4).

Nous tentons ici de mettre en évidence une tendance significative entre l'évolution de l'APL ces 12 dernières années et les profils de nitrates en profondeur sous le premier mètre de sol. La figure 4.4 synthétise les paramètres des régressions linéaires réalisées pour chaque parcelle. Les séries temporelles des APL sont exprimées en $[kgN - NO_3^-.ha^{-1}]$ sur 90 cm (y) en fonction du temps (x1 $[jours]$). Les séries spatiales des masses d'azote nitrique sont exprimées en $[kgN - NO_3^-.ha^{-1}]$ par horizon de 50 cm (y) en fonction de la profondeur (x1 $[m]$). La *p-valeur* du régresseur indique la présomption à rejeter l'hypothèse nulle de non significativité.

Les tendances des APL pour les 3 parcelles évaluées annuellement depuis 2002-2003 sont à la baisse au cours du temps avec une faible significativité ($p\text{-}valeur < 0{,}1$). L'évolution des

volumes de nitrate avec la profondeur augmente par contre avec une claire significativité (*p-valeur* $< 0{,}05$). Cette tendance étant particulièrement marquée pour la parcelle en Hesbaye.

Ce résultat rend compte de l'efficacité du PGDA et de l'intérêt de l'indicateur APL comme mesure de l'importance de la charge nitrique lessivée en profondeur.

4.3 Bilans de masse

Nous envisageons ici une approche par bilan de masse afin d'évaluer un premier temps de transfert pour atteindre les profils hydriques et nitriques tels qu'ils sont observés aujourd'hui.

Au vu des profils de teneur en eau volumique présentés pour chaque parcelle à la section 4.1 (Figures 9.8, 9.9 et 9.10, Annexe 9) nous pouvons déduire un volume d'eau total sur chaque profil de sol (Figure $4.5^{(2)}$).

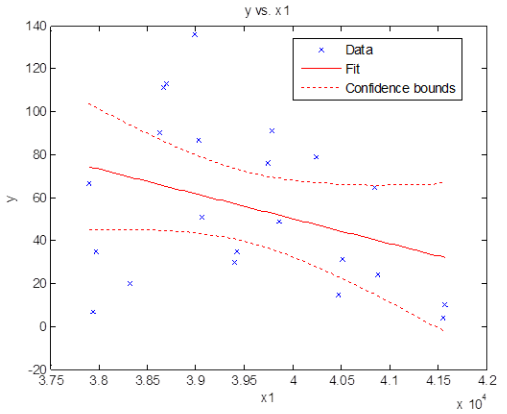
En fonction des données météorologiques locales récoltées entre 2002 et 2014 par l'asbl *Pameseb* pour la station de Louvain-la-Neuve (station 18), nous pouvons considérer une infiltration journalière moyenne i_{moy} par mètre carré sur les parcelles de 0.6254 $mm.j^{-1}$ (équation 4.4, Figure $4.5^{(5)}$). Ce qui correspond à une infiltration annuelle par hectare $I_{annuelle}$ de $2.28\,10^6 L.ha^{-1}$ (équation 4.5, Figure $4.5^{(6)}$).

$$i_{moy} = \frac{\sum_{j=1}^{12*365} (P_j - ET0_j)\,[mm]}{12 * 365\,[j]} = 0.6254\,mm.j^{-1} \tag{4.4}$$

$$I_{annuelle} = 10^4 \int_{t=0}^{365} i_{moy}\,\mathrm{d}t\ [mm.ha^{-1}] \tag{4.5}$$

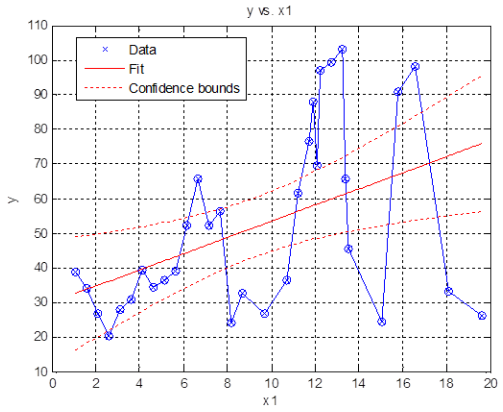
Un premier temps de transfert $T_H^{(7)}$ en nombre d'années peut être évalué en divisant le volume hydrique totale M_H du profil par le volume d'infiltration annuel $I_{annuelle}$ (Figure $4.5^{(7)=(2)/(6)}$). La profondeur du profil sous le premier mètre de sol $z_{sous-sol}^{(1)}$ divisée par le temps de transfert T_H calculé donne une vitesse de transfert hydraulique $v_H^{(8)}$ estimée pour le remplissage du profil jusqu'à la teneur en eau actuelle.

Pour la parcelle *P_SdB_CSE* par exemple, au vu de la teneur en eau volumique actuelle (Figure 9.9, annexe 9), nous estimons un premier temps de transfert hydraulique de 14 ans pour une infiltration annuelle de $2.28\,10^6 L.ha^{-1}.an^{-1}$. Ce qui correspond à une vitesse de percolation moyenne de 1,57 $m.an^{-1}$ pour le remplissage des 22 m de profil non saturés. Ces résultats sont à comparer à (Mattern (2009)) qui évalue des temps de transfert de l'eau vers l'aquifère des sables du Bruxellien variant entre quelques mois et plus de 15 ans, associés à des vitesses de percolations verticales de 1,7 à 28 $m.an^{-1}$. Notre estimation par bilan de masse ne prend pas en compte les écoulements préférentiels et correspond aux estimations minimales de (Mattern (2009)).



	Estimate	SE	tStat	pValue
(Intercept)	27.98	4.8839	5.7291	2.98E-06
x1	0.86	0.4643	1.8471	0.0746

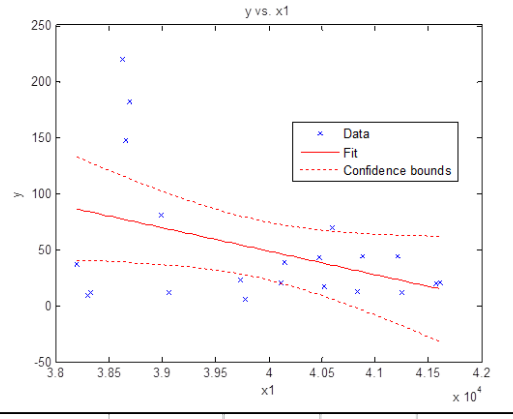
Tendance de l'APL



	Estimate	SE	tStat	pValue
(Intercept)	30.12	8.7528	3.4414	1.72E-03
x1	2.33	0.8321	2.8060	0.0087

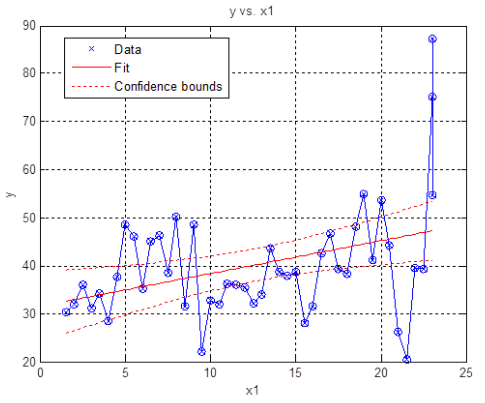
Tendance du profil des nitrates

(a) Parcelle P_SdB_OTT



	Estimate	SE	tStat	pValue
(Intercept)	884.93	435.0200	2.0342	5.61E-02
x1	-0.02	0.0109	-1.9174	0.0703

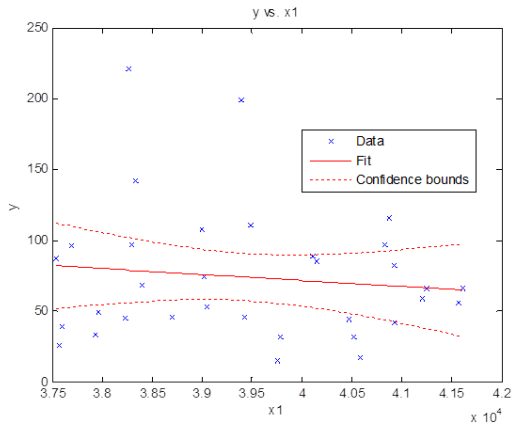
Tendance de l'APL



	Estimate	SE	tStat	pValue
(Intercept)	31.58	3.5986	8.7750	3.20E-11
x1	0.68	0.2513	2.7153	0.0094

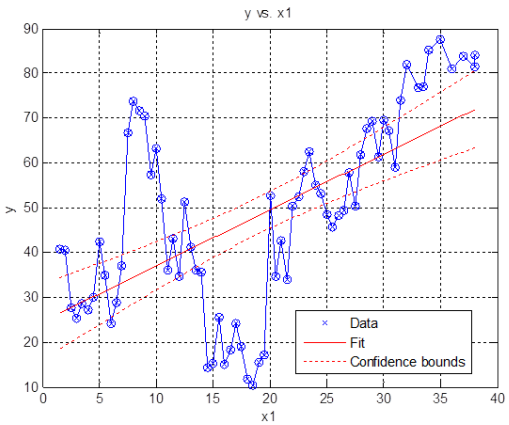
Tendance du profil des nitrates

(b) Parcelle P_SdB_CSE



	Estimate	SE	tStat	pValue
(Intercept)	27.98	4.8839	5.7291	2.98E-06
x1	0.86	0.4643	1.8471	0.0746

Tendance de l'APL



	Estimate	SE	tStat	pValue
(Intercept)	24.57	4.2712	5.7523	2.29E-07
x1	1.25	0.1982	6.2933	2.5943E-08

Tendance du profil des nitrates

(c) Parcelle P_SdB_Hesbaye

FIGURE 4.4 – Régressions linéaires de l'APL en fonction du temps et des concentrations en nitrate en fonction de la profondeur

	Paramètre	Formule	P_SdB_Otti	P_SdB_CSE	P_Hesbaye	Unités
(1)	$z_{sous\text{-}sol}$, profondeur du profil		19	22	37	m
(2)	M_H, volume hydrique totale		35.22	32.11	76.84	10^6 L/ha
(3)	M_N, Masse N-NO_3^- totale		430.5	588	845.6	kgN/ha
(4)	Concentration N-NO_3^- moyenne	(3) / (2)	12.22	18.31	11.00	mg/L
(5)	i_{moy} d'infiltration journalière		0.63	0.63	0.63	mm/j
(6)	$J_{annuelle}$ infiltrée sur 1 ha en 1 an		2.28	2.28	2.28	10^6 L/ha.an
(7)	T_H, Temps de transfert hydraulique estimé	(2) / (6)	15.43	14.07	33.66	années
(8)	v_H, Vitesse de transfert hydraulique estimée	(7) / (1)	1.23	1.56	1.10	m/an
(9)	Concentration NO_3^- eau d'infiltration					
	min		13.73	22.15	22.15	$mgNO_3^-$/L
	max		60.47	155.05	58.25	$mgNO_3^-$/L
	moy		37.10	88.60	40.20	$mgNO_3^-$/L
(10)	C_r, Concentration N-NO_3^- eau d'infiltration	(9) / 4.43				
	min		3.1	5	5	mgN/L
	max		13.65	35	13.15	mgN/L
	moy		8.38	20.00	9.08	mgN/L
(11)	J_N, Charge N-NO_3^- annuelle de l'infiltration	(6) * (10)				
	min		7.08	11.41	11.41	kgN/ha.an
	max		31.16	79.89	30.02	kgN/ha.an
	moy		19.12	45.65	20.72	kgN/ha.an
(12)	T_N, Temps de transfert NO_3^- estimé	(3) / (11)				
	max		60.84	51.52	74.09	années
	min		13.82	7.36	28.17	années
	moy		37.33	29.44	51.13	années
(13)	v_N, Vitesse de transfert NO_3^- estimée	(12) / (1)				
	min		0.31	0.43	0.50	m/an
	max		1.38	2.99	1.31	m/an
	moy		0.84	1.71	0.91	m/an

FIGURE 4.5 – Transferts hydrauliques et nitriques estimés sur le profil total par bilan de masse

De même pour la descente des nitrates, nous pouvons tirer des profils de concentration nitriques présentés à la section 4.1 une masse totale d'azote nitrique M_N entre le premier mètre sous la surface du sol z_1 et le toit de la nappe z_{profil} (équation 4.6 ; Figure $4.5^{(3)}$) ainsi qu'une concentration C_r minimale et maximale des lixiviations sous le profil de sol (Figure $4.5^{(9)}$) en $mgNO_3^-.L^{-1}$ et $^{(10)}$ en $mgN - NO_3^-.L^{-1}$).

$$M_N = \int_{z=z_1}^{z_{profil}} C_r(z)\,\frac{V_i}{10^6}\,\mathrm{d}z \;\; [kgN - NO_3^-.ha^{-1}] \tag{4.6}$$

$$V_i = \theta_i\, z_i\, 10^4\, 10^3\; [L] \tag{4.7}$$

Nous observons sur le profil nitrique de la parcelle P_SdB_CSE un volume total de 588 $kgN - NO_3^-.ha^{-1}$ pour des teneurs variant entre 5 $mgN - NO_3^-.L^{-1}$ en surface et 35 $mgN - NO_3^-.L^{-1}$ en profondeur. Ces concentrations peuvent être associées à des APL historiques plus élevés dans le passé et plus faibles ces dernières années dans le cadre de l'application du PGDA (section 4.2). Considérant ces concentrations azotées minimales et maximales et l'intensité d'infiltration explicitée plus haut, nous pouvons déduire une charge annuelle en azote

nitrique J_N, valant pour la parcelle P_SdB_CSE 11.41 $kgN - NO_3^-.ha^{-1}.an^{-1}$ dans le cas d'une percolation de concentration minimale et 79.89 $kgN - NO_3^-.ha^{-1}.an^{-1}$ dans le cas d'une percolation de concentration maximale (équation 4.8 ; figure 4.5$^{(11)}$).

$$J_{Nmin} = I_{annelle} * min(C_r) \ ; \ J_{Nmax} = I_{annelle} * max(C_r) \tag{4.8}$$

La masse nitrique totale $M_N^{(3)}$ du profil divisée par la charge annuelle J_N donne un temps de transfert T_N minimal et maximal pour le remplissage du volume d'azote total retrouvé jusqu'au toit de la nappe (Figure 4.5$^{(12)}$. Une vitesse de transfert v_N est alors estimée par le rapport entre la profondeur du profil $z_{sous-sol}$ et le temps de remplissage T_N (Figure 4.5$^{(13)}$).

Les estimations minimales et maximales provenant des concentrations réelles retrouvées sur les profils nitriques tel que discuté à la section 4.2, nous pouvons les associer aux conditions antérieures au PGDA (APL élevé, charge azotée J_N maximale, temps de transfert minimal et vitesse de transfert maximale) ou postérieures au PGDA (APL faible, charge azotée J_N minimale, temps de transfert maximal et vitesse de transfert minimal). En comparaison aux concentrations azotées $C_r^{(10)}$ retrouvées en profondeur de nos parcelles, le projet Lysimètre mené en Hesbaye recense des teneurs en azote nitrique de lixiviations récoltées à 2 mètres de profondeur variant entre 5.6 et plus de 60 $mgN - NO_3^-.L^{-1}$ (Deneufbourg et al. (2013)). Ces dernières concentrations étant exceptionnelles et entrainées par des cultures maraichères (carottes, poireaux, haricots, fèves) plus à risques.

Chapitre 5

Modélisation conceptuelle

Nous utilisons ici la théorie des fonctions de transfert linéaires (FT) pour analyser le lien entre les données historiques des pratiques culturales en surface et les résultats d'analyses actuelles des profils de sol en profondeur. Une FT est une fonction mathématique qui caractérise la dynamique d'un système en calculant le signal de sortie du système en fonction du signal appliqué à l'entrée.

La théorie des FT nous permet, dans un premier temps, d'étudier le lien entre les séries temporelles des APL évalués en surface annuellement depuis 2002-2003 et les séries spatiales mesurées sur les profils de sol en profondeur. Dans un second temps nous tenterons d'évaluer l'âge apparent de l'eau de la nappe sous nos parcelles d'étude par le suivi de traceurs hydrologiques isotopiques et gazeux.

La théorie des FT appliquée au transfert de solutés dans un sol nécessite l'acceptation de deux hypothèses. La **stationnarité** suppose que la fonction de densité de probabilité (fdp) du transfert des solutés n'est pas influencée par le temps ni la localisation spatiale sur le profil. L'hypothèse d'**ergodicité** suggère que la valeur moyenne d'une grandeur calculée de manière statistique pour un système composé d'un grand nombre de particules soit égale à la moyenne d'un grand nombre de mesures prises au sein de ce système dans le temps. Cette hypothèse, fondamentale pour un rapprochement théorie-expérimentation, est difficilement démontrable pour un système donné. Dans la pratique, cette hypothèse est validée à postériori si les prédictions sont acceptables(Selim and Ma (1998)).

De nombreux modèles sont disponibles pour caractériser le transfert des solutés vers la nappe à travers le sous-sol non saturé. Les plus courants sont les modèles piston flow (PM), exponentiel (EM), de dispersion (DM) ou encore des combinaison de ces modèles comme l'exponentiel-piston-flow (EPM) (Plummer et al. (2001)). Le modèle PM suppose une avancée de la masse d'eau à l'image d'un piston sans interaction majeure avec la matrice alors que les autres modèles supposent un comportement asymétrique du système. Le modèle DM est associé à un paramètre de dispersion P_D qui rend compte de l'échelle et de l'hétérogénéité de l'aquifère (Małoszewski and Zuber (1982)).

5.1 L'azote nitrique comme traceur conservatif

L'objectif est ici d'identifier une FT faisant le lien entre les concentrations en azote potentiellement lessivable en surface connues au cours du temps ($APL(t)$ en $kgN - NO_3^-.ha^{-1}$) et les concentrations en nitrate mesurées en profondeur jusqu'au toit de la nappe lors de cette étude ($C_r(z)$ en $mgN - NO_3^-.L^{-1}$).

5.1.1 Méthodologie

Il s'agit d'identifier une fonction qui rend compte de la réponse d'un volume de sol déterminé à l'application d'un soluté conservatif et non réactif, le nitrate, à sa surface.

Nous utilisons deux modèles en série. Le signal d'entrée des concentrations azotées en surface est d'abord transformé par une fonction de type *Dirac* qui rend compte du mouvement "piston flow" des nitrates avec le flux d'infiltration d'eau en profondeur. Un modèle rendant compte du comportement dispersif du sous-sol est ensuite appliqué au signal de sortie des concentrations en profondeur par une fonction *log-normale*.

L'application des fonctions de transfert au signal entrant est réalisée par des intégrations de convolution calculées numériquement. Le résultat $y(t)$ de la convolution de deux fonctions $h(t)$ et $x(t)$ correspond à l'intégration de la surface de chevauchement de la fonction h qui "glisse" sur la surface de la fonction x (équation 5.1). La convolution d'un signal en surface avec une fonction de transfert de type *Dirac* $\delta(t)$ centre le signal en surface sur la fonction $\delta(t)$, sans autre transformation, et permet ainsi de représenter physiquement un processus *piston-flow* McDonnell (2002).

$$y(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} h(t-\tau)\, x(t)\, \mathrm{d}\tau \tag{5.1}$$

Le temps de transfert total des nitrates sera donné par la somme des temps de transferts liés aux deux modèles en série.

Signal d'entrée des concentrations en surface Considérons l'application d'un soluté en surface d'un volume de sol. Le soluté est lessivé en profondeur par un flux constant et sa concentration est mesurée à une profondeur superficielle z au cours du temps. La fraction de soluté arrivée en z entre I et ΔI donne pour la profondeur z la probabilité d'arrivée d'une molécule appliquée en surface après une infiltration ΔI. L'évolution de la concentration dans le flux de drainage en z donne ainsi la fonction de densité de probabilité de temps de transfert du soluté $f(z, i)$ en fonction de I. ΔI étant fixé à un pas de 0.6254 $mm.j^{-1}$. Le flux de concentration superficiel $C(0, I)$ est issu des analyses historiques de l'APL de la parcelle. L'APL renseigne la quantité d'azote nitrique par hectare sur une profondeur de 90 cm. En fonction de la teneur en eau volumique hivernale de la parcelle,

l'APL est divisé par un facteur K afin d'obtenir la quantité d'azote nitrique pour 1 litre d'eau du sol. La concentration à la profondeur z d'un tel système est alors donné par l'équation 5.2 (Schimming (1992)). Nous modélisons la fonction de transfert $f(z,i)$ par une fonction *Dirac* $\delta(i)$ qui centre la fonction des concentrations superficielles sur I et rend compte du processus *piston-flow* de ce premier modèle (équation 5.3.

$$C(z,I) = \int_{i=0}^{I} C(0, I-i)\, f(z,i)\, \mathrm{d}i \tag{5.2}$$

$$f(z,i) = \delta(I-i) = \left\{ \begin{array}{ll} 0 & si \quad I \neq i \\ 1 & si \quad I = i \end{array} \right\} \tag{5.3}$$

Signal de sortie des concentrations en profondeur. Ensuite, considérons un volume de sol dans lequel est présent un soluté au temps zéro, $C_r(z,0)$. La redistribution des concentrations lessivées par un flux constant sur le profil de sol est évaluée à différentes profondeurs après un temps t. La distribution de la concentration en soluté avec la profondeur donne alors la fdp de distance de transfert $f_r(z,I)$. La fonction de transfert générale du système est donné par l'équation 5.4.

$$C_r(z,I) = \int_{z'=0}^{z} C(z-z',0)\, f_r(z',I)\, \mathrm{d}z' \tag{5.4}$$

$$f_r(z', (\mu_I \theta_I)) = \frac{1}{z' \sigma_N \sqrt{2\pi}} exp(-\frac{(lnz' - \mu_I)^2}{2\sigma_I^2}) \tag{5.5}$$

Dans l'équation 5.4, le vecteur $C_r(z-z',0)$ des concentrations initiales du profil est issu du modèle *piston-flow* explicité plus haut (équation 5.2). La variable I est fixée au volume d'eau total du profil à la teneur en eau actuelle (équation 5.6), et la variable z évolue par horizons de 50 cm entre la profondeur 90 cm de l'APL et la profondeur totale du profil (z_{profil}).

$$I = \textstyle\sum_{z_i} \Theta_{zi}.z_i \; ; \quad z_i = \{-90 : -50 : -z_{profil}\}\,[mm] \tag{5.6}$$

Nous utilisons pour ce second modèle une FT log-normale (équation 5.5). Par une différence des moindres carrés, les paramètres μ et σ sont optimisés pour que la convolution du vecteur de sortie du modèle *piston-flow* avec la FT log-normale approche au mieux le profil des concentrations nitriques actuel observé en profondeur.

Après transformation exponentielle des paramètres de la FT log-normale optimisée (μ_{opt}, σ_{opt}), ils peuvent être interprétés en terme de vitesse de transfert des nitrates par rapport à l'avancée "piston-flow" supposée. Le temps de transfert t_{FT} d'un pic de concentration situé à la profondeur p vaut donc :

$$t_{FT} = \frac{I_{piston} + \mu_{opt}}{i}\,[jours] \tag{5.7}$$

où I_{piston} correspond au volume d'eau total de la surface à la profondeur p et $\frac{I_{piston}}{i}$ correspond au temps nécessaire au remplissage du volume d'eau du sol I_{piston} jusqu'à la profondeur p, considérant une avancée "piston-flow" et une infiltration i. $\frac{exp(\mu_{opt}}{i}$ correspond au temps supplémentaire pour la descente des nitrates jusqu'à la profondeur p par rapport à l'avancée constante "piston-flow" supposée.

La vitesse de transfert est alors donnée par l'équation 5.8.

$$v_{FT} = \frac{p}{t_{FT}} \; [m.jours^{-1}] \tag{5.8}$$

5.1.2 Résultats et interprétations

Le tableau 5.1 reprend les paramètres optimisés estimés des FT log-normales pour chaque parcelle. L'exponentielle des valeurs paramètres du modèle log-normal donne leur valeur en termes de flux d'eau drainé I $[mm]$. Après division par la vitesse d'écoulement moyenne et ajout des temps de transfert du modèle par piston (équation 5.7), le tableau 5.2 reprend les temps de transferts totaux vers l'aquifère estimés par les FT en jours et en années.

Parcelle	Paramètre	ln(P)	P
P_SdB_OTT	μ_{opt}	6.1085	449.68
	σ_{opt}	2.5423	12.71
P_SdB_CSE	μ_{opt}	5.7280	307.34
	σ_{opt}	2.4259	11.3124
P_Hesbaye	μ_{opt}	5.7477	313.48
	σ_{opt}	2.9161	18.4686

TABLE 5.1 – Paramètres optimisés des FT log-normales

Parcelle	$I_{piston}(mm)$	$t_{FT}(j)$	$t_{FT}(années)$
P_SdB_OTT	3522	6350.6	17.39
P_SdB_CSE	3211	5625.3	15.41
P_Hesbaye	4250*	7295.6	19.98

TABLE 5.2 – Estimation des temps de transferts par FT log-normales

La figure 5.2 illustre la fonction de transfert log-normale optimisée identifiée pour la parcelle de Court-St-Etienne à partir des vecteurs C_o et C_r (figure 5.1). La convolution du signal d'entrée C_o avec la FT est reprise à la figure 5.3. Ces 3 figures pour les parcelles d'Ottignies et de Hesbaye sont reprises en Annexe.

Suivant le modèle des fonctions de transfert appliqué à la parcelle de Court-St-Etienne, le temps de transfert nécessaire à l'atteinte du toit de la nappe à 23 m et associé à un volume d'eau total du profil non-saturé de 3211 $litres.m^{-2}$ (équation 5.9), vaut 5625 jours (équation 5.10) soit un temps de transfert de 15,41 années. Suivant le même raisonnement, le temps de transfert associé au pic de concentration observé à la profondeur $p = 18{,}5$ m et cumulant une teneur en eau I de 2200 litres vaut 4009 jours, soit 10,98 années.

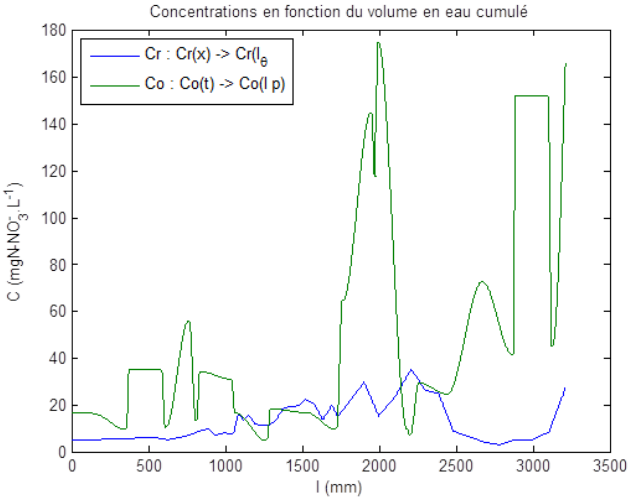


FIGURE 5.1 – Concentrations en surface (C_o) et en profondeur (C_r) en fonction de I (Parcelle P_SdB_CSE)

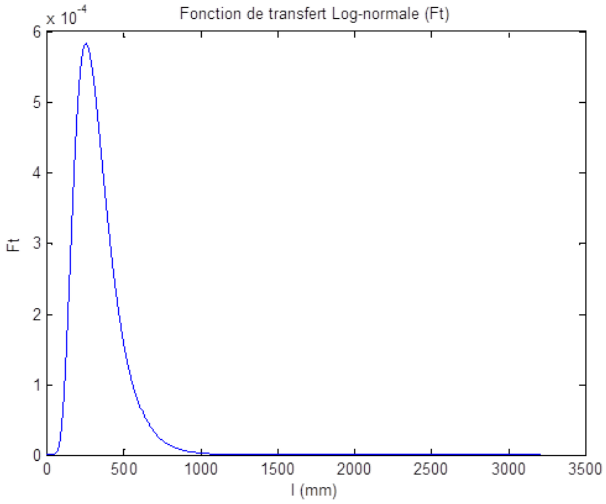


FIGURE 5.2 – FT log-normale

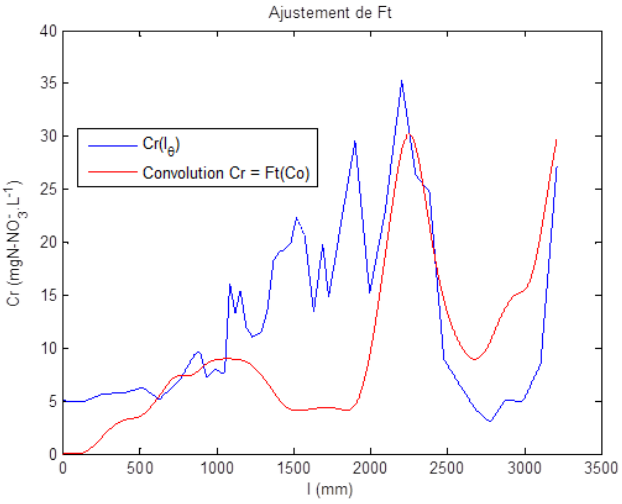


FIGURE 5.3 – Convolution C_o*FT

$$I_{CSE} = \sum_{z_i} \Theta_{zi}.z_i = 3211\,[mm]\ ; \quad z_i = \{-900 : -500 : -23000\}\,[mm] \tag{5.9}$$

$$t_{CSE} = \frac{3211 + 307,34}{i} = 5625,3\,[jours] \tag{5.10}$$

Ce modèle suppose pour la parcelle P_SdB_CSE que le pic APL de 220 $kgN.ha^{-1}$ survenu en 2005 contribue bien au pic de concentration retrouvé à 18,5 m. Résultat en accord avec l'approche par bilan de masse exposée plus haut. Au vu de la charge azotée moyenne annuelle J_N de 45,65 $kgN.ha^{-1}.an^{-1}$ évaluée pour cette parcelle (Figure 4.5), 9 années d'infiltration, entre octobre 2005 et juin 2014 équivalent aux 455 $kgN.ha^{-1}$ retrouvés entre la surface et le dessous du pic de concentration à la profondeur 18.5 m (équation 5.11).

$$9\,ans * J_N = 410\,kgN.ha^{-1} \cong 455\,kgN.ha^{-1} \tag{5.11}$$

Le modèle basé sur la théorie des FT évalue un temps de transfert plus long. Il ne tient en effet pas compte d'éventuels écoulements préférentiels ni de l'hétérogénéité du système poreux menant à une redistribution différentielle des charges azotées historiques.

5.2 Les traceurs de l'âge apparent de l'eau

L'âge d'une goutte d'eau de l'aquifère, ou son temps de résidence, est le temps écoulé entre son isolement du contact de l'atmosphère et sa date d'échantillonnage. Un grand nombre de traceurs hydrologiques ont été étudiés dans ce but. En traversant le milieu réel, leur suivi permet d'obtenir une information sur la dynamique du système (flux préférentiels, diffusion, dispersion, mélanges). Les techniques de datation de l'eau se basent sur la mesure de la désintégration radioactive d'un élément naturel ou sur la mesure de l'évolution de la concentration d'un gaz soluble dans l'eau.

Il s'agit d'estimer un âge *apparent* car en tout point du système hydrologique, les masses d'eau sont composées d'un mélange de molécules d'histoires et de temps de résidences différents. La difficulté demeure dans la justesse de l'estimation de la fonction d'entrée et du comportement conservatif du traceur environnemental choisi. Les isotopes de l'eau (^2H, ^3H, ^{18}O) sont des traceurs parfaits, constituants intrinsèques de la molécule d'eau. Ils témoignent de son comportement à travers le profil non saturé et saturé (Plummer et al. (2001)). Les traceurs gazeux (^{85}Kr, SF_6, $CFCs$,...) passent la zone vadose par diffusion et échangent avec l'eau d'infiltration avant de rejoindre la nappe. A travers le profil non saturé du sol, un certain contact avec l'atmosphère persiste en profondeur. En fonction de la tortuosité du milieu, les échanges avec l'air atmosphérique seront de plus en plus réduits. La zone de recharge de la nappe emprisonne

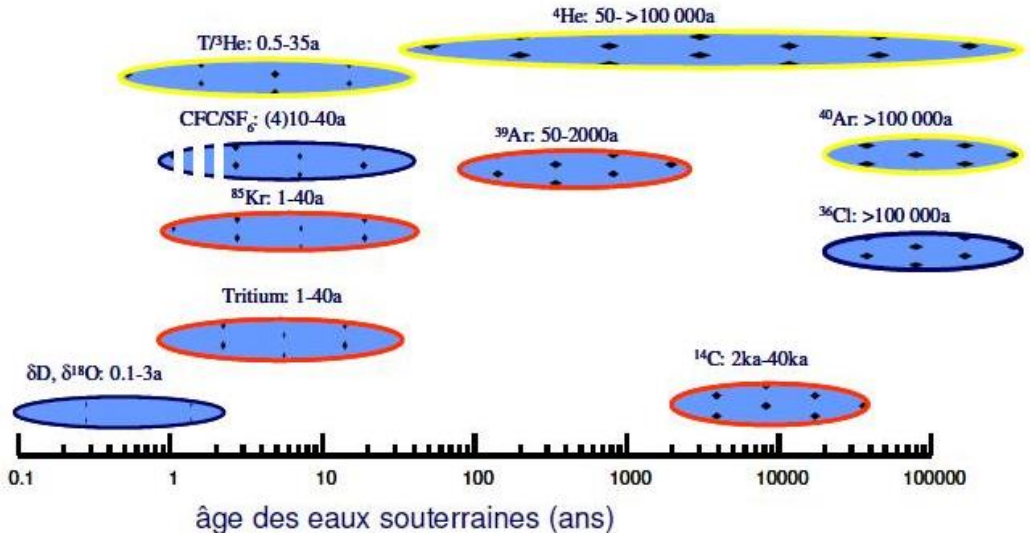


FIGURE 5.4 – Échelle de datation pour quelques éléments radioactifs ou gazeux

également des bulles d'air entrainant un contact prolongé avec l'atmoshère et pouvant mener à un biais dans les estimations (Schwientek et al. (2009)).

5.2.1 Méthodologie

La figure 5.4 reprend les traceurs les plus utilisés et leur capacité à situer des événements plus ou moins éloignés dans le temps en fonction de leur demi-vie ou de leur historique de concentration dans l'atmosphère. Pour l'étude de flux hydrologiques sur des périodes variant de 2 à 30-40 ans, les traceurs les plus adaptés sont le Tritium (^3H), isotope de l'hydrogène, les gaz $CFCs$ et SF_6, l'isotope 85 du krypton (^{85}Kr) et l'isotope 3 de l'hélium (^3He). Au vu de leur demi-vie plus courte, le Deutérium et l'Oxygène-18 sont utilisés pour dater des événements beaucoup plus proches dans le temps et pour l'identification de l'origine d'une eau. Ces isotopes ne seront pas suivi car au vu de la situation des parcelles d'étude, nous savons que les nitrates retrouvés proviennent de l'activité agricole.

5.2.1.1 Le Tritium, isotope radioactif de l'hydrogène

Les essais nucléaires des années 60' ont entrainés un pic de concentration très élevé en ^3H dans l'atmosphère menant à des teneurs diffuses en eau tritiée dans l'hydrosphère. L'eau tritiée a la même formule chimique que l'eau légère, H_2O, mais l'atome d'hydrogène est l'isotope ^3H légèrement plus lourd que l'hydrogène ^2H. C'est la forme la plus abondante du tritium dans les milieux naturels et les êtres vivants (Gariel (2009)). L'évolution des concentrations a été suivie dans le temps par de nombreux centres dans le monde. En fonction de l'activité historique des eaux de précipitation et de la demi-vie du ^3H, l'évaluation de l'activité tritiée d'une eau peut la situer dans le temps.

Évaluation d'une fonction de sortie : L'évaluation des teneurs en ^3H en différents horizons du profil non saturé peut permettre d'identifier le pic de concentration associé aux années

60' en profondeur et ainsi déterminer un temps de transfert de l'eau le long du profil (Arnaud and Baran (2009)). L'analyse de la teneur en eau tritiée demande le recueil de 1 à 1,5 litres d'eau par échantillon. Suivant la teneur en eau du profil de sol cela représente un volume de sol important, dont l'eau des pores doit être récupérée par *Lyophilisation* Tasneem et al. (2009). De manière plus courante un échantillon peut être simplement récupéré au toit de la nappe pour évaluer un âge moyen apparent au toit de l'aquifère.

Estimation d'une fonction d'entrée : Nous utilisons les mesures réalisées par le Centre de Recherche Public Henri Tudor au Luxembourg, celles-ci étant communément utilisées pour l'Europe centrale (Dávila et al. (2013)). (Arnaud and Baran (2009)) discute la difficulté de reconstitution du signal d'entrée des précipitations tritiées.

Au vu des teneurs enregistrées dans la série du Luxembourg et de la demi-vie du ^3H ($T_{1/2}$ = 12.32 ans), une eau infiltrée en 1963 aura en 2014 une activité de 186,32 UT. L'activité retrouvée décroit lorsqu'on s'éloigne du pic de concentration de 1963. L'activité actuelle d'une eau infiltrée dans les années 80' sera d'environ 9 UT. Une activité plus basse rend compte d'une eau infiltrée avant les essais nucléaires des années 60' ou après les années 80'. Un positionnement plus précis nécessite alors une évaluation précise du cycle naturel atmosphérique local du ^3H dans l'atmosphère pour les années 80' à nos jours.

Alors que nous nous éloignons du pic de concentration des années 60', la combinaison du ^3H avec l'analyse des gaz solubles $CFCs$ et SF_6 a été largement utilisée en hydrologie pour améliorer les interprétations.

5.2.1.2 Les gaz industriels $CFCs$ et SF_6

Les $CFCs$ (Chlorofluorocarbures) et le SF_6 (hexafluorure de soufre) sont des gaz anthropiques émis respectivement à partir des années 40' et 60' suite au développement de procédés de réfrigération, de conditionnement, d'aérosols et d'appareillages électriques. Le terme $CFCs$ fait ici référence à 3 molécules dérivées d'alcanes dont les atomes d'hydrogène ont été substitués par un nombre spécifique d'atomes de chlore et de fluore. Ils sont communément appelés $CFC-11$, $CFC-12$ et $CFC-113$.

Estimation d'une fonction d'entrée : Depuis leurs émissions, les teneurs atmosphériques en $CFCs$ et SF_6 sont suivies pour l'hémisphère Nord et l'hémisphère Sud. L'association des concentrations dissoutes des gaz avec les teneurs atmosphériques ambiantes sous des conditions de température, d'altitude et de salinité locale ont été évaluées via la loi d'Henry dans de nombreux travaux (Dávila et al. (2013)). La mesure de la concentration en $CFCs$ et SF_6 d'une eau d'infiltration au niveau de la nappe permet donc d'évaluer la date de son dernier contact avec l'atmosphère (IAEA (2006)). Les teneurs mesurées dans l'eau sont converties en

teneurs atmosphériques équivalentes puis comparées aux courbes de concentrations historiques atmosphériques (Figure 5.5).

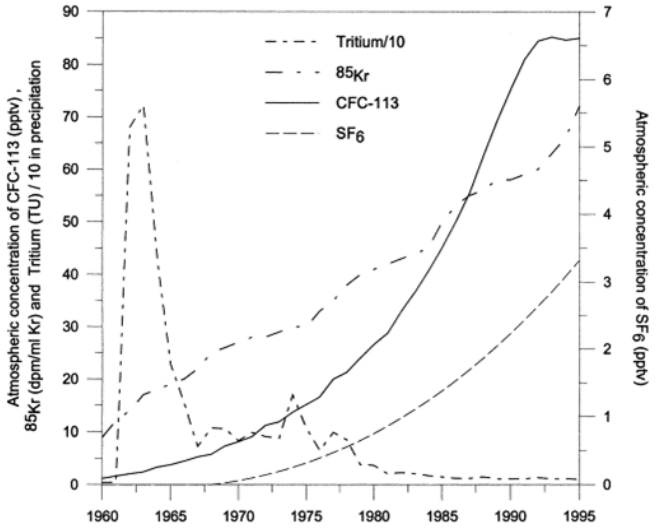


FIGURE 5.5 – Teneurs historiques en ^3H des précipitations et teneurs atmosphériques des gaz , SF_6, $CFC113$ et ^{85}Kr à Hof, Allemagne (Bauer et al. (2001))

Évaluation d'une fonction de sortie : L'enjeu de cette technique de datation est de parvenir à échantillonner l'eau de la nappe sans entrainer un nouveau contact avec l'atmosphère. Les gaz étant rapidement solubles dans l'eau, l'échantillon d'eau âgée serait instantanément polluée par les fortes teneurs atmosphériques actuelles. Il convient de respecter le dispositif expérimental présenté en section 3.2.2.

Les difficultés d'échantillonnage de cette technique de traçage renforce encore le besoin d'une approche multi-traceurs pour combiner les atouts de chacun et mettre en évidence les potentielles contaminations.

5.2.1.3 Étude multi-traceurs

Après une étude approfondie des traceurs hydrologiques adaptés à notre cas d'étude et des moyens matériels, temporels et financiers à notre disposition nous choisissons de suivre le traceur isotopique ^3H, les 3 type de $CFCs$ complémentaires et le SF_6.

Au vu du budget et du temps disponible pour l'analyse isotopique nous avons décidé de ne pas évaluer le profil ^3H dans son entièreté mais de privilégier une diversification du nombre de traceurs suivis au toit de la nappe. En effet, suite à l'expérience de nombreux projets français dans le cadre de la Directive Européenne "Nitrates", le Bureau national français de Recherche Géologique et Minière (BRGM) a aujourd'hui décidé de ne plus inclure dans leurs études régionales d'analyse tritium systématique tout le long du profil non saturé. Le coût unitaire et le

temps de comptage des particules β des échantillons au vu du risque de résultats non interprétables n'en vaut plus la peine (communication orale).

L'atout majeur des $CFCs$ et du SF_6 est leur teneur croissante dans l'atmosphère depuis le début de leurs émissions dans le années 40' et 60', bien qu'une légère diminution est observée pour les $CFCs$ depuis leur interdiction en 1990 (Figure 5.5). L'évolution des teneurs étant croissante dans le temps, une contamination diffuse ou une contamination induite lors de l'échantillonnage introduit un biais dans un âge estimé plus récent que la réalité. Ce qui coïncide avec notre objectif d'étude. L'âge estimé des pollution suivant les $CFCs$ et SF_6 peut être interprété comme un âge minimum (IAEA (2006)).

Un biais d'estimation des âges suivant les différents traceurs est inévitable. La datation au ^3H, constituant intrinsèque des molécules d'eau se base sur la teneur établie lors de la formation des précipitations dans l'atmosphère. Le compteur ^3H évalue l'âge de l'eau par rapport au point d'infiltration en surface alors que les traceurs gazeux continuent à échanger avec l'air des pores du sol sur le profil non saturé. Il y a donc un biais potentiel dans l'âge estimé par le traceur gazeux. Celui ci dépend du coefficient de diffusivité du gaz, de sa solubilité dans l'eau et de la teneur en eau du profil non saturé (Weeks et al. (1982), Cook and Solomon (1995)).

Darling et al. (2005) étudie ce phénomène en sous-sol crayeux et montre expérimentalement une diffusion du SF_6, $CFC-11$ et $CFC-12$ jusqu'à 25 m en un an. Pour des milieux moins fracturés, comme dans les sables du Bruxellien, la diffusion sera par contre beaucoup plus lente. Suivant la loi de Fick (équation 5.12) nous calculons le flux théorique F_{gaz} des gaz $CFC-12$ et SF_6 dans des conditions standards pour différentes teneur en eau du profil.

$$F_{gaz} = -D_s \frac{\partial gaz}{\partial z} \; [\mu mol.m^{-2}.s^{-1}] \tag{5.12}$$

D_s est la diffusivité du gaz dans le sol $[m^2.s^{-1}]$, gaz la teneur en gaz dans l'atmosphère en $\mu mol.m^{-3}$ et $\frac{\partial gaz}{\partial z}$ le gradient verticale du gaz dans le sol, supposé linéaire de la surface au toit de la nappe.

Le gradient est fixé par la mesure atmosphérique du CFC et du SF_6 évaluée pour l'hémisphère nord, et une teneur supposée nulle à la profondeur du profil. Les mesures atmosphériques sont données par l'$AGAGE$ (Advanced Global Atmospheric Gases Experiment) et issues d'une moyenne arithmétique des teneurs mensuelles enregistrées à une latitude moyenne en Irlande pour 2012 (Prinn and McCulloch (2000)).

La diffusivité du gaz dans le sol D_s est fonction de sa diffusivité dans l'air D_0 et du facteur de tortuosité des gaz ε (équation 5.13). Le tableau 5.3 donne les diffusivités du $CFC-12$ et du SF_6 retrouvées dans la littérature. La diffusivité dans l'air du $CFC-12$ est donnée par Schwarzenbach et al. (2003) à 298 K. La diffusivité du SF_6 est donné par Kestin (1984) à 373 K. Nous corrigeons ces diffusivités aux températures de références $T_{réf}$ pour obtenir une diffusivité à 298 K a l'aide de l'équation 5.14 (Davidson and Janssens (2006), Schriver-Mazzuoli (2009)).

gaz	$T_{réf}\,(K)$	$D_{0_{T_{réf}}}$	$D_{0_{283K}}$	D_s
$CFC-12$	298	$8,13\,10^{-6}$	$7,42\,10^{-6}$	$2,06\,10^{-7}$
SF_6	373	$1,50\,10^{-5}$	$9,25\,10^{-6}$	$4,36\,10^{-7}$

TABLE 5.3 – Diffusivités des traceurs gazeux dans un sol sableux $[m^2.s^{-1}]$ (Parcelle P_SdB_CSE)

$$D_s = D_0\,\varepsilon \tag{5.13}$$

$$D_{0_{283K}} = D_{0_{T_{réf}}}\,(\frac{283}{T_{réf}})^{1.75} \tag{5.14}$$

Différents modèles existent pour le calcul de la tortuosité ε (Pingintha et al. (2010), Wiaux et al. (2014)). Nous sélectionnons un modèle simple, dépendant uniquement de la granulométrie (équation 5.15, Moldrup et al. (1999)) où ϵ est la porosité occupée par l'air $[m^3.m^{-3}]$, Φ est la porosité totale $[m^3.m^{-3}]$ et S est le pourcentage de sol dont la granulométrie $> 2\ \mu m$ ((100 - $\%argile$)/100).

$$\varepsilon = \Phi^2\,(\frac{\epsilon}{\Phi})^{2.9\,S} \tag{5.15}$$

Les flux de gaz sont obtenus en $\mu mole.m^{-2}.s^{-1}$ par la loi de Fick. Nous convertissons ces flux en volume par $m^{-2}.s^{-1}$ ($m^3.m^{-2}.s^{-1}$) à l'aide de la loi des gaz parfaits (équation 5.16) afin d'estimer un temps de transfert entre la surface et la profondeur de recharge de la nappe.

$$V = \frac{n\,R\,T}{P} \tag{5.16}$$

où n est le nombre de moles, R est la constante universelle des gaz parfait (8,3144621 $J.K^{-1}.mol^{-1}$), T la températures en Kelvins, et P la pression du gaz en Pascales (1 atmosphère = 101325 Pa).

Pour une nappe à 21,5 m de profondeur et un sous-sol de type sableux de teneur en eau moyenne de 0,2 $m^3.m^{-3}$ comme à Court-St-Etienne, les temps de diffusion du CFC et du SF_6 sont de l'ordre de 10^{11} et 10^{12} années (Tableau 5.6).

Si la diffusion du gaz se fait parfaitement jusqu'à une nappe peu profonde, le traceur gazeux estime l'âge de la recharge au toit de la nappe en excluant le temps de percolation à travers la zone non saturée. Si le profil est humide et la tortuosité importante, l'âge sera représentatif du point d'infiltration en surface et sera donc plus important. L'estimation de l'âge par les traceurs gazeux est donc une estimation minimale de l'âge de l'eau de la recharge par rapport à l'estimation via le ^3H. Mais en sables du Bruxellien, les temps de diffusions sont si faibles que nous pouvons considérer que l'échange avec l'atmosphère stoppe à la surface du profil.

	CFC12	SF6
	Pression en surface	
ppt (picomole/mole)	527	7.59
ppm (micromol/mole)	5.27E-04	7.59E-06
micromol/m^3	2.23E-02	3.21E-04
	Gradiant en profondeur	
mole/m^4	-1.04E-03	-1.49E-05
	Flux vers la profondeur	
F (micromole/m^2.s)	2.14E-10	3.85E-12
m^3/m^2.s	4.98E-18	8.93E-20
	Temps de transfert	
t (secondes)	4.32E+18	2.41E+20
t (années)	1.37E+11	7.63E+12

FIGURE 5.6 – Transfert des traceurs gazeux en profondeur dans un sous-sol sableux (Parcelle P_SdB_CSE)

La combinaison des traceurs $CFCs$, SF_6 et ^3H pourrait encore être améliorée par le suivi de l'isotope 85 du krypton et par le ^3He, produit fille de la désintégration du ^3H. Cependant, le suivi de ces traceurs complique encore la technique d'échantillonnage, demande d'avantage de matériel et un temps de comptage des désintégrations non conciliable avec cette première étude.

Le *Gas-Tracer-Interpretation Toolkit* (GTI) : Nous utilisons le Toolkit GTI permettant une analyse croisée des traceurs hydrologique d'intérêt pour la mise en évidence d'éventuelles dégradations ou contaminations. Le Toolkit intègre un calcul d'incertitude, il est développé en Microsoft Excel VBA 2007/2010 et fournit librement par (Dávila et al. (2013)).

Le Toolkit intègre les principales fonctions de transfert représentative de la dynamique des aquifères (Modèle par Piston (PM), exponentiel (EM), exponentiel-piston (EPM), de dispersion (DM), etc.) Les courbes de temps de résidence de références aux conditions de pression, température et salinité spécifiées sont modélisées à partir de 10 temps de recharge donnés. Nous travaillons à partir de courbes réalisées pour des temps de résidence depuis 2014 de 10, 20, 30, 40, 50, 60, 70, 80, 90, 100 ans. Une représentation graphique des résultats d'analyse de combinaisons de traceurs en vis-à-vis des fonctions de transfert dessinées pour les 5 modèles intégrés (PM, EM, EPM, DM, GM) permet d'identifier le modèle de transfert le plus adapté à l'aquifère étudiée. La méthodologie détaillée étant décrite par (Dávila et al. (2013)).

Pour l'interprétation des analyses de teneur en $CFCs$ et SF_6, nous utilisons comme fonction d'entrée les teneurs historiques enregistrées pour l'hémisphère Nord. Les mesures réalisées par le Centre de Recherche Public Henri Tudor au Luxembourg sont valorisées pour la comparaison de nos analyses ^3H. Les conditions locales de diffusions des gaz suivant la loi d'Henry sont fixées pour chaque site à l'altitude locale de la parcelle considérée, à une température de recharge de la nappe de $10\,°C$ et une salinité de 0.2%. L'incertitude sur la température et la salinité de la

recharge est envisagées. Des variations de +-30 m de l'altitude de la recharge étant très peu influentes sur l'âge final estimé, une altitude moyenne de 130 m est fixée pour les 3 échantillons en *SdB*. L'altitude la parcelle en Hesbaye est de 150 m.

5.2.1.4 Échantillonnage

Comme discuté à la section 3.3, seul le forage à Court-St-Étienne a atteint la nappe. Nous disposons donc de 4 échantillons d'eau de la nappe : 3 sont pris dans les ouvrages à proximité de chaque parcelle et 1 dans l'eau de forage de la parcelle P_SdB_CSE.

5.2.2 Résultats analytiques

Les tableaux 5.4, 5.5 et 5.6 reprennent les résultats d'analyses des échantillons d'eau souterraines récoltées sous les parcelles d'étude [1]. La position exacte des ouvrages pour les échantillons marqués d'une étoile (*) est présentée dans la partie 2. Seul l'échantillon D provient directement du forage réalisé lors du profil en profondeur sur la parcelle de Court-St-Etienne. La hauteur d'eau au dessus de la pompe à immersion n'étant pas suffisante au toit de la nappe, la méthodologie pour le prélèvement d'eau pour analyse $CFCs$ et SF_6 n'avait pas abouti (Cfr. Section 3.3).

Éch.	Parcelle	$CFC-11$	$CFC-12$	$CFC-113$	SF_6
A	P_SdB_OLLN*	0.17 +- 0.05	0.07 +- 0.05	0.01 +- 0.05	0.10 +- 0.10
B	P_SdB_CSE*	0.29 +- 0.05	0.31 +- 0.05	0.02 +- 0.05	0.10 +- 0.10
C	$P_Hesbaye*$	10 +- 2.00	3.20 +- 0.20	14.00 +- 3.00	1.50 +- 0.20
D	P_SdB_CSE	/	/	/	/

TABLE 5.4 – Résultats d'analyses laboratoire des teneurs en CFCs (pmol/L) et SF_6 (fmol/L)

Éch.	Parcelle	^3H
A	P_SdB_OLLN*	0.70 +- 0.70
B	P_SdB_CSE*	2.30 +- 0.70
C	$P_Hesbaye*$	5.90 +- 0.70
D	P_SdB_CSE	5.60 +- 0.70

TABLE 5.5 – Résultats d'analyses laboratoire des activités en ^3H (UT)

Éch.	Parcelle	NO_3^-
A	P_SdB_OLLN*	< 1.6
B	P_SdB_CSE*	< 1.6
C	$P_Hesbaye*$	20.8
D	P_SdB_CSE	120.5

TABLE 5.6 – Résultats d'analyses laboratoire des teneurs en nitrates (mg/L)

1. ***fmol*** : 1 *femtomole* = 10^{-15} mole ; ***pmol*** : 1 *picomole* = 10^{-12} mole (S.I.)

Les activités tritium sont faibles mais à priori cohérentes avec d'autres études de datation récentes menées en France et en Belgique (Arnaud and Baran (2009), Orban et al. (2006)).

Pour l'interprétation des concentrations des traceurs en profondeur, nous considérons systématiquement un transfert des infiltrations vers la nappe de type piston. Après transformation des teneurs en $CFCs$ et SF_6 en teneurs équivalentes atmosphériques aux conditions de diffusions locales, nos résultats sont comparés aux courbes de concentrations théoriques des âges de l'eau suivant un transfert "piston-flow" en profondeur (Figure 5.7, 5.8 et 5.9).

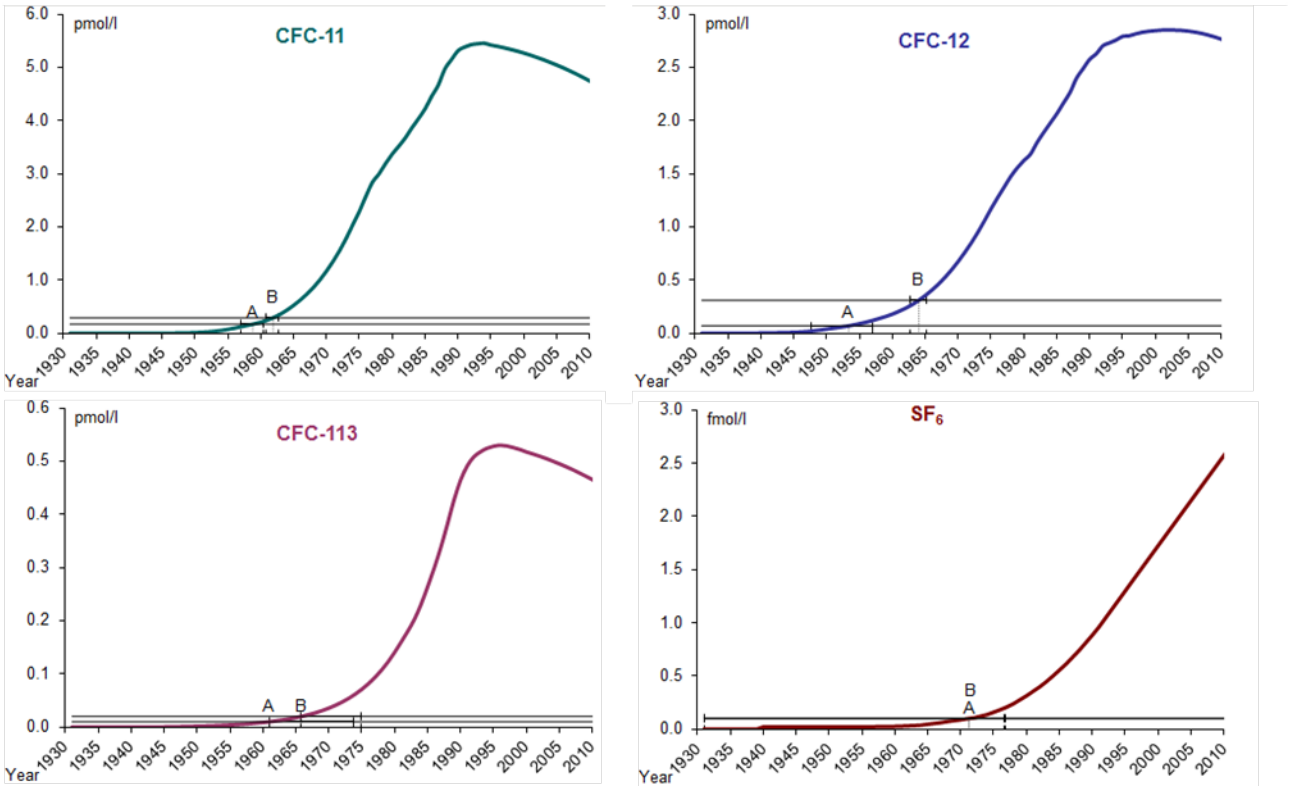


FIGURE 5.7 – Âge apparent estimés par les traceurs gazeux aux points A et B pour un modèle PM

5.2.3 Interprétation

Pour les parcelles en Sables du Bruxellien, les teneurs en $CFCs$ des échantillons A et B sont faibles mais significatives. Leur présence témoigne d'une eau infiltrée après les années 50' au début des émissions industrielles de ces gaz (Figure 5.7). Les teneurs en ^3H sont également très faibles, ce qui témoigne d'âges éloigné du pic d'activité de 1963.

Au vu de l'erreur de mesure reportée par le laboratoire (+-) par rapport à la teneur de ces échantillons, il faut d'avantage se fier aux traceurs $CFC-11$ et $CFC-12$ dans nos interprétations des échantillons d'eau des SdB. L'année de recharge apparente moyenne estimée suivant ces 2 traceurs pour un modèle PM est 1955 pour l'échantillon A à Ottignies et 1963 pour l'échantillon B à Court-St-Etienne (Figure 9.20, Annexe 9). La teneur en SF_6 en SdB est

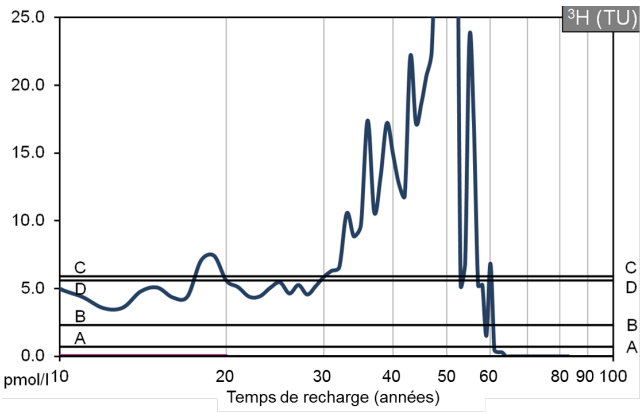


FIGURE 5.8 – Temps de résidences apparent estimé par le tritium aux points A, B, C et D pour un modèle PM

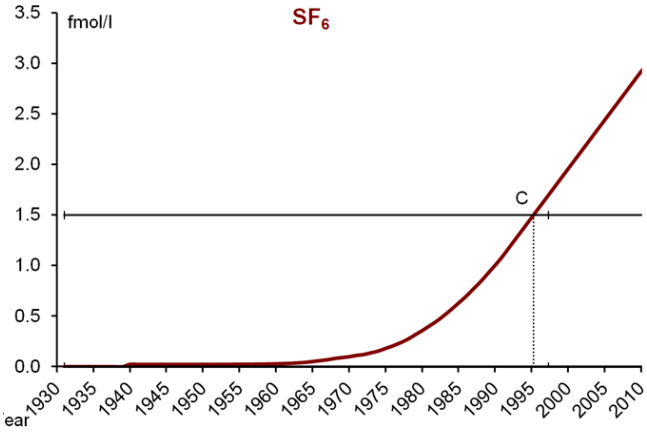


FIGURE 5.9 – Âge apparent estimé au point C par le SF_6 pour un modèle PM

sous le seuil de détection ce qui suggère une infiltration avant les années 70'. Concernant le ^3H, la figure 5.8 renseigne une activité plus faible que l'activité naturelle des précipitations depuis les années 80' et témoigne donc d'un temps de recharge de 60 ans (1954) pour B et d'au moins 60 ans pour A.

Les échantillons d'eau des point A et B proviennent cependant de puits situés en aval des parcelles d'études, pompant l'eau plus bas que le toit de la nappe. L'eau doit y être plus âgée qu'au point D, au toit de la nappe sous la parcelle de Court-St-Etienne. En D nous mesurons une activité de 5.60 UT qui, suivant un modèle PM, témoigne d'un temps de résidence potentiel de 18, 20, 30 ou 60 ans (Figure 5.8), avec une erreur de 0.7 UT, soit environ 2 ans.

En conclusion pour les SdB, il semblerait que l'eau au toit de la nappe de la parcelle P_SdB_CSE ait un âge apparent minimum de 18 ans. Et que le transfert jusqu'au puit au point B mette environ 40 ans. Il faut noter que la concentration en NO_3^- en D sous la parcelle est de 120 $mg.L^{-1}$ alors qu'elle est sous le seuil de détection au point B. Les résultats ^3H, qui semblent correspondre à notre attente au vu de la topographie des lieux, montrent que l'eau au point B est plus âgée que l'eau au point D. Indépendamment des pratiques menées en surface, une augmentation des teneurs en NO_3^- de certains forages est probable durant ces prochaines

années. La connectivité entre les points de recharge en B et D n'est cependant pas vérifiée. Malgré l'absence d'information sur l'âge de l'eau directement sous la parcelle P_SdB_OTT, les observations analytiques et topographiques témoignent d'une dynamique semblable avec une eau plus âgé qu'à Court-St-Etienne.

En Hesbaye, la campagne menée par (Orban et al. (2006)) sur l'ensemble du bassin du Geer montrait pour le Tritium des teneurs variant entre la limite de détection (0.7 UT) et 14.7 UT en fonction de la position des points d'échantillonnage sur le bassin. L'étude rendait compte de teneurs proches de l'unité dans le nord du bassin, caractéristiques d'eaux infiltrées avant les essais nucléaires des années 60'. De concentrations élevées, entre 5 et 14 UT, dans la partie Sud-Ouest de l'aquifère correspondant à des eaux infiltrées après les années 60'. Une zone de concentrations intermédiaires, entre 2 et 6 UT, dans l'Est et le Nord-Est du bassin était associée à des eaux provenant d'un mélange d'infiltrations pré- et post-60'.
Notre mesure (5.9 UT) prise dans la partie centrale du bassin est en cohérence avec la mesure effectuée en 2005 (11.2 UT) dans un puit de particulier distant de moins de 2 km de notre parcelle. En fonction de la demi-vie du ^3H ($T_{1/2}$), l'activité résiduelle A_n après 9 ans correspondant à un nombre de demi-vies passées n devrait valoir 6.75 UT (équation 5.18).

$$n = \frac{9}{T_{1/2}} \tag{5.17}$$

$$An = \frac{A_0}{2^n} \tag{5.18}$$

Suivant un modèle PM, une activité de 5.9 UT peut correspondre à une recharge dans l'aquifère datant soit d'avant le pic des années 60' soit d'après les années 80', avec un temps de recharge de 10, 20 ou 30 ans (Figure 5.8).

Pour les 3 mesures $CFCs$ en Hesbaye, les concentrations analysées dans la nappe sont excédentaires par rapport à la solubilité potentielle de ces gaz aux teneurs atmosphériques. Les mesures de $CFCs$ semblent souffrir de pollutions locales provenant de lixiviations de zones urbaines et industrielles. La campagne de (Orban et al. (2006)) dans le bassin du Geer avait abouti à la même conclusion pour les analyses $CFCs$ (communication orale), résultats qui n'avaient pas été publiés. Le SF_6 semble ne pas souffrir de pollutions diffuses et fourni une information intéressante. Nous évaluons une teneur atmosphérique de 1.5 fmol/L pour une recharge à l'altitude de 150 m, à 7 ^oC et 0.2% de salinité ce qui correspond à une recharge datant de 1995 (Figure 5.9). (Orban et al. (2006)) obtenaient pour le centre du bassin du Geer une valeur de 1.4 fmol/L. L'impact de l'incertitude des paramètres de salinité et de température de la recharge ont été évalués. Une augmentation de 3 degrés entraine une diminution estimée de la teneur en SF_6 associée (SF_6 = 1.320 fmol/L). Une augmentation de 3 degrés et de 0.3% de la salinité entraine une seconde diminution de la teneur atmosphérique associée (SF_6 = 1.277 fmol/L). Cette variabilité d'estimation de la teneur atmosphérique en SF_6 demeure du même ordre de

grandeur que l'erreur sur la mesure laboratoire (+-0.20 fmol/L), elles entrainent chacune une incertitude de +- 2 ans sur la date de recharge.

Suivant les analyses ^3H et SF_6 nous pouvons conclure que l'eau de la recharge de notre parcelle en Hesbaye date de 1995 +- 4 ans.

Chapitre 6

Modélisation numérique

Nous tentons dans ce chapitre d'intégrer avec plus de précision la caractérisation physique du profil de sol sur les temps de transfert des nitrates vers l'aquifère. Le transport de solutés dans la phase aqueuse du sol est déterminée par un grand nombre de paramètres dépendant du soluté, du milieu poreux et des conditions environnementales. Nous utilisons ici un modèle numérique capable d'intégrer les paramètres prépondérant du système étudié afin de pouvoir imiter son fonctionnement et retracer l'historique nitrique des sous-sols. Des simulations quant au prédictions futures de ce système pourront alors être envisagées.

6.1 Le modèle WAVEmat

Il s'agit d'un modèle 1-D pour la description des flux d'eau, de solutés et de chaleur dans un système sol en champs. Le modèle disponible en *FORTRAN* et en *Matlab* intègre 5 modules en interaction (Figure 6.1), capables de décrire les transports verticaux à l'échelle d'une colonne de sol, d'un lysimètre ou d'une parcelle agricole.

Le modèle considère l'hétérogénéité du sous-sol sous forme d'une succession de couches d'épaisseurs identiques discrétisant le profil de sol étudié. Les couches de sol sont subdivisées en intervalles de temps, les "compartiments sol", pour lesquels les variables d'état sont calculées par résolution numérique des équations de transport. En adéquation avec la dynamique des processus en jeu, le temps de calcul des variables est inférieur au jour. Ce pas de temps est variable et déterminé pour minimiser l'erreur de l'équilibre de masse induite par la résolution de l'équation de transport de l'eau.

Les entrées du modèle sont spécifiées sur base quotidienne pour chaque compartiment et les conditions limites sont considérées comme constantes sur une journée.

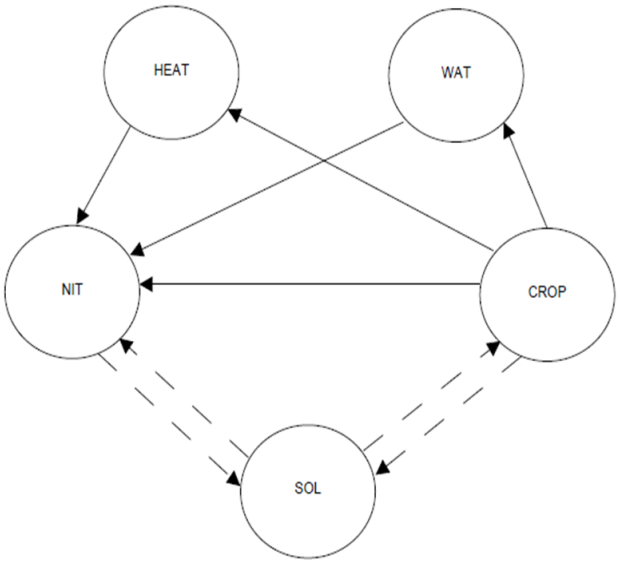


FIGURE 6.1 – Modules WAVE en interaction

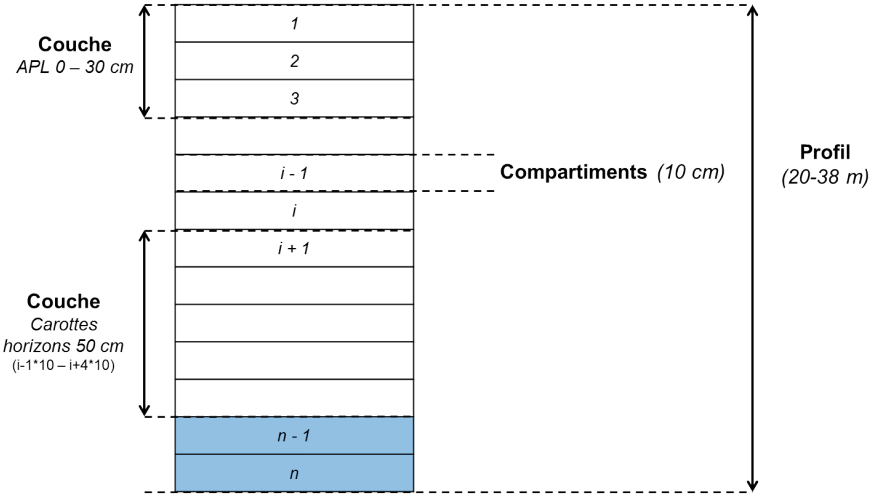


FIGURE 6.2 – Discrétisation spatiale des sous-sols définie dans WAVE

6.2 Méthodologie

6.2.1 Paramétrisation

6.2.1.1 Discrétisation spatiale

Le sous-sol modélisé est caractérisé par une suite de compartiments pour lesquels les paramètres de conductivité sont définis. Le choix d'une épaisseur de compartiments de 10 cm nous permet d'intégrer les carottages réalisés par horizons de 50 cm et l'APL donné par horizon de 30 cm.

6.2.1.2 Caractérisation du sous sol

Les paramètres de conductivité sont définis suivant le modèle de Mualem - van Genuchten (Van Genuchten (1980)) pour chaque compartiment à partir des analyses granulométriques et de carbone des carottes. Nous utilisons les fonctions de pédotransfert de Vereecken et al. (1989) et les fonctions revisitées par Weynants et al. (2009) pour estimer la teneur en eau résiduelle θ_r, la teneur en eau à saturation θ_s, la conductivité à saturation K_s, les paramètres α et n. La densité apparente des horizons est estimée en fonction de valeurs standards pour la granulométrie dominante de la carotte. Les paramètres évalués par horizons de 50 *cm* sont interpolés par une fonction *cubic*, ré-échantillonnée tous les 10 *cm* pour obtenir une transition progressive des paramètres de conductivité d'un compartiment à l'autre (Figure 6.3).

6.2.1.3 Transport du nitrate

Le transport d'un soluté dans la phase aqueuse du sol est déterminée d'une part par sa diffusion chimique, sa convection et sa dispersion hydrodynamique dans le milieu poreux et d'autre part par les processus de transformation et d'échange de masse du soluté entre les différentes phases (nitrification, dénitrification, adsorption, volatilisation). La diffusion est prise en compte par la loi de Fick pour laquelle est intégré un coefficient de diffusion effectif D_e (équation 6.2), strictement plus petit que le coefficient de diffusivité dans l'eau pure Dif $[m^2.j^{-1}]$, tenant compte de la tortuosité du milieu. La diffusivité effective multipliée par la teneur en eau mobile θ_m et le taux de variation de la concentration en nitrate C_m avec la distance x nous donne le flux de diffusion du nitrate dans l'eau q_{ds} (équation 6.1).

$$q_{ds} = -D_e\,\theta_m\,\frac{\partial C_m}{\partial x} \tag{6.1}$$

$$D_e = \frac{Dif\,a\,e^{b\,\theta_m}}{\theta_m}\ [m^2.j^{-1}] \tag{6.2}$$

Le flux convectif des solutés est le phénomène d'entrainement des solutés dissouts avec le mouvement d'eau. La convection est fonction de la concentration en soluté dans la phase mobile C_m et du flux d'eau de Darcy q_w (équation 6.3). Le flux de Darcy est lié à la vitesse d'écoulement moyenne V_m $[m.j^{-1}]$, dépendante d'un coefficient de diffusivité D_m et de la dispersivité des solutés dans le sol λ (équation 6.4).

$$q_c w = C_m\,\theta_m\,V_m = C_m\,q_w [m^3.m^{-2}.j^{-1}] \tag{6.3}$$

$$D_m = \lambda\,V_m\ [m^2.s^{-1}] \tag{6.4}$$

Lorsqu'un soluté est adsorbé à la matrice du sol, la concentration du soluté dans la solution mobile C_m est réduite. La masse de soluté adsorbée sur le complexe d'échange du sol

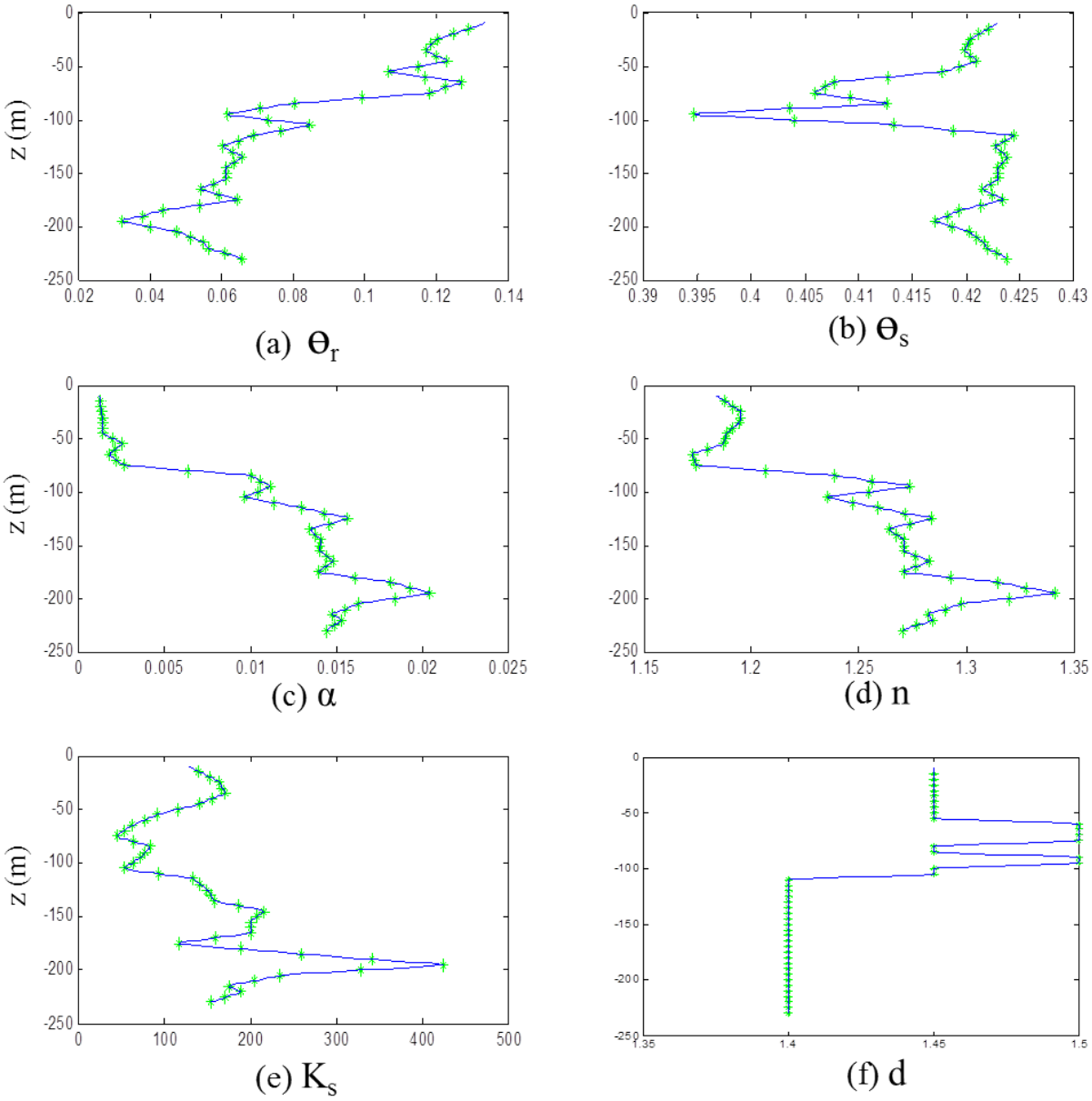


FIGURE 6.3 – Paramétrisation des compartiments sol (Parcelle P_SdB_CSE)

a	b	Dif	λ	f	k_d
0.01	10	0.01	100	1	0

TABLE 6.1 – Paramètres de transport des nitrates

C_{sm} $[kg\,kg_{solsec}^{-1}]$, sera fonction de la fraction f de sites de sorption en contact avec la phase mobile, de la densité du sol ρ et du coefficient de distribution du soluté k_d. La relation entre la concentration en soluté C_m dans la phase mobile et la concentration totale C_{tm} est exprimée comme suite dans le modèle :

$$C_{tm} = C_m\,(\theta_m + f\,\rho\,k_d) \tag{6.5}$$

Les paramètres a, b, Dif, λ, f, ρ, k_d sont des entrées du modèle (tableau 6.1). Nous conservons les valeurs standards utilisées dans l'étude MONICA en SdB. Nous considérons également un rapport entre l'eau mobile et l'eau totale de 1. Par conséquent le coefficient f vaut également 1. La charge du nitrate étant négative le coefficient k_d est fixé à zéro de sorte que pour chaque compartiment, la concentration dans la phase mobile égale la concentration totale. La dispersivité hydrodynamique λ est dépendante de la longueur du profil de sol. Elle est fixée en fonction de valeurs expérimentales retrouvées dans la littérature pour des colonnes verticales de sol de 30 à 55 m (Manuel WAVE).

6.2.1.4 Transformation de l'azote

Pour une première modélisation nous ne nous attelons pas à l'évaluation de la quantité de nitrates risquant de passer la zone racinaire en fonction, notamment, de l'état de développement des cultures et des précipitations. Nous évaluons à nouveau la capacité de l'APL à rendre compte de ces processus et à donner une information sur les profils de nitrates retrouvés en profondeur.

Ainsi nous ne considérons ni les fumures organiques et minérales ni les successions cultures. L'ensemble des paramètres de transformation de l'azote, normalement actifs dans le premier mètre du sol (humification, nitrification, dénitrification, volatilisation, etc.), sont mis en pause.

Comme effectué dans la section 5.1, les séries APL sont interpolées par une fonction *cubic* afin d'obtenir une série journalière. La série est ensuite transformée pour obtenir un vecteur d'entrée des concentrations en surface en $g_{NO_3^-}.cm^{-2}$ de sol, entrée du modèle WAVE.

6.2.2 Conditions limites en surface

Nous choisissons de réaliser nos simulations sur une période de 30 ans, entre 1984 et 2014. Cette durée est choisie d'une part pour couvrir la période des temps de transferts estimés suivant les méthodes précédentes. D'autre part nous simulons une période suffisamment longue avant le début du PGDA en 2002 afin d'initialiser le profil des concentrations en nitrates en profondeur. Les données d'entrée des précipitations et des concentrations nitriques en surface pour la période 1984 à 2002 seront donc estimées en fonction des données connues de 2002 à 2014.

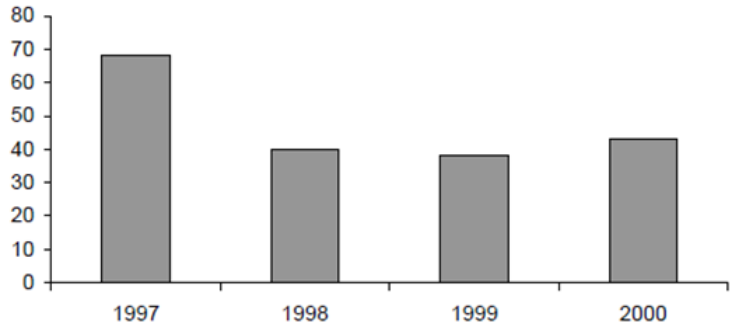


FIGURE 6.4 – Évolution de l'APL moyen du groupe Prop'eau Sable de 1997 à 2000

6.2.2.1 Conditions météorologiques

Les conditions météorologiques sont entrées sur base journalière. Le compartiment de surface modélisé étant situé à 1 m de profondeur, à partir du dessous de l'APL, l'évapotranspiration n'est pas calculée par le modèle mais nous fixons une infiltration nette égale à la différence entre les précipitations et l'évaporation potentielle données par le réseau de station *Pameseb* pour la station d'Ottignies-Louvain-la-Neuve (Station 18).

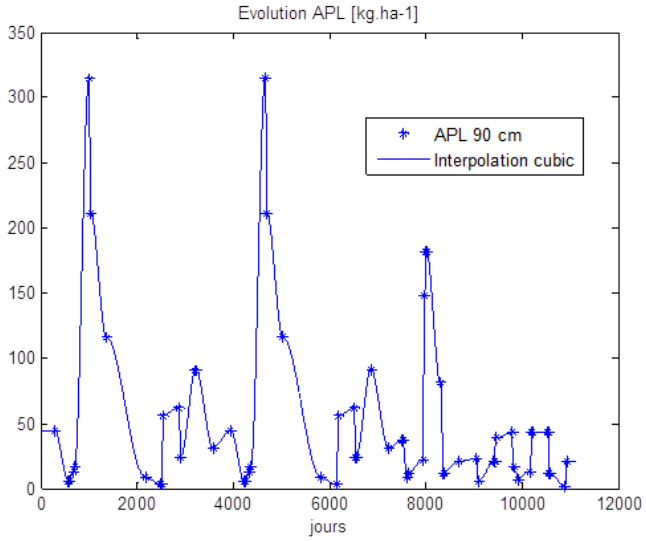
6.2.2.2 Charge azotée

L'APL est choisi comme indicateur de la concentration en nitrate sous le profil de sol de surface à 90 cm de profondeur. Les APL de 2004 à 2013 sont issus de la base de donnée du Survey Surface Agricole mis en place dans le cadre du PGDA. Les APL 1984 à 2004 font l'objet d'une estimation sur base de la série 2004-2013 et du rapport *Prop'eau Sable* (Lambert et al. (2002)) montrant une baisse générale de l'APL du groupe des fermes de références sélectionnées dans cette première étude de mise en place du PGDA. L'enchainement des cultures dans la rotation de 1984 à 2004 est supposée cohérente avec la succession culturale connue entre 2002-2013. L'APL annuel des années 1984 à 2004 est augmenté d'un facteur K par rapport à l'APL des années 2004 à 2013 tel que le rapport entre l'APL moyen de 1984-2002 et 2002-2013 soit égal au rapport 70 / 40 présenté dans *Prop'eau Sable*. Pour la parcelle de Court-St-Etienne, les APL estimés pour la période 1984 à 2004 valent 1,43 fois les APL de 2004 à 2013 (Figure 6.5). Il s'agit ensuite de convertir l'APL donné en $kgN - NO_3^-.ha^{-1}$ dans les unités propres à WAVE, en $gNO_3^-.cm^{-3}$.

6.3 Résultats

Nous présentons et discutons les résultats de modélisation numérique pour la parcelle de Court-St-Etienne uniquement. Cette simulation est réalisée sur une période de 30 ans, entre le 1^{er} janvier 1984 (j=0) et le 16 juin 2014 (j=11120).

(a) $kgN - NO_3^-.ha^{-1}$ sur 90 cm



(b) Unités d'entrée du modèle WAVE $gNO_3^-.cm^{-3}$

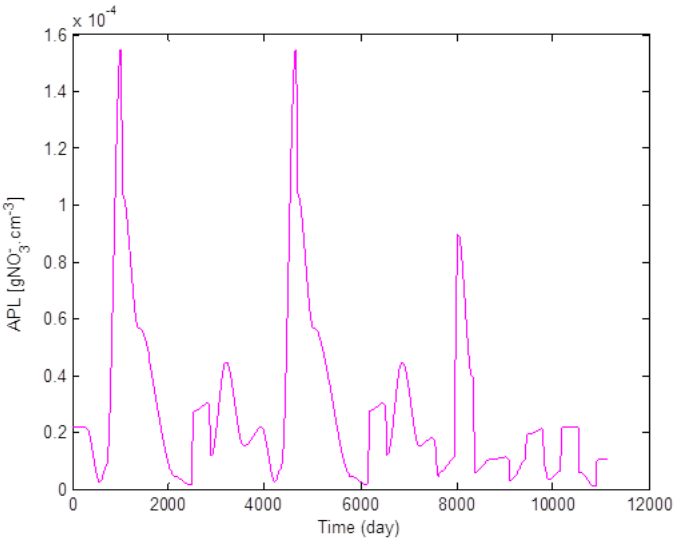


FIGURE 6.5 – Série APL estimée et observée entre 1984 et 2013 (Parcelle P_SdB_CSE)

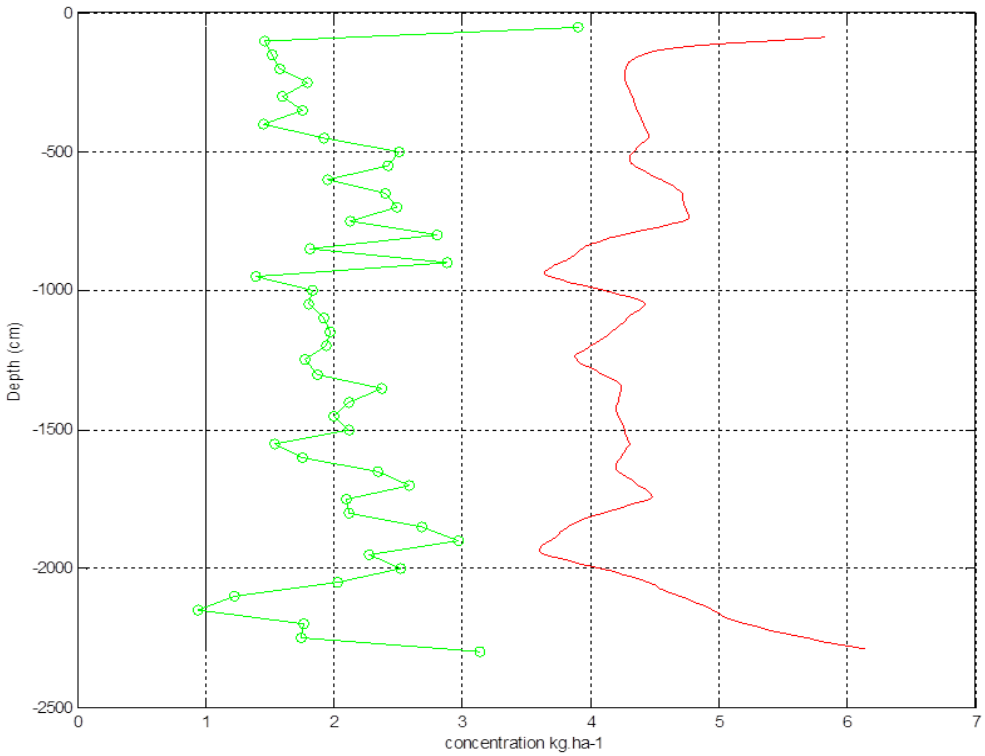
Le premier essai de simulation tel explicité dans la section précédente nous mène à un profil de concentrations trop élevées par rapport aux observations. Une partie de l'APL étant en effet revalorisé par les couverts hivernaux et par la culture de printemps, seule une fraction de l'APL sera lessivée en profondeur. Nous corrigeons le vecteur de détermination des concentrations en surface en supposant un lessivage de 50% de l'APL vers la profondeur. L'ordre de grandeur du profil de simulation final correspond alors à nos observations actuelles (Figure 6.6).

L'évolution des concentrations nitriques simulée en différents horizons de profondeur peut être observée à la figure 6.7. La courbe bleue simule l'évolution à 10 cm de profondeur. Cette courbe, imposée par l'APL et dépendante des conditions météorologiques, fluctue énormément. On observe les pics APL en 1986 et 1996 dans la série estimés, soit 2,5 et 12,5 années après le premier jour de simulation. Le $3^{ème}$ pic APL après 8000 jours, soit 22,5 années de simulation, qui correspond au pic d'octobre 2005. On observe un décalage progressif dans le temps et une atténuation des pics de concentration qui s'infiltrent en profondeur. Ainsi au fur et à mesure de l'atténuation des APL en surface, la concentration de l'horizon de profondeur (courbe majenta) prend le dessus sur l'horizon de surface (courbe bleue à 10 cm). Après le pic lié à l'année 2005, la concentration dans l'horizon superficiel atteint des maximums de 3 à 3,5 $kgN - NO_3^-.ha^{-1}$ sur 10 cm, soit 27 à 31,5 $kgN - NO_3^-.ha^{-1}$ sur 90 cm. Ceci correspond bien à 50% de l'APL qui fluctue ces dernières années autour de 50 $kgN - NO_3^-.ha^{-1}$ en dehors d'éventuels accidents culturaux.

La figure 6.8 recense l'évolution annuelle à la mi-juin entre 1984 et 2014 du profil des concentrations simulé en profondeur. La figure (a) est donnée en $kgN - NO_3^-.ha^{-1}$ par horizon de 10 cm. Ce profil discontinu est considérablement influencé par le profil granulométrique du sous-sol déterminant les paramètres de conductivité. La figure (b) donne une simulation de l'évolution des concentrations en $mgNO_3^-.L^{-1}$ et suit le flux d'infiltration hydraulique. Pour les deux figures, la courbe bleue (j = 166) correspond au mois de juin de la première année de simulation. La courbe noire (j = 7466) correspond au mois de juin de l'année 2004, 2 ans après le lancement officiel du PGDA. La courbe rouge (j = 11116) est l'aboutissement de la simulation à la date de carottage à la mi-juin 2014.

Nous présentons encore le cumul des flux simulés de nitrate (a) et d'eau (b) à la surface et au bas du profil de sol (Figure 6.9). La courbe rouge de la figure (a) correspond au bilan du flux d'entrée des nitrates en surface, suivant l'APL (courbe bleue), et le flux des pertes vers la nappe au bas du profil (en vert), considérant le profil initial de simulation de 1 $kgN - NO_3^-.ha^{-1}$, soit 0.102 $gNO_3^-.cm^{-2}$. La pente de la courbe verte de la figure (b) rend compte de l'intensité moyenne de l'infiltration (P - ET0) dans les simulations. La perte en eau au bas du profil est directement proportionnelle au flux d'entrée en surface, le stock d'eau du profil est donc relativement constant dans le temps. La figure 6.10 montre une bonne cohérence entre les simulations et l'observation de l'évolution de la teneur en eau avec la profondeur mais une surestimation constante de $0,15$.

Concentration en surface = APL



Concentration en surface = 50% APL

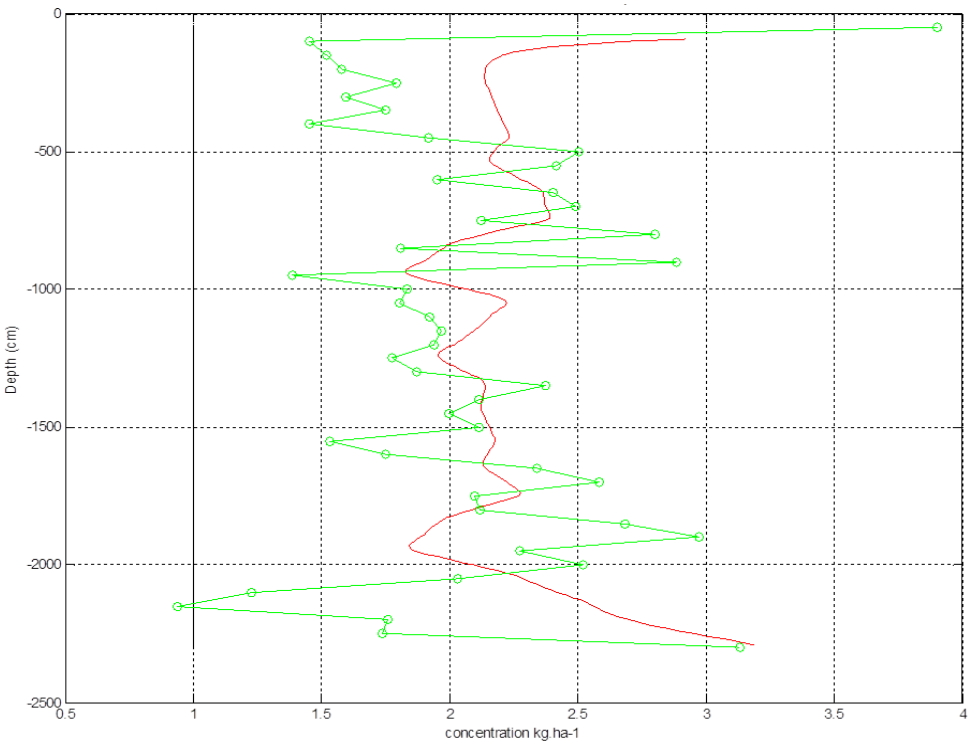
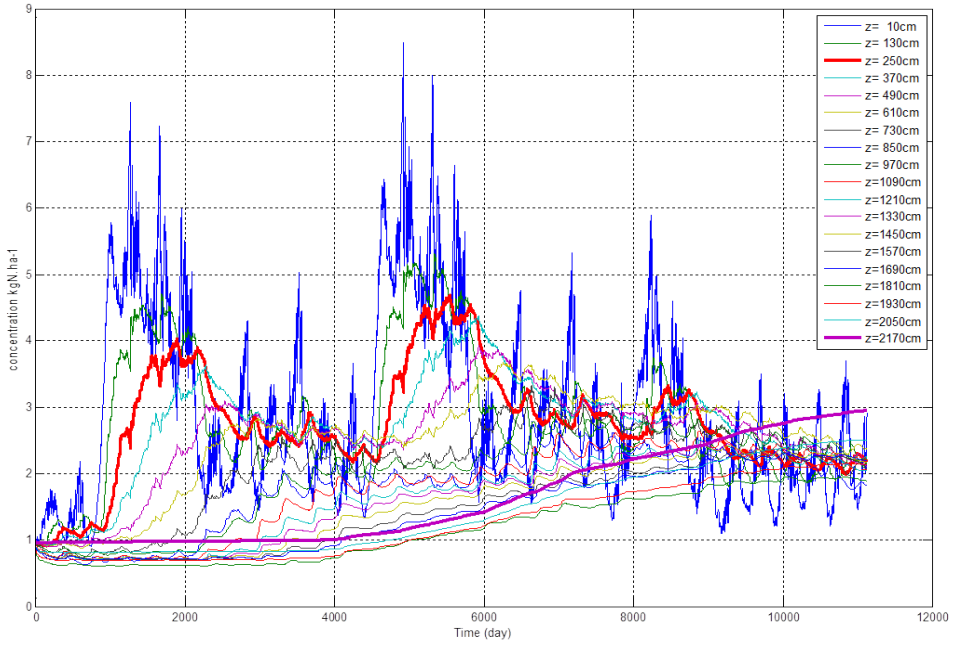


FIGURE 6.6 – Profil nitrique observé vs simulé (Parcelle P_SdB_CSE)

(a) $kgN - NO_3^-.ha^{-1}$ par horizons de 10 cm



(b) $mgNO_3^-.L^{-1}$

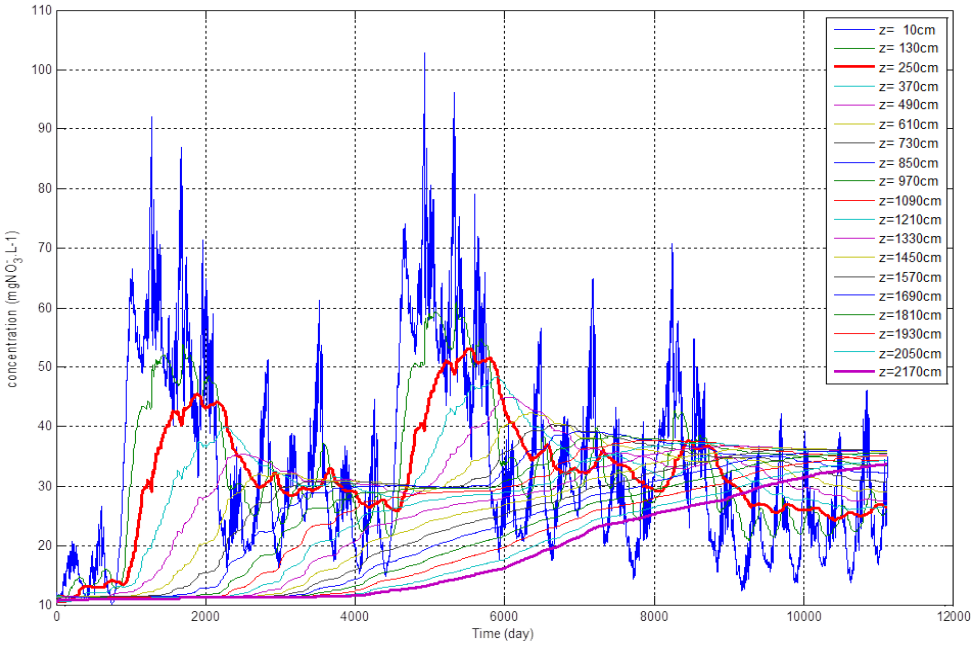
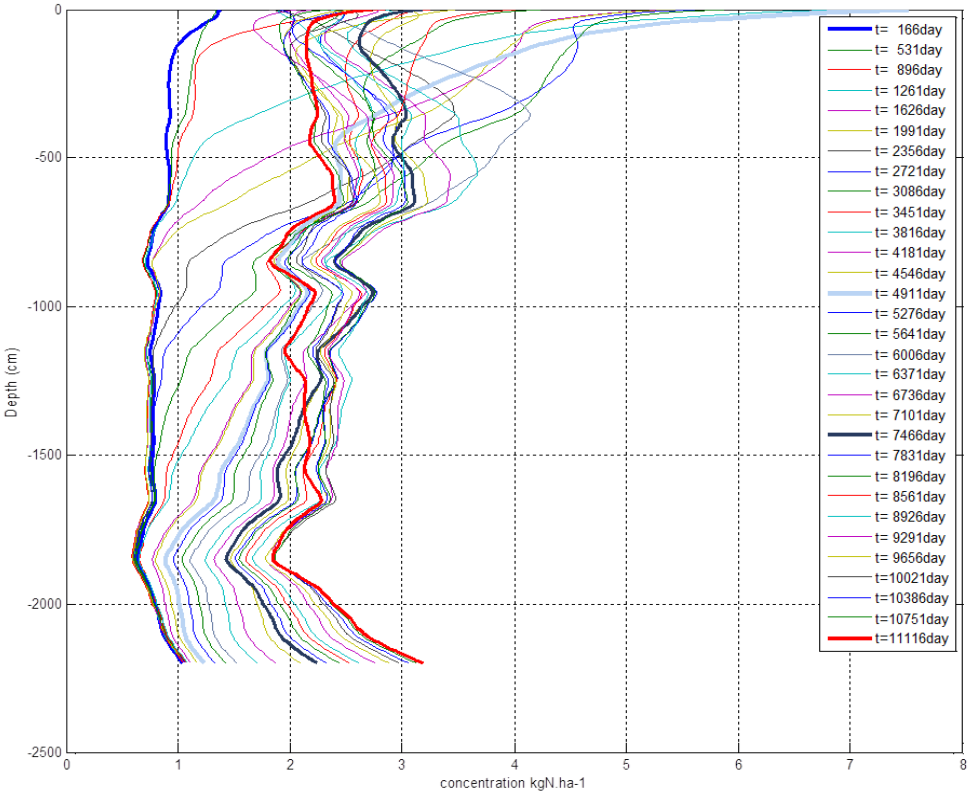


FIGURE 6.7 – Évolution temporelle des concentrations nitriques simulées pour différents horizons de profondeur (Parcelle P_SdB_CSE)

(a) $kgN - NO_3^-.ha^{-1}$ par horizons de 10 cm



(b) $mgNO_3^-.L^{-1}$

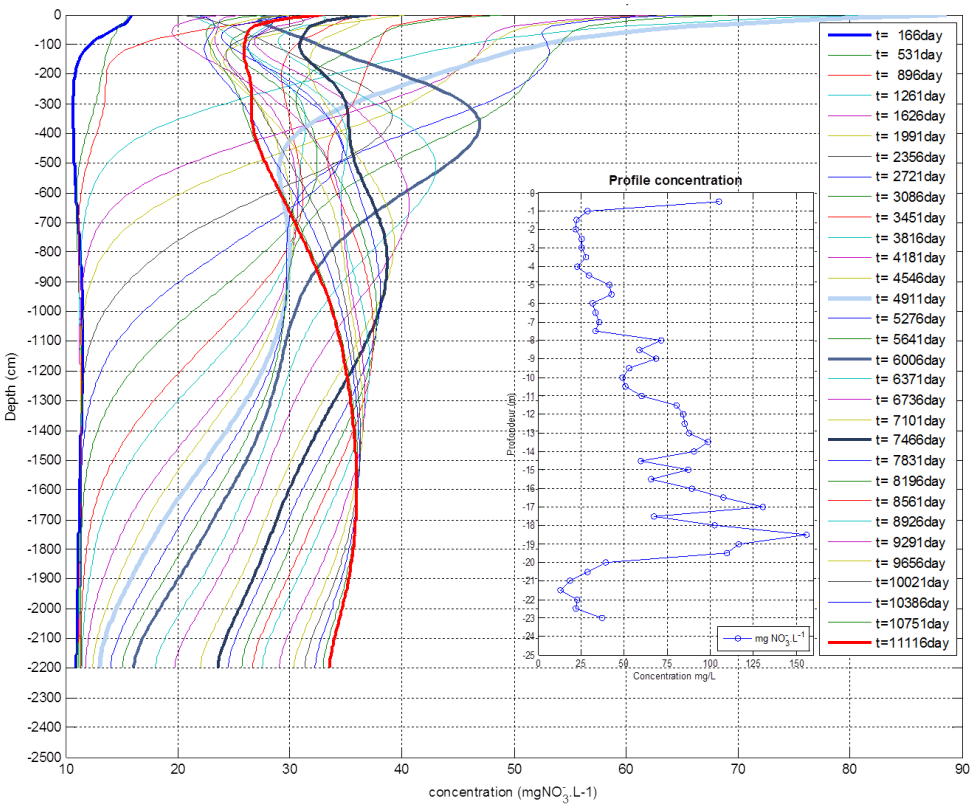
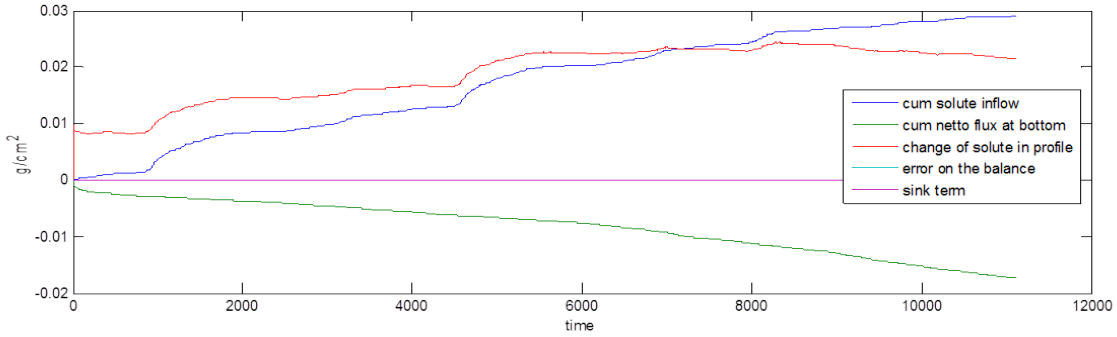


FIGURE 6.8 – Simulation du profil nitrique en profondeur (Parcelle P_SdB_CSE)

(a) Flux de nitrate cumulé $[gNO_3^-.cm^{-2}]$



(b) Flux d'eau cumulé $[cm]$

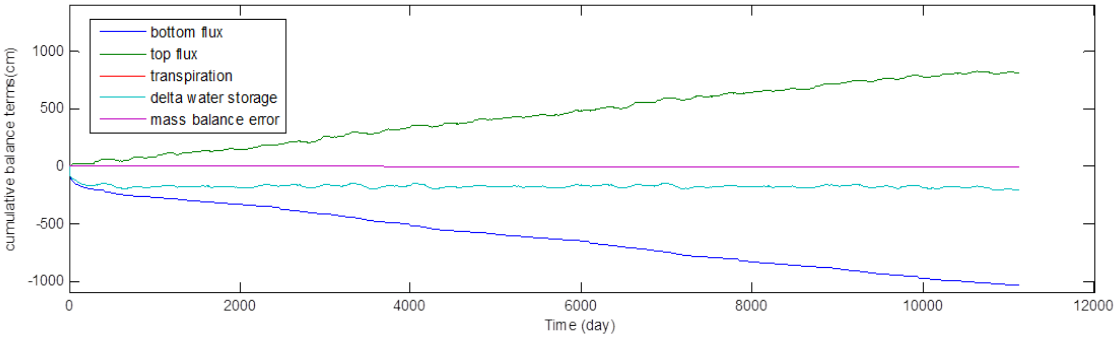


FIGURE 6.9 – Cumul des flux hydriques et nitriques simulés (Parcelle P_SdB_CSE)

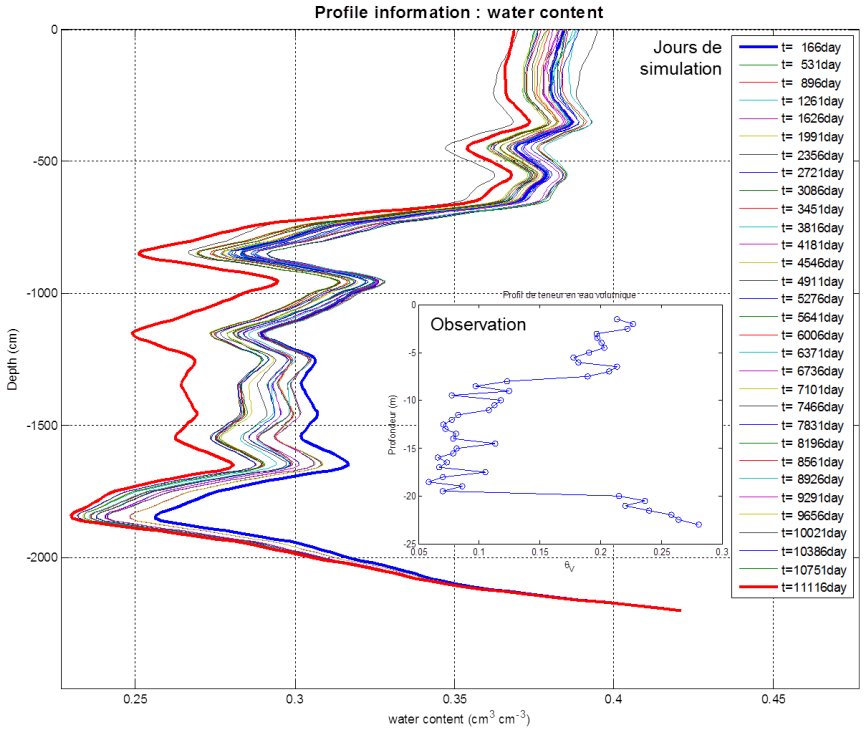


FIGURE 6.10 – Simulation vs observation de la teneur en eau volumique en profondeur (Parcelle P_SdB_CSE)

z	t (j)	distance (cm)	v ($cm.j^{-1}$)	v($m.an^{-1}$)
1	1711	500	0.29	1.07
2	365	150	0.41	1.50
3	4380	1000	0.23	0.83
total	6456	1650	0.26	0.93

TABLE 6.2 – Vitesses de transfert simulées par WAVE le long du profil (Parcelle P_SdB_CSE)

6.4 Interprétation

Nous observons qu'au départ d'un profil de concentration de 1 $kgN-NO_3^-.ha^{-1}$ par horizon de 10 cm en 1984, nous aboutissons en 2004 à un profil très chargé en azote en surface (courbe noire, figure 6.8). Ce profil de 2004 est totalement théorique vu qu'aucune étude de forage en profondeur n'avait été réalisée à l'époque. Cependant, il est intéressant d'observer que suivant la caractérisation physique du profil, d'une part l'azote injecté en surface est transmit vers la nappe suivant un flux plus faible, ce qui conduit à une accumulation dans les premiers mètres du sous-sol. D'autre part, suite à une diminution du flux d'azote en surface, il faut une dizaine d'années pour que la tendance générale du profil s'inverse. Il faut encore noter que l'évolution de la tendance du profil ne se marque pas clairement en surface au vu de l'importance de la fluctuation inter-annuelle de l'APL, mais mène à une augmentation progressive des concentrations en profondeur. D'après ces simulations, la tendance devrait continuer à augmenter en profondeur dans les prochaines années, au fur et à mesure que le profil total continue à baisser.

L'observation d'une série de courbes de la figure 6.8 (b) nous permet d'estimer des temps de transfert des nitrates vers la profondeur. Le maximum de concentration en profondeur de la descente du pic lié à l'année 1996 (j = 4660) peut être suivi sur 3 distances : z1, à travers la couche limoneuse ; z2, à travers un horizon limono-argileux ; z3, à travers le profil de sable grossier. Les vitesses de transfert à travers ces 3 zones sont présentées au tableau 6.2. C'est la traversée de l'horizon argilo-limoneux de 1,5 m qui détient la vitesse la plus importante. C'est en effet la zone du profil dont la teneur en eau volumique est la plus élevée. Si le sous-sol sableux présente des conductivités hydrauliques à saturation importante, sa faible teneur en eau ralenti considérablement la descente du nitrate. Les 5 m de limon au bas du profil racinaire présentent des vitesses de transfert intermédiaires de 1,07 $m.an^{-1}$. La vitesse résultant de la pondération des temps et des distances de transfert de ces 3 zones du sous-sol non saturé vaut 0,93 $m.an^{-1}$.

Chapitre 7

Conclusion

Dans le cadre de la **Directive Européenne "Nitrates"**, trois parcelles agricoles ont été sélectionnées pour un projet exploratoire de carottage des sous-sol non saturés en grande profondeur, visant au développement d'une méthodologie de validation expérimentale du PGDA.

Deux de ces parcelles se situent dans la région des sables Bruxelliens, une en Hesbaye. Ces parcelles ont été sélectionnées de telle sorte que leur historique cultural, et d'éventuels accidents culturaux liés à la gestion de l'azote, puisse se retrouver en profondeur. Ce projet s'est inscrit dans la valorisation du réseau des fermes de références développé par la structure d'encadrement *Nitrawal*, dont l'*UCL* et l'*Ulg-GblxABT* sont les partenaires scientifiques. La base de donnée des APL évalués annuellement au sein du réseau des fermes de référence, et plus particulièrement pour nos 3 parcelles, est mise à profit dans cette étude.

La première partie de ce projet fut le **carottage en profondeur** des parcelles sélectionnées. Plusieurs techniques ont été envisagées et expérimentées sur le terrain. Il est apparu une impossibilité d'extraire des carottes non-remaniées à de telles profondeurs. Cependant, l'association *"tarière, chape, bouteille"* présentée plus haut a montré son efficacité pour répondre aux exigences de précision du forage tout en garantissant une puissance suffisante pour la traversée d'horizons indurés dont la localisation précise et l'épaisseur ne peuvent être prédits à l'avance. La *Geoprobe roto-sonic* a par contre montré ses limites pour la traversée des bancs de grès en sables du Bruxellien. Une bonne connaissance des capacités matérielles et de l'expérience des entreprises de forage régionales est indispensable pour la bonne réussite de ce type de projet. Le développement d'une relation de confiance avec les foreurs sur le terrain améliore également le déroulement de la campagne de terrain.

Une collaboration avec les laboratoires d'analyse de *Michamps* (Belgique) et *Isodetect* (Allemagne) nous a permis de réaliser un nombre important d'analyses dans un temps imparti limité.

La **caractérisation des carottes solides** s'est faite par des analyses granulométriques, de carbone et d'azote total, des éléments majeurs échangeables, de l'ammonium et du nitrate. Il

est intéressant d'observer que par rapport aux autres éléments du complexe d'échange du sol, l'ammonium est proportionnellement faible. Alors qu'il contribue à la masse d'azote minéral du profil de manière équivalente au nitrate.

L'eau des aquifères ont été analysées pour leur teneur en nitrates et pour le **suivi des traceurs hydrologiques** tritium (^3H), $CFCs$ et SF_6. La durée d'analyse de l'activité en tritium constitue une contrainte majeur pour un nombre important d'échantillons d'eau. Quant aux $CFCs$ et SF_6, la contrainte se situe dans la complexité de la technique d'échantillonnage de la nappe, qui nécessite l'utilisation de matériaux spécifiques et un échantillonnage totalement hermétique à l'air atmosphérique.

La première information pouvant être déduite de la campagne de terrain est la cohérence entre une diminution générale de l'APL observée entre 2002 et 2013 avec une augmentation significative des concentrations nitriques vers la profondeur. Cette tendance suggère une diminution des pertes azotées sous le profil racinaire ces dernières années faisant suite à l'implémentation du PGDA. Nous envisageons ensuite une diversité d'approches pour l'**estimation des temps et des vitesses de transferts** le long des profils non-saturés. La figure 7.1 synthétise ces résultats.

		P_SdB_Otti (19 m)		*P_SdB_CSE (22 m)*		*P_Hesbaye (37 m)*		
		Estimation	*Erreur*	*Estimation*	*Erreur*	*Estimation*	*Erreur*	*Unités*
Bilans de masse	Temps de transfert hydraulique	15.43		14.07		33.66		années
	Vitesse de transfert hydraulique	1.23		1.56		1.10		m/an
	Temps de transfert NO_3^-	37.33	23.51	29.44	22.08	51.13	22.96	années
	Vitesse de transfert NO_3^-	0.84	0.53	1.71	1.28	0.91	0.41	m/an
FT NO_3^-	Temps de transfert NO_3^-	17.39		15.41		29.57*		années
	Vitesse de transfert NO_3^-	1.09		1.43		1.25		m/an
FT traceurs hydrologiques	Temps de transfert hydraulique	> 18		> 18		21.30	4	années
	Vitesse de transfert hydraulique	< 1.11		< 1.28		1.74	0.33	m/an
Modèle numérique	Temps de transfert NO_3^-			23.66				années
	Vitesse de transfert NO_3^-			0.93				m/an

* la valeur calculée à partir des 25 premiers mètres du profil est de 19.98 années. 37m / (25/19.98) = 29.57 ans

FIGURE 7.1 – Temps de transferts moyens estimés selon les méthodes envisagées dans l'étude

En guise d'analyse préliminaire nous envisageons une évaluation des transferts d'eau et de nitrates par un bilan de masse. Celle-ci suppose que le profil est vide au temps zéro et qu'il se remplit à une vitesse constante correspondant à l'infiltration des précipitations et à la concentration des percolations en nitrates en surface jusqu'à l'atteinte de la masse d'eau et de nitrate totale observée actuellement.

Dans un second temps, nous développons cette méthode de prédiction par l'utilisation de la théorie des fonctions linéaires de transfert (FT). Nous considérons deux fonctions en séries, une première rend compte de la descente des nitrates suivant le flux d'eau à la mesure d'un *piston* (modèle piston-flow). Une seconde fonction, *log-normale*, rend compte de l'hétérogénéité du milieu et du retard de l'avancée des nitrates par rapport au piston. Cette approche nous permet de tenir compte de la dynamique réelle de la charge azotée en surface (modélisée par l'APL) et de la forme réelle des profils de concentration en profondeur analysés dans l'étude.

Les paramètres de la fonction de transfert sont ajustés pour minimiser la distance entre les pics APL en surface et les fronts de concentrations nitriques retrouvés en profondeur. Les temps de transfert évalués par FT pour les nitrates sont légèrement plus lents que l'approche par bilan de masse pour l'eau mais plus rapide que l'approche par bilan de masse pour les nitrates. Cela s'explique par la prise en compte dans le modèle des FT d'un temps de retard propre au nitrate par rapport à l'eau. Mais nous ne prenons pas en compte la participation de fractions de fronts azotés beaucoup plus vieux, ni la dégradation du nitrate sur le profil.

L'information apportée par les traceurs isotopiques et gazeux est alors intéressante à comptabiliser. Compte tenu des horizons de temps couverts par ces traceurs, il est difficile d'en tirer un âge exact de l'eau des aquifères. La combinaison des informations apportées par chaque traceur permet cependant de placer des balises sur des âges minimums du mélange d'eau à la recharge de la nappe sous les parcelles. Il en ressort en SdB qu'une fraction de l'eau au toit de la nappe de Court-St-Etienne a au moins 18 ans et que l'eau au toit de la nappe de la parcelle d'Ottignies est plus âgée qu'à Court-St-Etienne. L'aquifère sous la parcelle en Hesbaye, bien plus profonde, montre un temps de recharge d'environs 21,30 ans. Ce dernier résultat ressort de l'analyse SF_6 et ^3H. Les $CFCs$ ne semblent pas valorisables dans cette région à cause de pollutions diffuses.

Les résultats fournis par les traceurs hydrologiques peuvent être biaisés par un nombre important de facteurs discutés plus haut. Les ordres de grandeurs sont cependant en cohérence avec nos approches de modélisation.

Finalement, nous développons les prémisses d'une modélisation numérique pour la parcelle de Court-St-Etienne à l'aide du modèle *WAVE* transcrit en *Matlab*. Le sous-sol de la parcelle est discrétisé par horizons de 10 cm jusqu'au toit de la nappe. Les paramètres de conductivité du sous-sol sont estimés à l'aide de fonctions de pédotransfert et suivant l'expérience des projets déjà menés au sein des sables du Bruxellien. Les données météorologiques sont fournies par le réseau de stations *Pameseb*. Les séries APL sont encore exploitées pour fournir, après interpolation, une estimation de l'évolution de la charge azotée journalière au sommet du profil. Des estimations de l'historique cultural avant les début du PGDA sont réalisées afin de simuler l'évolution du profil nitrique sur les 30 dernières années entre 1 et 23 m de profondeur.

Cette modélisation rend compte d'un profil nitrique qui se charge en surface durant les années qui ont précédé la mise en place du PGDA. Si on accepte la réduction de l'APL observée par Lambert et al. (2002) lorsqu'une ferme entre dans les mesures imposées par le PGDA, nous observons qu'en 12 ans d'application de ce programme la tendance des concentrations vers la profondeur a le temps de s'inverser. La réduction du flux azoté en surface et la percolation de la charge historique permet d'atteindre un profil plus chargé en profondeur qu'en surface. Cette tendance d'une augmentation des concentrations vers la profondeur en cohérence avec une diminution observée de l'APL était également vérifiée statistiquement dans l'analyse exploratoire. La modélisation numérique rend cependant compte de la persistance de lixiviats azotés liés aux années 1996 à 17 m de profondeur. Ces observations conduisent finalement à une estimation de vitesse de transfert de moins d'un mètre par an pour un sous-sol typique des

SdB limon/limon-argileux/sable grossier.

Un temps supplémentaire considérable pourrait être consacré à l'exploitation des données recueillies par ces 3 carottages en profondeur. Il est cependant intéressant de noter que les approches entreprises dans cette étude sont cohérentes entre elles et témoignent d'un front de descente des nitrates ne dépassant pas 1,5 $m.an^{-1}$. Dans le cadre de la Directive Nitrate, il semble évident que nous aurons besoin de plus de 12 ans pour améliorer la qualité des nappes wallonnes dont le profil non-saturé dépasse 8 mètres. Ce qui est le cas pour la majeur partie de la superficie de la région. Cette étude prédit plutôt une continuation des augmentations des concentrations dans de nombreuses nappes suite aux charges azotées ayant précédé l'application du PGDA. L'énergie devrait donc être mise afin de garantir l'encadrement nécessaire de tous les agriculteurs wallons pour un suivi rigoureux des normes du PGDA. Plutôt que d'augmenter la rigueur de ces normes dont la mise à jour prendrait un temps d'application considérable pour l'entièreté des agriculteurs.

De nombreuses pistes restent encore à explorer dans le cadre des études de validation des programmes de gestion de l'azote. Ceci vis-à-vis des techniques de forage en profondeur, de l'exploitation de nouveaux traceurs des processus en jeu et des analyses et modélisations réalisées sur les données récoltées.

Les techniques de forage entreprises et les analyses de sol et d'eau envisagées nous ont permis une caractérisation intéressante de notre système d'étude. Une analyse spécifique de la densité apparente aurait cependant été un atout pour l'estimation plus précise de la teneur en eau volumique et des paramètres de conductivité du sol. Quant aux traceurs hydrologiques, un monde reste à explorer dans le domaine. Nous avons privilégié les traceurs les mieux connus pour ce projet exploratoire. Un parallèle avec des recherches plus fondamentales sur l'exploitation de nouveaux polluants et isotopes de l'air, de l'eau et du sol pourra préciser les interprétations avenirs.

Il fut intéressant de confronter les résultats d'analyses statistiques, de modélisation conceptuelle et de modélisation numérique. Un travail considérable reste cependant à entreprendre dans ce sens.

En conclusion, une communication entre les pays membres sur les expériences d'études réalisées dans ce cadre est à encourager pour les années à venir, afin de catalyser notre compréhension des dynamiques temporelles en jeu et réconcilier les exigences européennes avec les réalités de terrain.

Chapitre 8

Bibliographie

Arnaud, L. and Baran, N. (2009). Détermination des vitesses de transfert de l'eau et des nitrates dans la zone non saturée de l'aquifère crayeux en haute-normandie. rapport final. Technical report, BRGM/RP-57828-FR.

Bauer, S., Fulda, C., and Schäfer, W. (2001). A multi-tracer study in a shallow aquifer using age dating tracers 3h, 85kr, cfc-113 and {SF6} — indication for retarded transport of cfc-113. *Journal of Hydrology*, 248(1–4) :14 – 34.

Brouyère, S., Dassargues, A., and Hallet, V. (2004). Migration of contaminants through the unsaturated zone overlying the hesbaye chalky aquifer in belgium : a field investigation. *Journal of Contaminant Hydrology*, 72(1) :135–164.

Cook, P. G. and Solomon, D. K. (1995). Transport of atmospheric trace gases to the water table : Implications for groundwater dating with chlorofluorocarbons and krypton 85. *Water Resources Research*, 31(2) :263–270.

Darling, W., Gooddy, D., MacDonald, A., and Morris, B. (2012). The practicalities of using cfcs and sf< sub> 6</sub> for groundwater dating and tracing. *Applied Geochemistry*, 27(9) :1688–1697.

Darling, W. G., Morris, B., Stuart, M. E., and Gooddy, D. C. (2005). Groundwater age indicators from public supplies tapping the chalk aquifer of southern england. *Water and Environment Journal*, 19(1) :30–40.

Davidson, E. A. and Janssens, I. A. (2006). Temperature sensitivity of soil carbon decomposition and feedbacks to climate change. *Nature*, 440(7081) :165–173.

Delcambre, B. and Pingot, J.-L. (2002). *CARTE GEOLOGIQUE DE WALLONIE. ECHELLE : 1/25.000. NOTICE EXPLICATIVE.*

Deneufbourg, M., Vandenberghe, C., Heens, B., and Marcoen, J. (Rapport final, juin 2013). Suivi lysimétrique de la lixiviation de l'azote nitrique et expérimentation en matière de fertilisation azotée et de successions culturales en cultures industrielles légumières. Technical report, Université de Liège, Gembloux Agro-Bio Tech. 125p.

Dunkle, S., Plummer, L., Busenberg, E., Phillips, P., Denver, J., Hamilton, P., Michel, R., and Coplen, T. (1993). Chlorofluorocarbons (ccl3f and ccl2f2) as dating tools and hydrologic tracers in shallow groundwater of the delmarva peninsula, atlantic coastal plain, united states. *Water Resources Research*, 29(12) :3837–3860.

Dávila, P. F., Külls, C., and Weiler, M. (2013). A toolkit for groundwater mean residence time interpretation with gaseous tracers. *Computers and Geosciences*, 61(0) :116 – 125.

Gariel, J. (2009). *Le tritium dans l'environnement. Synthèse des connaissances*, chapter 1. Rapport IRSN/DEI 2009-05.

IAEA (2006). *USE OF CHLOROFLUOROCARBONS IN HYDROLOGY A GUIDEBOOK - A Guidebook*. International Atomic Energy Agency Library Cataloguing.

Kestin, J. (1984). Diffusion in gases. *Phys. Chem.* Ref. Data, 13, 229.

Lambert, R., Van Bol, V., Maljean, J.-F., Peeters, A., et al. (2002). Prop'eau-sable : recherche-action en vue de la préparation et de la mise en oeuvre du plan d'action de la zone des sables bruxelliens en application de la directive européenne cee/91/676 (nitrates)-rapport final d'activités mars 1997-mars 2002. Technical report, UCL.

Małoszewski, P. and Zuber, A. (1982). Determining the turnover time of groundwater systems with the aid of environmental tracers : 1. models and their applicability. *Journal of hydrology*, 57(3) :207–231.

Mattern, S. (2009). *Mapping and source identification of groundwater pollution by nitrate. Theory and application to the Brusselian sand groundwater body.* PhD thesis, Université catholique de Louvain.

McDonnell, J. (2002). Residence time approaches using isotope tracers. In Department of Forest Engineering, O. S. U., editor, *Isotope Hydrology Shortcourse*.

Meryckx, J., DE LEENHEER, L., DONIS, C., FRIPIAT, J., LAUDELOUT, H., MANIL, G., N. A., SCHEYS, G., STENUIT, D., TAVERNIER, R., and VAN DEN HENDE, A. (1958). *Bulletin de la Société Belge de Pédologie*. Fondation Universitaire et du Ministère de l'Instruction Publique.

Moldrup, P., Olesen, T., Yamaguchi, T., Schjønning, P., and Rolston, D. (1999). Modeling diffusion and reaction in soils : Ix. the buckingham-burdine-campbell equation for gas diffusivity in undisturbed soil. *Soil Science*, 164(8) :542–551.

Orban, P., Batlle-Aguilar, J., Dassargues, A., and Brouyère, S. (2006). Etude exploratoire relative à la datation des eaux souterraines en région wallonne à l'aide du tritium. application aux nappes de hesbaye, du pays de herve, hoyoux-néblon et du tournaisis.

Pingintha, N., Leclerc, M. Y., BEASLEY Jr, J., Zhang, G., and Senthong, C. (2010). Assessment of the soil co2 gradient method for soil co2 efflux measurements : comparison of six models in the calculation of the relative gas diffusion coefficient. *Tellus B*, 62(1) :47–58.

Plummer, L., Busenberg, E., Böhlke, J., Nelms, D., Michel, R., and Schlosser, P. (2001). Groundwater residence times in shenandoah national park, blue ridge mountains, virginia, usa : A multi-tracer approach. *Chemical Geology*, 179(1-4) :93–111. cited By (since 1996)72.

Prinn, R. e. a. (2000). A history of chemically and radiatively important gases in air deduced from ale/gage/agage. *Geophys. Res.* 105, 17,751-17,792.

SBGIMR, editor (2013). *Journée d'étude : les pièges de la géologie de l'ingénieur à Bruxelles*. Société Belge de Géologie de l'Ingénieur et de Mécanique des Roches.

Schimming, C.-G. (1992). Jury, w. a. and k. roth : Transfer functions and solute movement through soil. - theory and applications -. birkhauser verlag, basel, boston, berlin 1990 ; 226 seiten, dm 65,-. isbn 3-7643-2509-7. *Zeitschrift fur Pflanzenernährung und Bodenkunde*, 155(2) :166–166.

Schriver-Mazzuoli, L. (2009). *La pollution de l'air intérieur : sources, effets sanitaires, ventilation*. DUNOD.

Schwarzenbach, R. P., Gschwend, P. M., and Imboden, D. M. (2003). *Environmental Organic Chemistry*. John Wiley and Sons, Inc.

Schwientek, M., Maloszewski, P., and Einsiedl, F. (2009). Effect of the unsaturated zone thickness on the distribution of water mean transit times in a porous aquifer. *Journal of hydrology*, 373(3) :516–526.

Selim, H. M. and Ma, L. (1998). *Physical nonequilibrium in soils : modeling and application*. CRC Press.

Tasneem, M., Ali, M., Latif, Z., Ahmad, M., Javed, T., Mashiatullah, A., and Akram, W. (2009). Salinity and metal transport through the unsaturated zone, kasur, pakistan. *Application of Isotopes to the Assessment of Pollutant Behaviour in the Unsaturated Zone for Groundwater Protection*, page 109.

Van Genuchten, M. T. (1980). A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. *Soil science society of America journal*, 44(5) :892–898.

Vereecken, H., Maes, J., Feyen, J., and Darius, P. (1989). Estimating the soil moisture retention characteristic from texture, bulk density, and carbon content. *Soil Sciences*. 148 :1–12.

Weeks, E. P., Earp, D. E., and Thompson, G. M. (1982). Use of atmospheric fluorocarbons f-11 and f-12 to determine the diffusion parameters of the unsaturated zone in the southern high plains of texas. *Water Resources Research*, 18(5) :1365–1378.

Weynants, M., Vereecken, H., and Javaux, M. (2009). Revisiting vereecken pedotransfer functions : Introducing a closed-form hydraulic model. *Vadose Zone Journal*, 8(1) :86–95.

Wiaux, F., K, V. O., Mohammadi, M. H., and Vanclooster, M. (2014). Evaluating the gradient-based method for assessing soil-atmosphere co2 fluxes. *European Journal of soil Science*.

Chapitre 9

Annexes

Annexe 1 : figures complémentaires

FIGURE 9.1 – Dispersion des teneurs moyennes en NO_3^- par site. Survey *Nitrate 2008-2011*, 899 sites (SPW-DGO3 (2014)

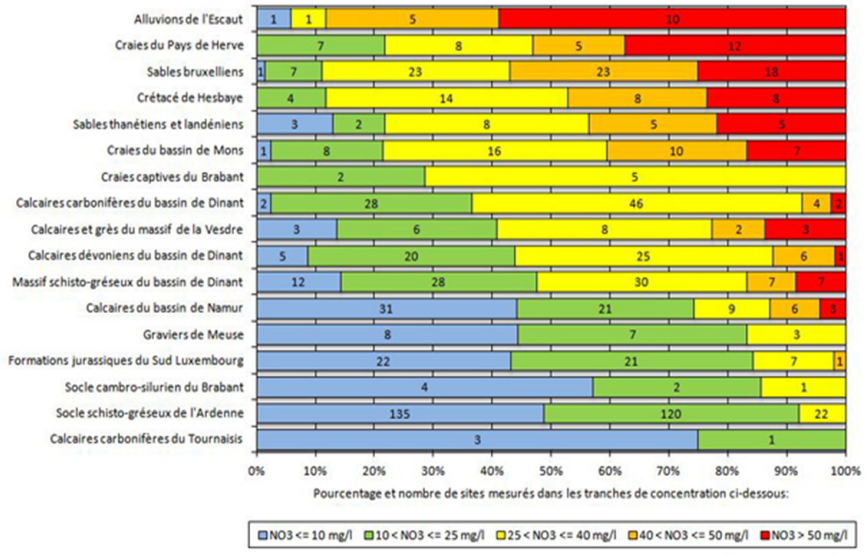


FIGURE 9.2 – Indicateurs de tendance du *Survey Nitrate* en zone vulnérable. SPW-DGO3 (2014)

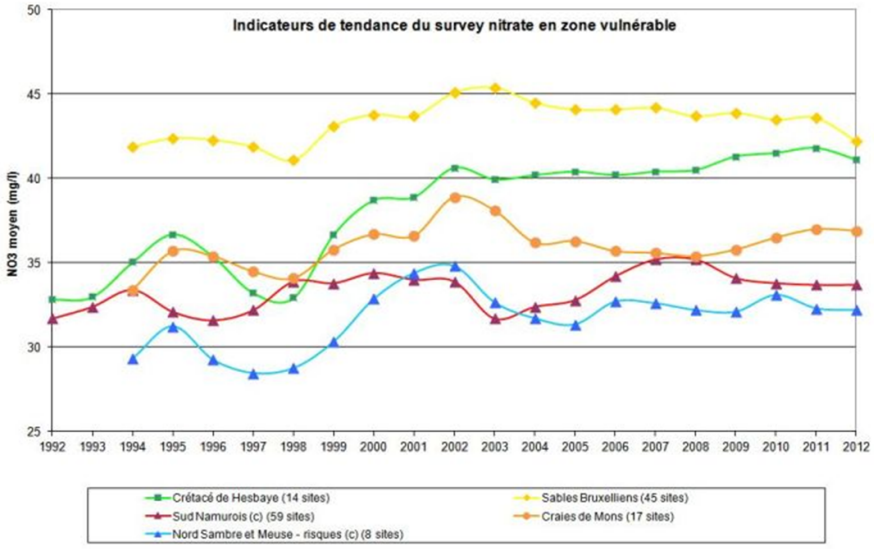


FIGURE 9.3 – Localisation des parcelles du SSA sur la carte géologique des Sables du Bruxellien

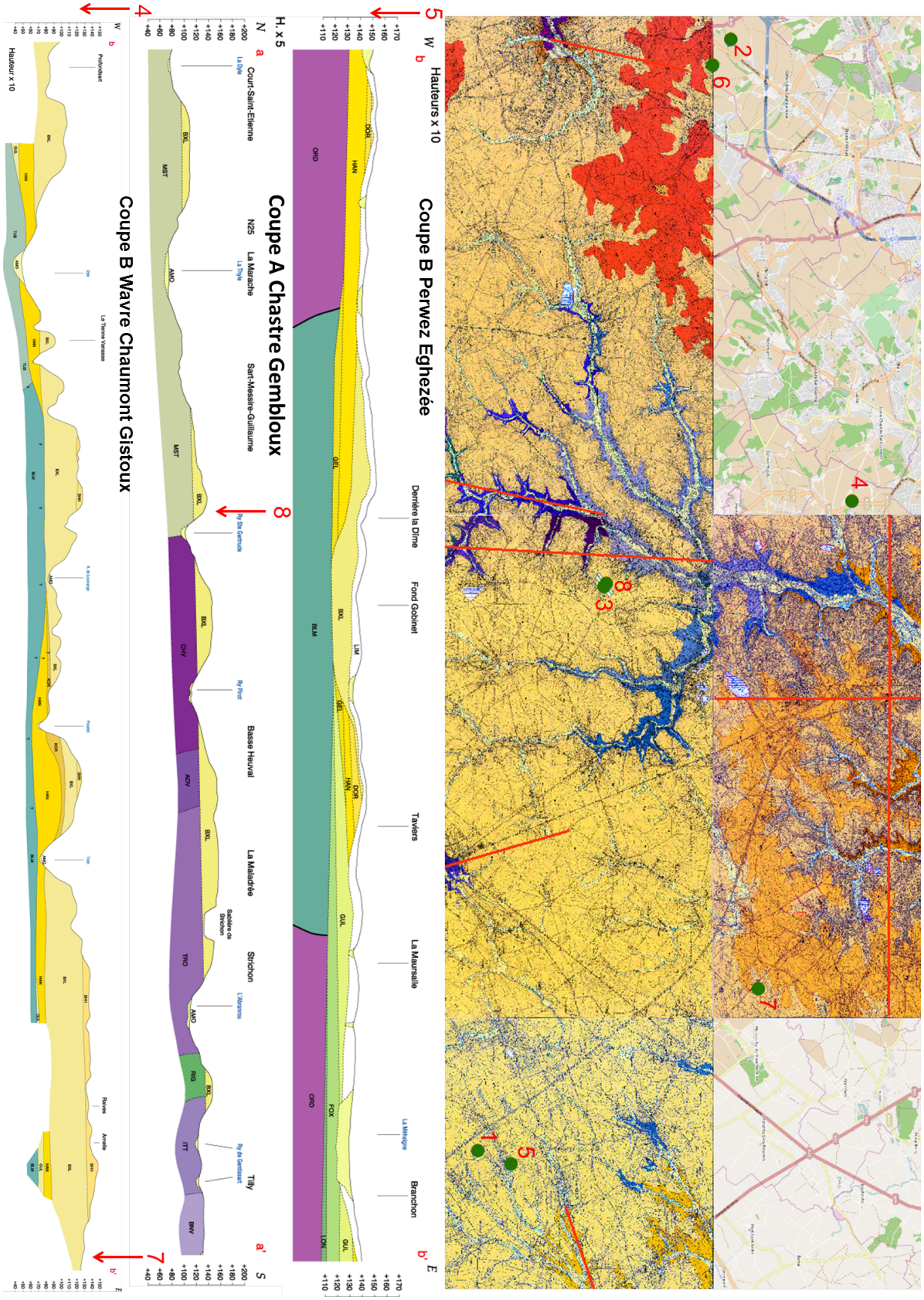


FIGURE 9.4 – Coupe géologique représentative du sous-sol de la parcelle *P_Hesbaye*

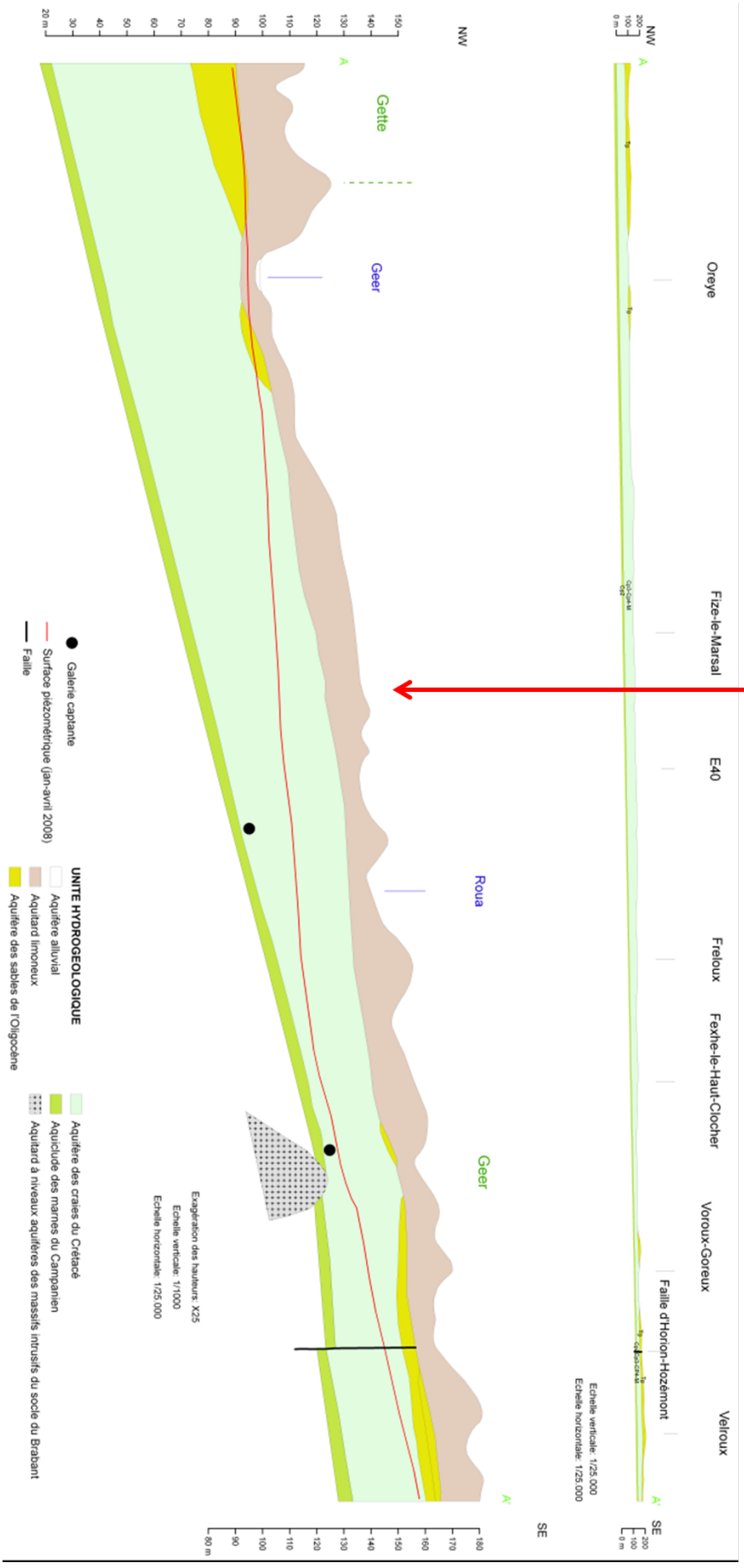


FIGURE 9.5 – Unités d'évaluation du profil de concentration en azote nitrique (Parcelle *P_SdB_OTT*)

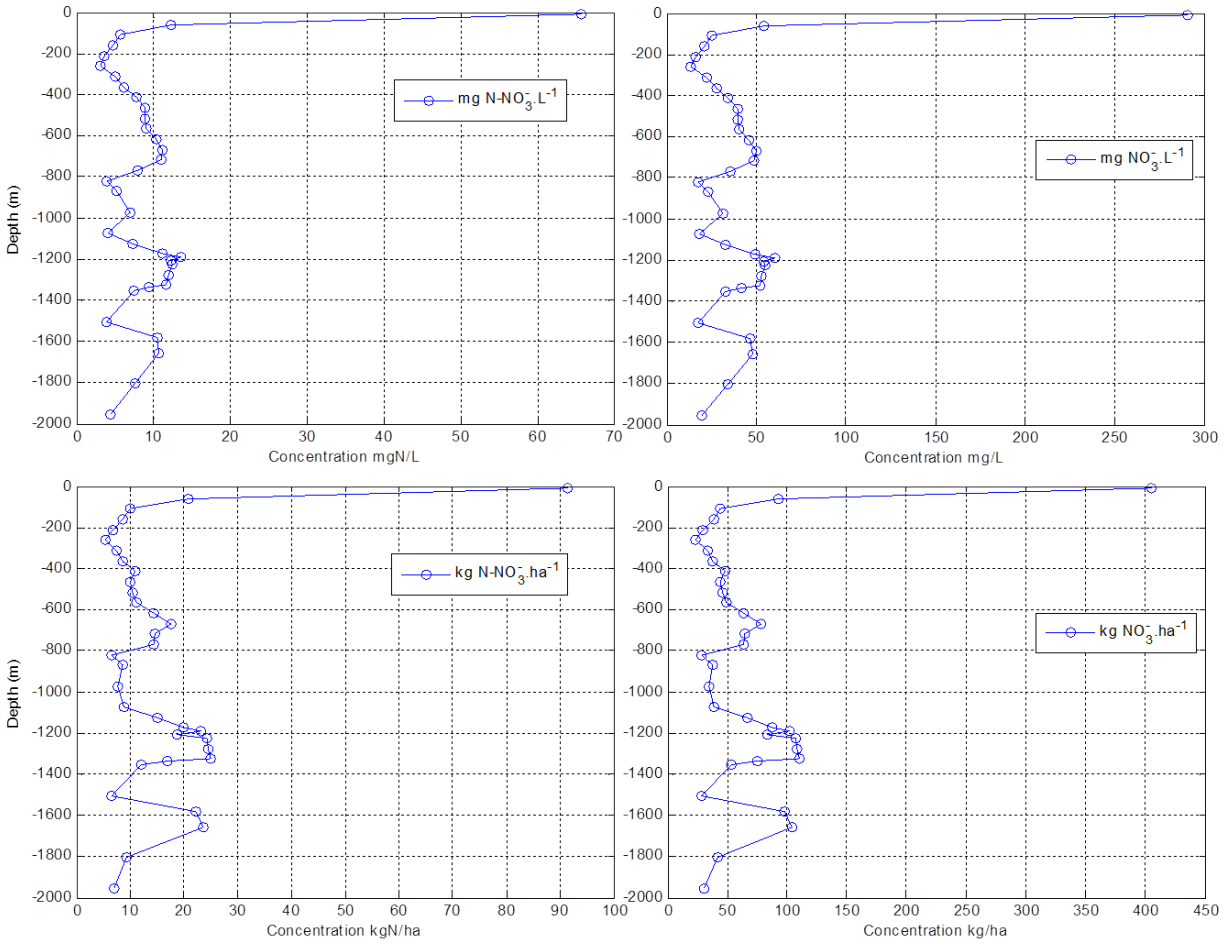


FIGURE 9.6 – Unités d'évaluation du profil de concentration en azote nitrique (Parcelle *P_SdB_CSE*)

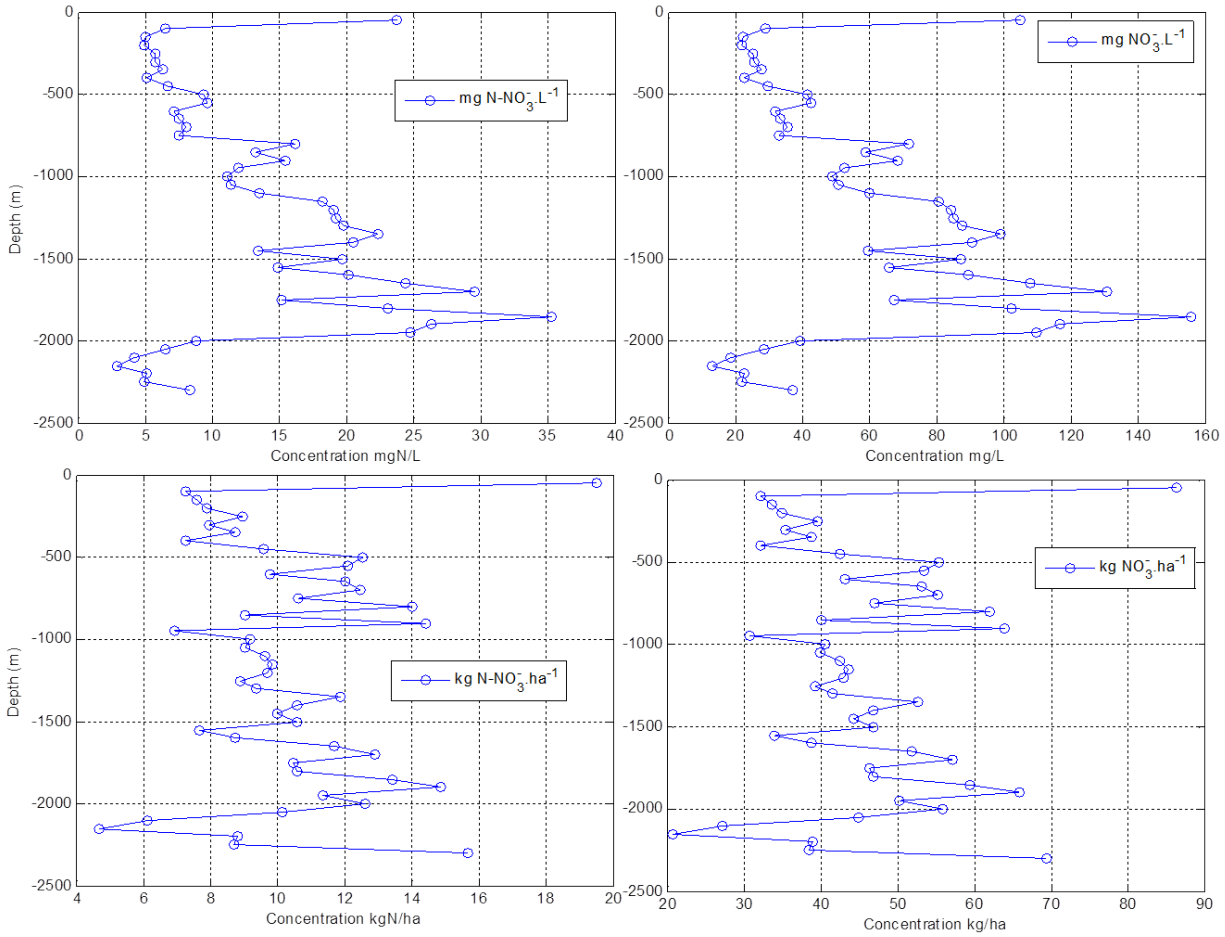
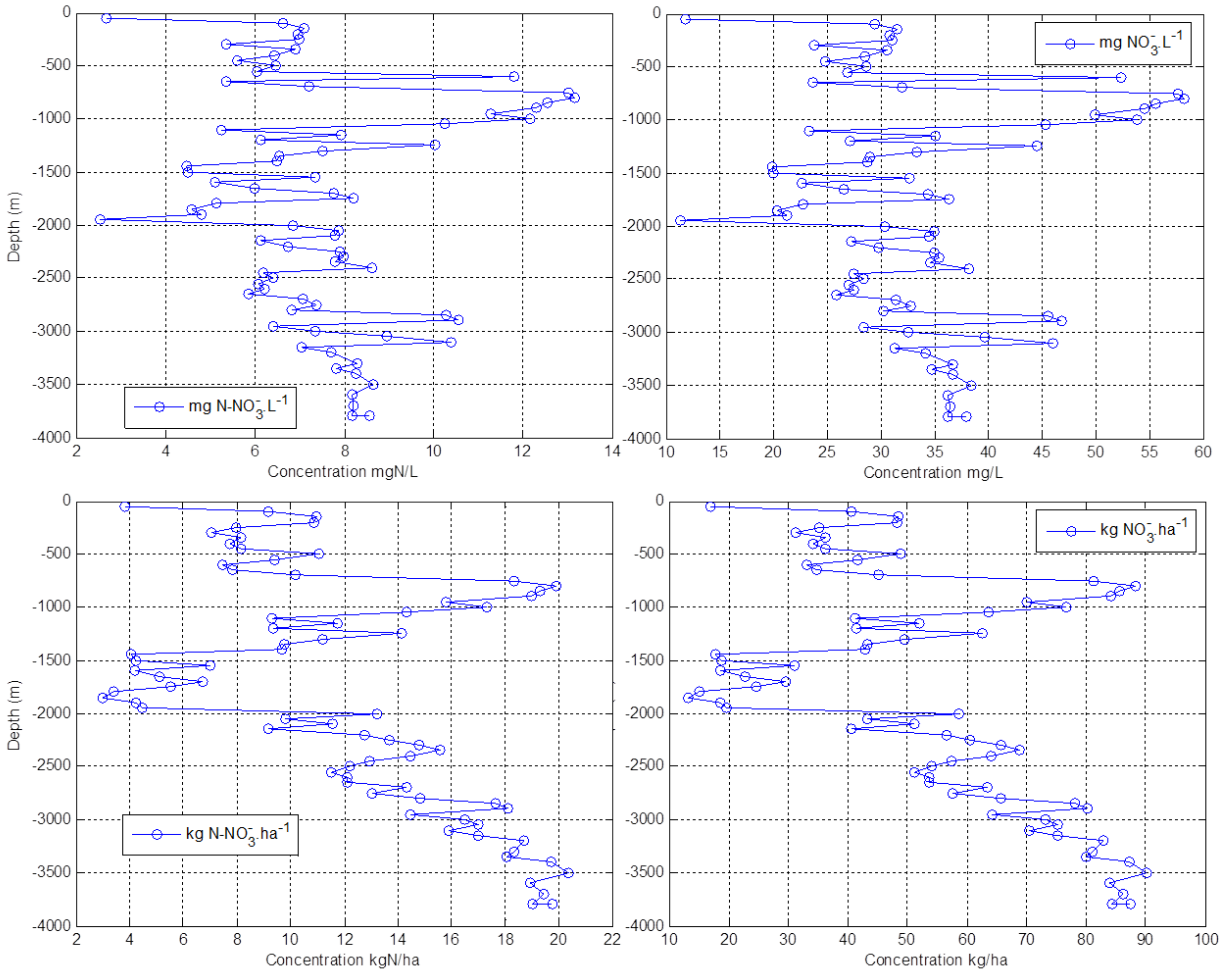


FIGURE 9.7 – Unités d'évaluation du profil de concentration en azote nitrique (Parcelle *P_Hesbaye*)



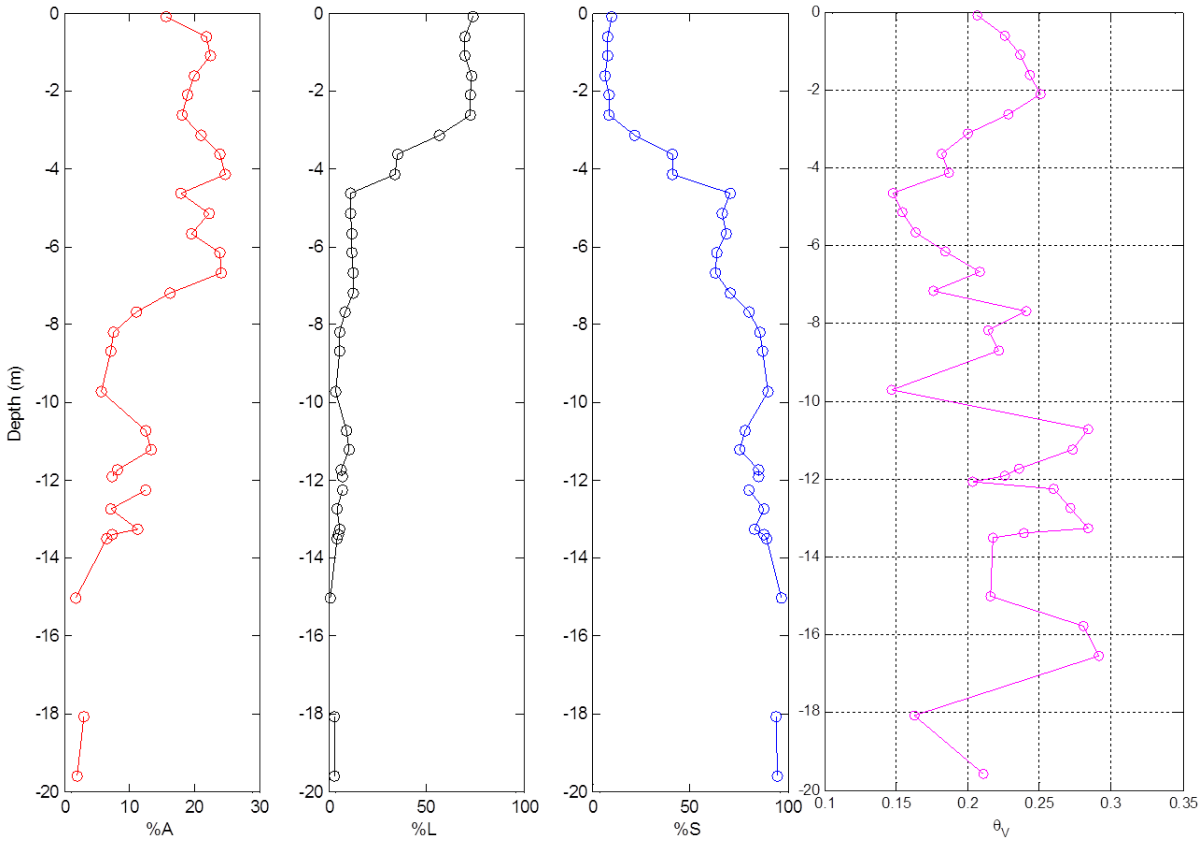


FIGURE 9.8 – Granulométrie et teneur en eau volumique (Parcelle *P_SdB_OTT*)

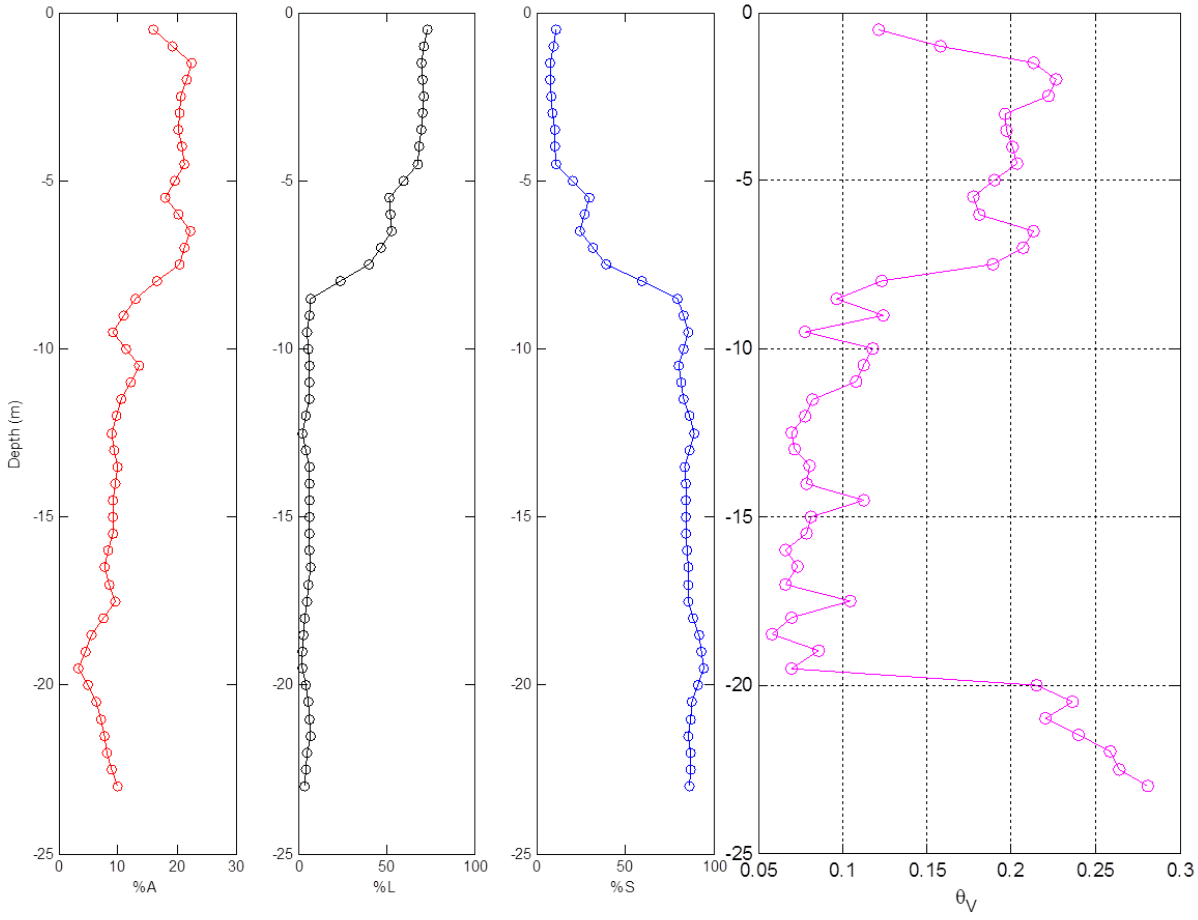


FIGURE 9.9 – Granulométrie et teneur en eau volumique (Parcelle P_SdB_CSE)

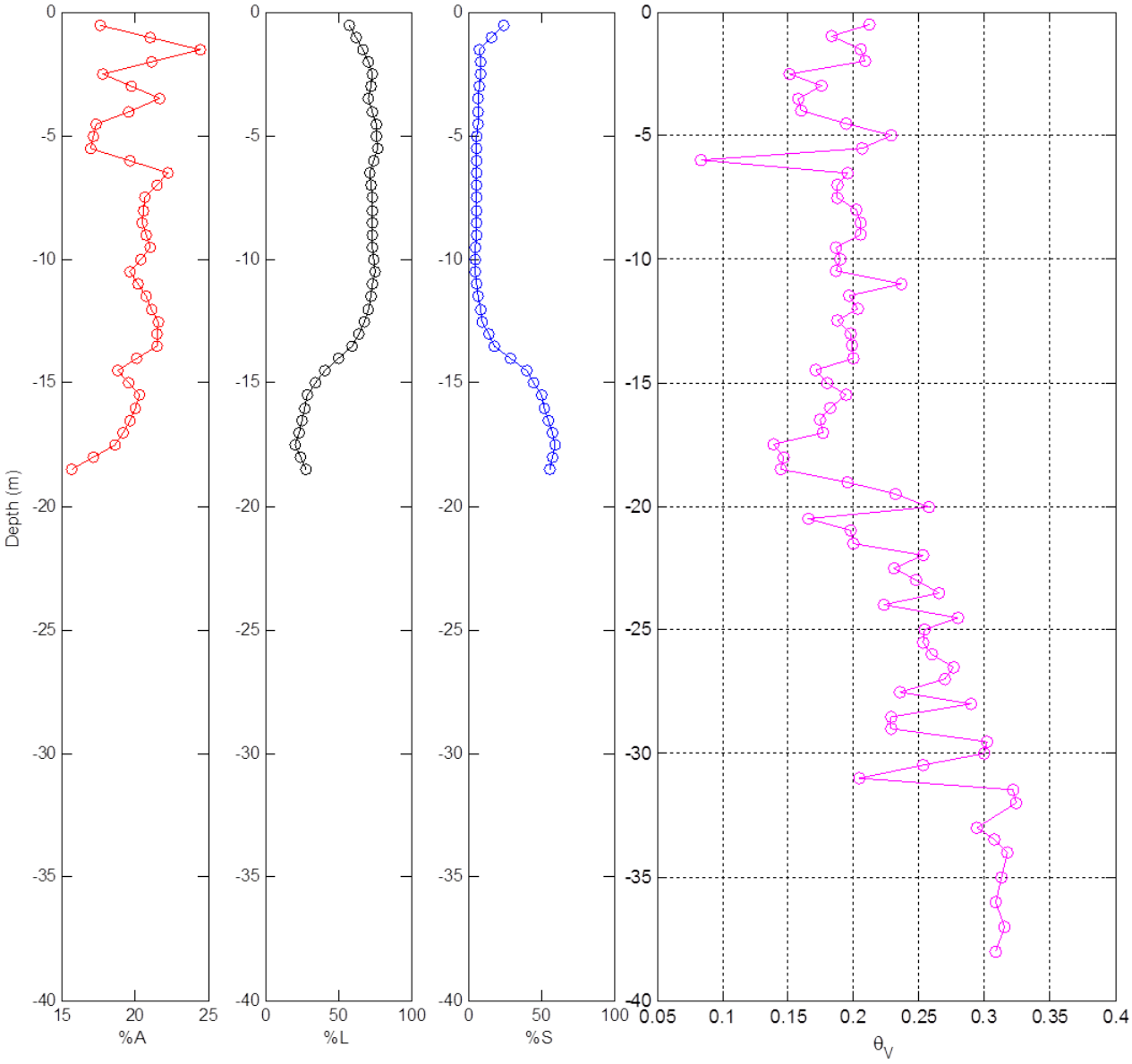


FIGURE 9.10 – Granulométrie et teneur en eau volumique (Parcelle *P_Hesbaye*)

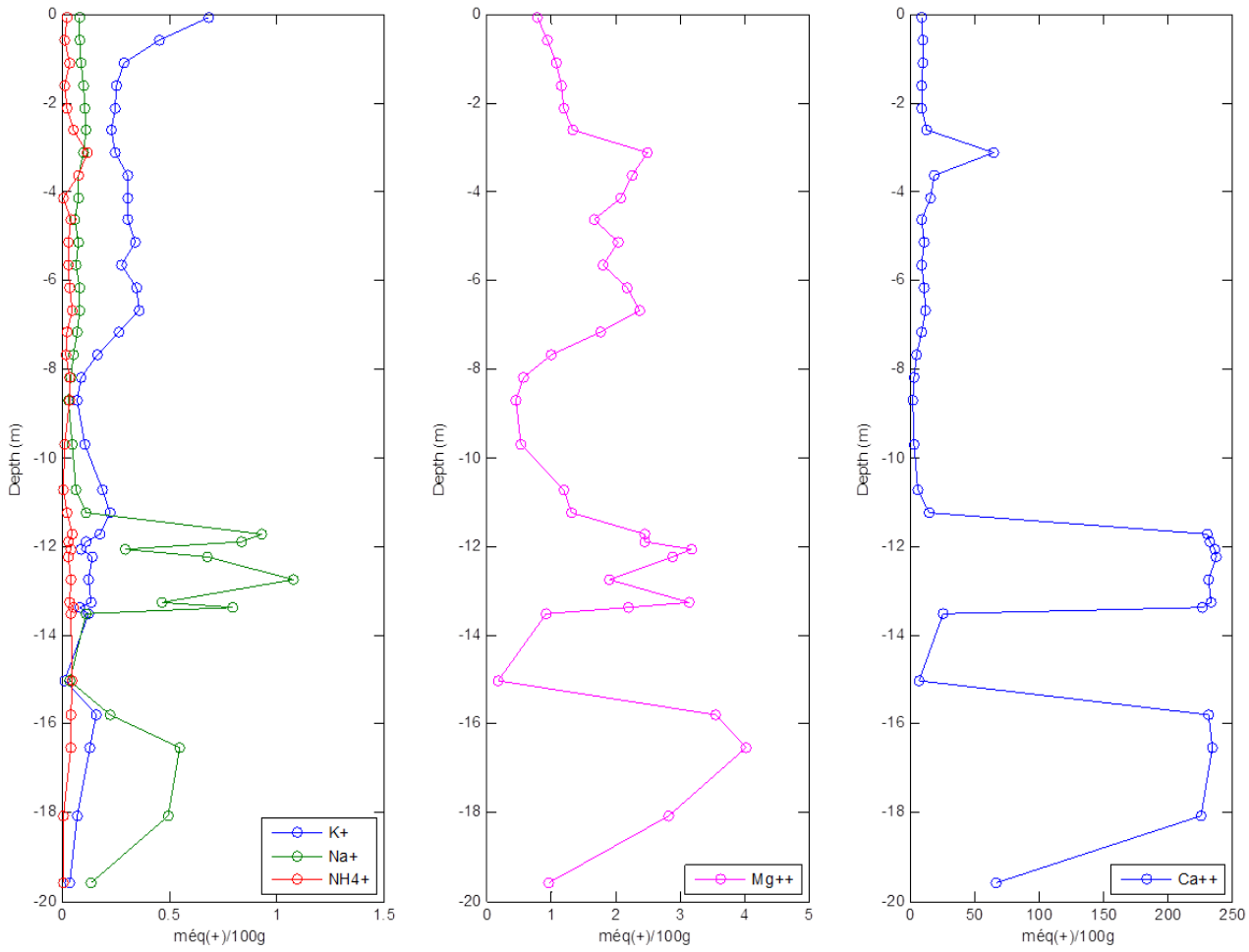


FIGURE 9.11 – Éléments majeurs (Parcelle *P_SdB_OTT*)

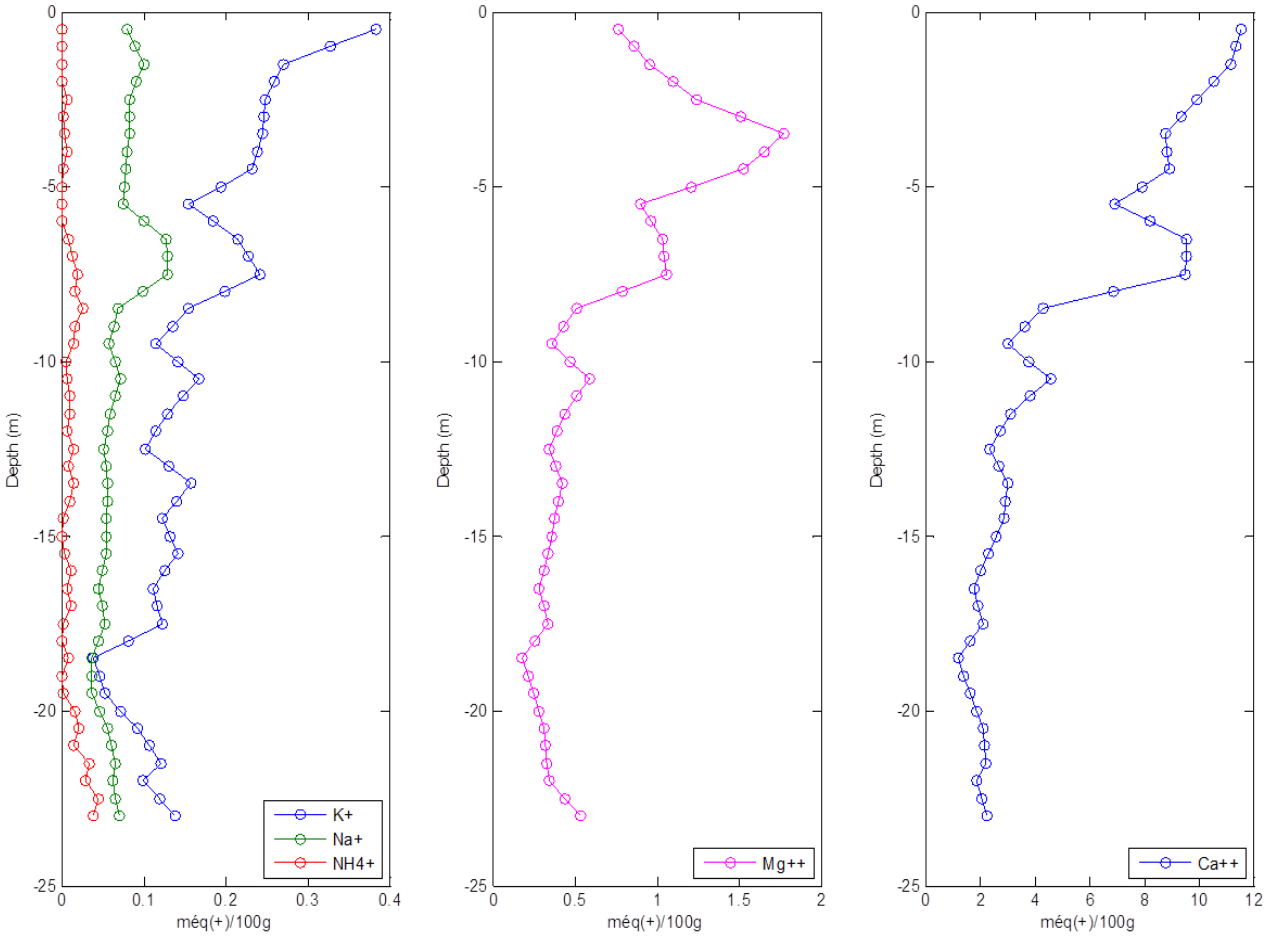


FIGURE 9.12 – Éléments majeurs (Parcelle P_SdB_CSE)

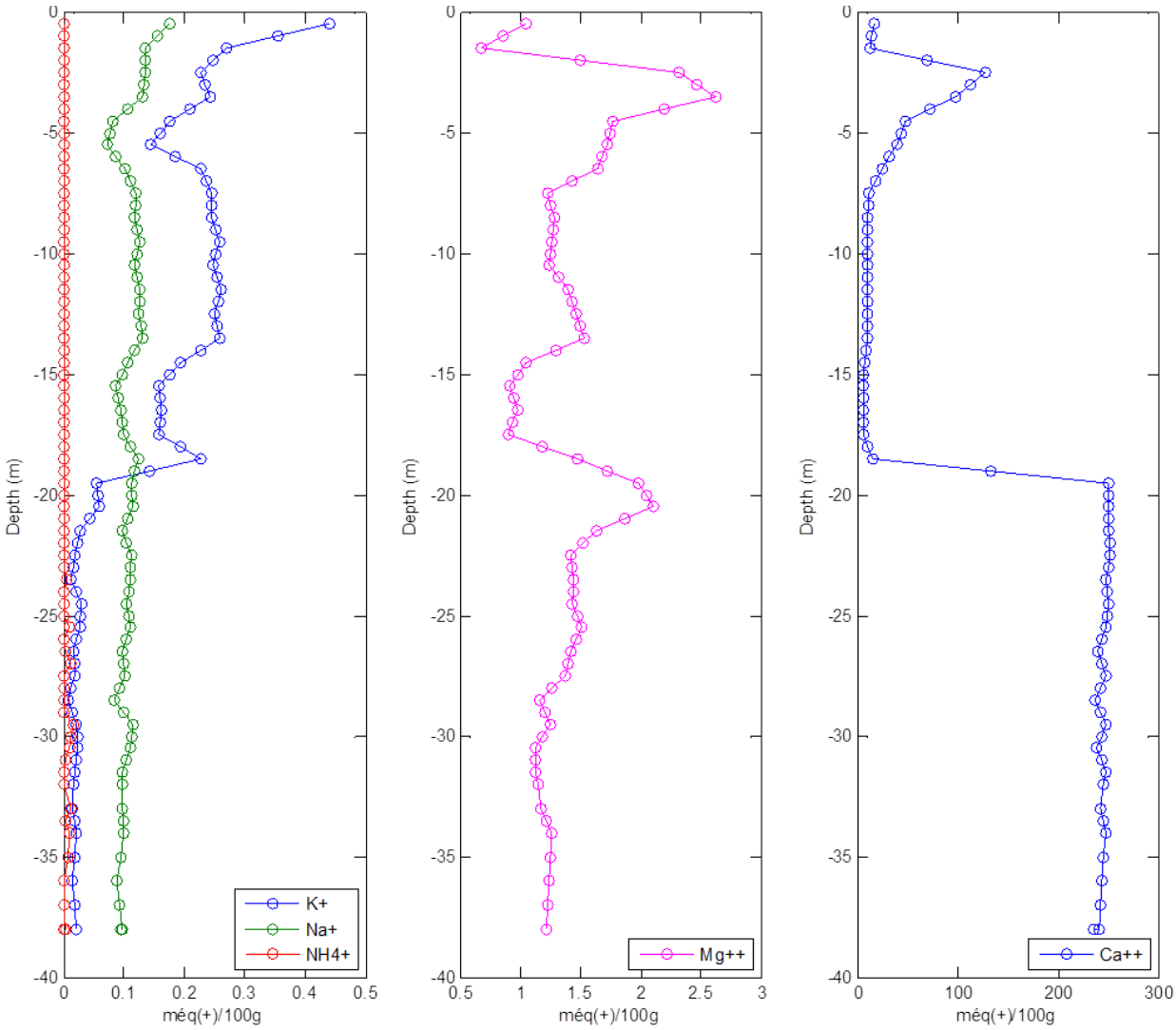


FIGURE 9.13 – Éléments majeurs (Parcelle P_SdB_SB)

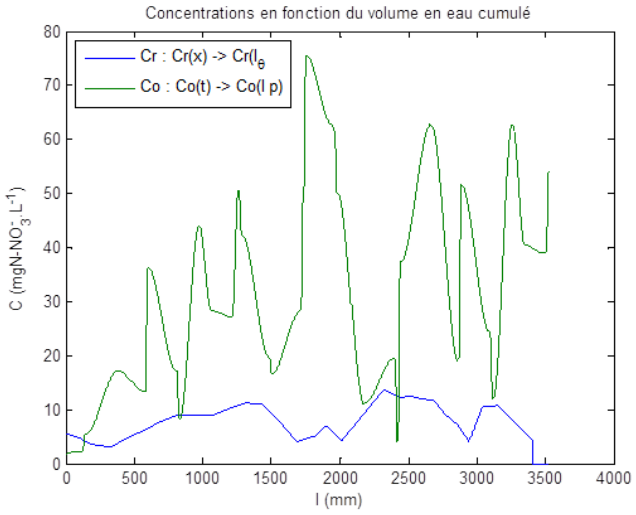


FIGURE 9.14 – Vecteurs C_o et C_r en fonction de I (Parcelle P_SdB_OTT)

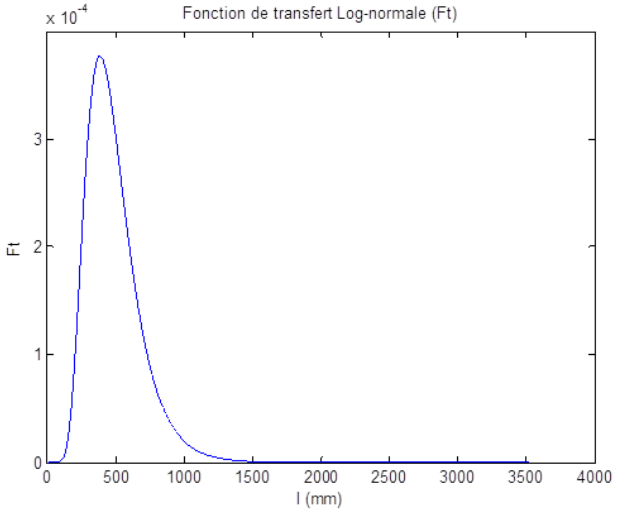


FIGURE 9.15 – FT log normale (Parcelle P_SdB_OTT)

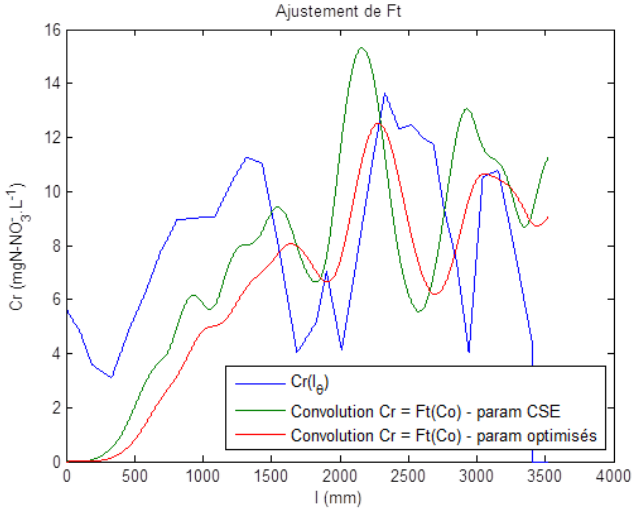


FIGURE 9.16 – Convolution C_o*FT (Parcelle P_SdB_OTT)

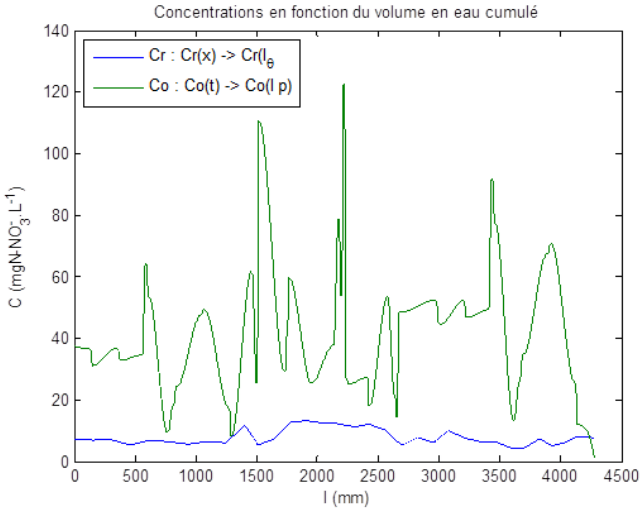


FIGURE 9.17 – Vecteurs C_o et C_r en fonction de I (Parcelle $P_Hesbaye$)

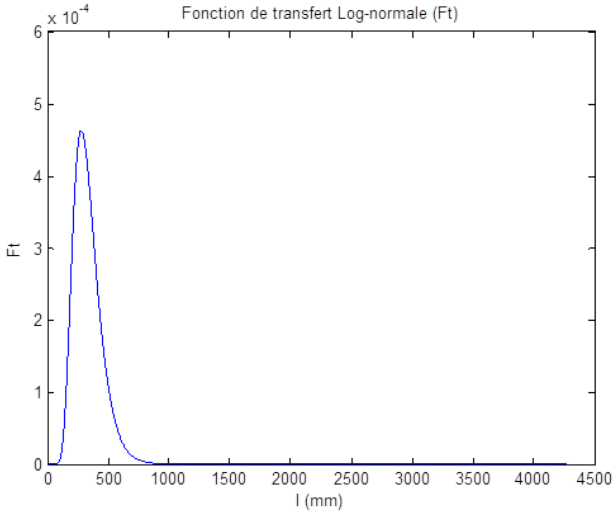


FIGURE 9.18 – FT log normale (Parcelle $P_Hesbaye$)

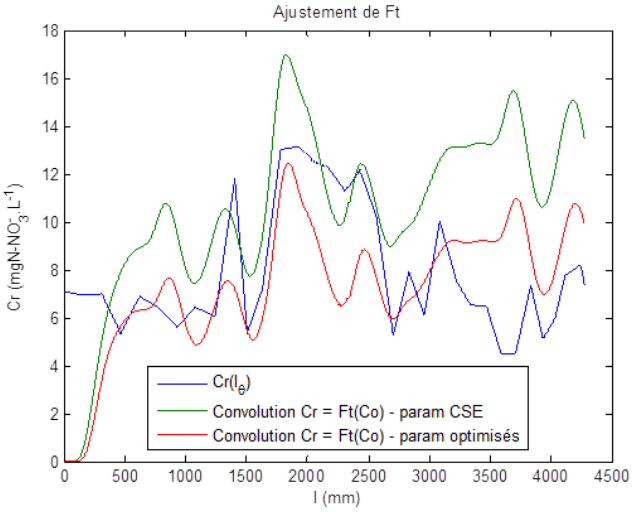


FIGURE 9.19 – Convolution C_o*FT (Parcelle $P_Hesbaye$)

FIGURE 9.20 – Âge apparent estimé par les différents traceurs pour un modèle PM

TRACER	SAMPLE ---> / NAME -->	A OTTI B	B CSE B	D CSE F
CFC-11	PM, CFC-11, YEAR	1958.78	1961.86	
	Error +years	1.56	0.82	
	Error -years	1.86	1.01	
	PM, CFC-11, MAX YEAR	1960.34	1962.68	
	PM, CFC-11, MIN YEAR	1956.92	1960.86	
CFC-12	PM, CFC-12, YEAR	1953.36	1964.02	
	Error +years	3.59	1.09	
	Error -years	5.80	1.30	
	PM, CFC-12, MAX YEAR	1956.96	1965.11	
	PM, CFC-12, MIN YEAR	1947.56	1962.72	
CFC-113	PM, CFC113, YEAR	1961.00	1965.83	
	Error +years	12.75	9.05	
	Error -years			
	PM, CFC113, MAX YEAR	1973.74	1974.89	
	PM, CFC113, MIN YEAR			
SF_6	PM-SF6, YEAR	1971.23	1971.26	
	Error +years	5.47	5.46	
	Error -years	40.23	40.26	
	PM-SF6, MAX YEAR	1976.70	1976.72	
	PM-SF6, MIN YEAR	1931.00	1931.00	
^3H	PM-3H, YEAR			1984.37
	Error +years			
	Error -years			
	PM-3H, MAX YEAR			
	PM-3H, MIN YEAR			
	AVERAGE, ALL TRACERS	***1958.87***	***1963.36***	***1984.37***
	MAX YEAR, ALL TRACERS			
	MIN YEAR, ALL TRACERS	*1931.00*	*1931.00*	*1984.37*

Projet Carottage-PGDA

Résumé





Septembre 2014