

Document public



# Diagnostic des sources et transferts de la pollution en nitrates par une approche isotopique sur le champ captant d'AIRON-SAINT-VAAST



Rapport final

BRGM/RP-68656-FR



# Diagnostic des sources et transferts de la pollution en nitrates par une approche isotopique sur le champ captant d'AIRON-SAINT-VAAST

Rapport final

BRGM/RP-68656-FR

Décembre 2018

Étude réalisée dans le cadre des opérations  
de Service public du BRGM

W. Kloppmann, M. Parmentier, N. Surdyk

**Vérificateur :**

Nom : Lise CARY

Date : 05/02/2019



**Approbateur :**

Nom : Pierre PANNET

Date : 07/02/2019



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

**Mots-clés** : Nappe de la craie, Pas-de-Calais, Hauts-de-France, Airon-Saint-Vaast, nitrates, isotopes, azote, bore, oxygène, datation, CFC, SF<sub>6</sub>

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

**W. Kloppmann, M. Parmentier, N. Surdyk** (2018) – Diagnostic des sources et transferts de la pollution en nitrates par une approche isotopique sur le champ captant d'AIRON-SAINT-VAAST. Rapport final BRGM/RP-68656-FR, 66 p, 26 fig., 8 tabl.

## Synthèse

Cette étude, cofinancée par la ville de Berck-sur-mer et la subvention pour charge de service public (SCSP) du BRGM, vise à mieux contraindre l'origine et les transferts de la pollution azotée des eaux souterraines dans l'Aire d'Alimentation de Captages (AAC) du champs captant situé sur le territoire de la commune d'Airon-Saint-Vaast dans le département du Pas-de-Calais.

Elle met en œuvre une méthodologie qui combine des traceurs chimiques ainsi que les isotopes environnementaux de l'azote et de l'oxygène des nitrates, du bore et du carbone inorganique dissous avec des traceurs du temps de résidence de l'eau.

La première conclusion de cette étude est qu'un faisceau de preuves indique un impact direct de l'ancienne décharge à Montodion (site de l'ancienne carrière de Becquelin-Coulon) sur les captages F1, F2 et F4.

Par ailleurs, alors que les teneurs en nitrates semblent se stabiliser pour les captages à des niveaux encore importants, entre 40 et 60 mg/L, les points en dehors de la vallée sèche montrent plutôt des concentrations plus élevées par rapport aux années 80 et 90. Une majorité des points de mesure sur les plateaux dépasse désormais les 50 mg/L. Cette tendance s'expliquerait en partie par un stockage dans le sol de l'azote sous forme organique avant d'être nitrifié à nouveau et par des transferts lents dans la zone non saturée. En somme, le système sol-zone non saturée-nappe présente une inertie qui retarde dans le temps l'apparition des bénéfices des actions de remédiation sur l'AAC.

Certains secteurs dans la vallée sèche qui, dans le passé, présentaient les teneurs les plus élevées en nitrates, ont vu leurs concentrations baisser. Il faut néanmoins prendre en compte que ces points pourraient, du fait des circulations plus rapides, présenter des variations saisonnières importantes, non détectables avec une seule campagne de mesures.

Les résultats permettent de progresser dans l'identification des sources de pollution en nitrates des captages et à l'échelle de l'AAC :

- Les isotopes de l'azote indiquent des sources différentes pour les plateaux et la vallée sèche en aval de l'ancienne décharge sans que l'on puisse clairement différencier entre sources organiques et engrais minéraux.
- Les isotopes du bore semblent plutôt indiquer des sources organiques prédominantes sur les plateaux alors que le point d'observation de la décharge ainsi que les points d'eau dans la vallée sèche tendent vers des valeurs caractéristiques de borates, contenus par exemple dans les engrais minéraux ou les lessives.

Pour connaître le temps de réponse de l'AAC par rapport aux mesures prises, la dynamique de trois compartiments doit être prise en compte :

- (1) le sol agricole où la transformation et la fixation des apports en azote organique peuvent constituer un stock qui ne se libérera que très progressivement, ce qui peut engendrer des délais considérables (jusqu'à quelques décennies) entre un arrêt de l'application et la fin du lessivage vers les nappes (après minéralisation et nitrification) ;
- (2) la zone non saturée (ZNS) où le flux matriciel dans la porosité interstitielle de la craie est lent (ordre de grandeur : 1 m/an). Nous n'excluons pourtant pas des transferts rapides en cas d'évènements pluvieux exceptionnels (voir Picot-Colbeaux *et al.*, 2017) qui peuvent

atteindre la nappe plus rapidement en faisant varier son niveau piézométrique. Ces variations de niveau peuvent libérer une partie de l'azote stocké dans la zone non saturée, mécanisme qui expliquerait la réaction simultanée des teneurs en nitrates et variations piézométriques pour certaines années ;

(3) la nappe elle-même avec des transferts de l'ordre de la décennie.

Pour ce qui concerne les captages, le temps de résidence moyen estimé se composerait d'apports plus lents par la recharge sur les plateaux et de transferts plus rapides au sein de la vallée sèche dans le périmètre direct des captages et en amont. L'ancienne carrière Becquelin-Coulon pourrait favoriser les circulations rapides vers la nappe, compte-tenu de l'enlèvement de toute couverture protectrice (limons de plateau) et d'une perturbation importante de la ZNS.

Enfin des recommandations sont formulées, avec en particulier les points suivants :

Comme nous disposons d'indications claires de l'influence de l'ancienne décharge sur les captages, un **renforcement des efforts d'investigation et de remédiation sur l'aire de l'ancienne carrière Becquelin-Coulon** et la zone entre carrière et captages semble justifié.

Il nous semble probable qu'une partie des circulations arrivants aux captages soit rapide. La **karstification de la craie**, notamment sous et autour de la vallée sèche, pourrait favoriser de telles **circulations rapides**. Une investigation combinant des observations géologiques (formes karstiques comme bétoires, dolines etc.), éventuellement géophysiques et hydrogéologiques, permettrait de mieux comprendre les connexions entre ancienne carrière et captages.

Un point particulièrement sensible est le **piézomètre PZ11N** en amont de Montodion qui a révélé les **concentrations les plus élevées en nitrates de l'AAC** (73,5 mg/L). Les analyses indiquent plutôt une source organique. Il semble important de savoir d'où viennent ces concentrations (pratiques agricoles en amont hydraulique, habitations...).

Compte-tenu de l'évolution observée des concentrations en nitrates sur l'ensemble de l'AAC, nous recommandons un suivi régulier (1 à 2 campagnes par an) sur les points investigués dans cette étude. Ces mesures permettraient d'évaluer l'efficacité des actions de remédiation sur l'ensemble du bassin. En parallèle, les variations saisonnières à court terme devraient être suivies de façon automatisée par capteurs de nitrate dans des ouvrages sélectionnés et dans un captage, dans un souci d'évaluer la vulnérabilité des captages par rapport aux apports saisonniers, notamment par ruissellement et infiltration dans la vallée.

Bien que non prévu à la convention, un suivi piézométrique a été initié sur l'AAC des captages d'Airon-Saint-Vaast. Celui-ci mériterait d'être poursuivi afin de disposer d'une chronique piézométrique représentative de ce secteur.

# Sommaire

<b>1. Objectifs de l'étude .....</b>	<b>9</b>
<b>2. Cadre de l'étude.....</b>	<b>11</b>
2.1. DELIMITATION DU SECTEUR ETUDIE ET CONTEXTE HYDROGEOLOGIQUE.....	11
2.1.1. Cadre hydrogéologique général .....	11
2.1.2. Fracturation / Karstification.....	13
2.2. EVOLUTION DES CONCENTRATIONS EN NITRATES .....	15
2.3. SOURCES POTENTIELLES DE POLLUTION .....	16
2.3.1. Agriculture .....	16
2.3.2. Assainissement .....	17
2.3.3. Décharges .....	17
2.4. LES POINTS D'ACCES A LA NAPPE .....	19
2.4.1. Les nouveaux piézomètres.....	19
2.4.2. Suivi piézométrique .....	20
2.4.3. Choix des points d'échantillonnage .....	21
<b>3. Outils appliqués .....</b>	<b>23</b>
3.1. METHODOLOGIE .....	23
3.1.1. Isotopes de l'azote ( <sup>15</sup> N, <sup>14</sup> N) et de l'oxygène ( <sup>18</sup> O, <sup>16</sup> O) des nitrates (NO <sub>3</sub> ):.....	23
3.1.2. Isotopes du bore ( <sup>11</sup> B, <sup>10</sup> B) .....	24
3.1.3. Estimation des temps de résidence des eaux souterraines par les teneurs en CFCs et SF <sub>6</sub> .....	24
3.2. METHODES ANALYTIQUES .....	26
<b>4. Résultats .....</b>	<b>29</b>
4.1. PARAMETRES PHYSICO-CHIMIQUES ET ELEMENTS MAJEURS .....	29
4.2. RESULTATS CHIMIQUES .....	30
4.3. RESULTATS ISOTOPIQUES (N, O, B).....	32
4.4. CONCENTRATIONS EN GAZ DISSOUS .....	33
<b>5. Discussion .....</b>	<b>35</b>
5.1. SITUATION ACTUELLE DE LA CONTAMINATION EN NITRATES.....	35
5.2. CHIMIE DES EAUX .....	36
5.2.1. Physico-chimie et éléments majeurs .....	36

5.2.2. Eléments traces .....	37
5.3. ORIGINES ET TRANSFORMATIONS DE L'AZOTE LORS DU TRANSPORT .....	38
5.3.1. Les isotopes de l'azote (NO <sub>3</sub> ) : traçage direct de la pollution azotée .....	38
5.3.2. Quels sont les processus de stockage, de transformation et de transport de l'azote vers la nappe ? .....	40
5.3.3. Processus de dénitrification .....	43
5.3.4. Isotopes du bore : Quel est le rôle respectif des sources agricoles et des eaux usées ? .....	43
5.4. CFCS ET SF <sub>6</sub> : INDICATEURS DE CONTAMINATION PONCTUELLE ET DU TEMPS DE RESIDENCE DE L'EAU .....	47
<b>6. Conclusions et perspectives .....</b>	<b>53</b>
6.1. CONCLUSIONS .....	53
6.2. PERSPECTIVES ET RECOMMANDATIONS .....	55
<b>7. Bibliographie .....</b>	<b>57</b>

## Liste des illustrations

Figure 1 : Zone d'alimentation du champ captant d'Airon-Saint-Vaast.....	10
Figure 2 : Situation de l'aire d'alimentation des captages (AAC) d'Airon-Saint-Vaast dans son contexte géologique (carte géologique 1 :50 000) et hydrogéologique (carte piézométrique de 1984). .....	11
Figure 3 : Chronique piézométrique au point 00167X0001/P1, sur la commune de Saint-Aubin.....	13
Figure 4 : Localisation des cuvettes d'effondrement et des cavités non minières (source : BRGM).....	14
Figure 5 : Exemple d'effondrement de faible ampleur survenant en plein champ qui ne sont actuellement pas recensés (photo prise sur l'AAC d'Airon Saint-Vaast en 2016). ....	14
Figure 6 : Concentrations en nitrate pour les captages F1, F2, F3 et F4 (Source : ADES, extraction du 16/09/2018). ....	16
Figure 7 : Emplacement des parcelles en 2013 sur Airon-Saint-Vaast. ....	17
Figure 8 : Photos prises de l'ancienne carrière Becquelin-Coulon (Montodion) par le Groupement de l'Environnement de l'Arrondissement de Montreuil-sur-Mer en 1995 (Delcambre <i>et al.</i> , 2011).....	18
Figure 9 : Coupes techniques des ouvrages de l'AAC d'Airon-Saint-Vaast. Les 4 captages sont à gauche et les piézomètres sont classés selon leur niveau piézométrique de février 2018. NS : Niveaux statiques relevés en septembre 2017 et en février 2018. Sont indiqués également les profondeurs des pertes de liquide de forage lors de la foration (perte) et les arrivées d'eau identifiées lors d'essais au micro-moulinet (arr. eau). ....	20
Figure 10 : Suivis piézométriques à Saint Aubin (00167X0001) et sur deux nouveaux piézomètres de l'AAC d'Airon-Saint-Vaast (BSS003VXOK/PZ5N et BSS003VWHI/PZ68N).....	21
Figure 11: Localisation des points d'échantillonnage en février 2018.....	22
Figure 12 : Courbes des concentrations atmosphériques des gaz synthétiques CFC et SF <sub>6</sub> depuis leur première émission par l'homme.....	25
Figure 13 : Principe de l'estimation du temps de résidence à partir des teneurs en gaz atmosphériques (CFCs et SF <sub>6</sub> ) .....	26
Figure 14 : Schéma d'un modèle de recharge correspondant à celui retenu pour la craie de la Somme : Recharge à travers une zone non saturée épaisse puis transfert par des cheminements plus ou moins longs jusqu'à l'ouvrage prélevé. Le « déclenchement du chronomètre » correspond au moment où l'eau d'infiltration est isolée de l'atmosphère.....	26
Figure 15 : Répartition des teneurs en nitrates en octobre 1984 (en haut, Préaux et Caulier, 1985) et mars 1997 (en bas, Lacherez <i>et al.</i> , 1997).....	35
Figure 16 : Répartition des teneurs en nitrates (13-14 février 2018). ....	36
Figure 17: Diagramme de Piper des eaux souterraines du secteur d'étude.....	37
Figure 18 : Rapports isotopiques ( $\delta^{15}\text{N}$ exprimés en ‰ vs. AIR) de l'azote dissous versus les teneurs en nitrates dans les eaux superficielles et souterraines du secteur étudié. Comparaison avec les rapports isotopiques des pôles polluants potentiels (études BRGM et données bibliographiques). Explications des modèles de dénitrification (courbes pointillées) dans le texte (chapitre 5.3.3). ....	39
Figure 19 : Rapports isotopiques ( $\delta^{15}\text{N}$ exprimés en ‰ vs. AIR) de l'azote dissous versus les teneurs en nitrates dans les eaux superficielles et souterraines du secteur étudié. Détail de la Figure 16. ....	40
Figure 20 : Rapports isotopiques de l'azote ( $\delta^{15}\text{N}$ ) et de l'oxygène ( $\delta^{18}\text{O}$ ) des nitrates dans les eaux superficielles et souterraines du secteur étudié. Comparaison avec les signatures de différentes sources d'azote (Kendall <i>et al.</i> , 2007). ....	41

Figure 21 : Concept des transformations et du transport de l'azote dans le sol de l'AAC Airon-Saint-Vaast. Le chemin présumé des transformations de l'azote est indiqué par les flèches vertes.	42
Figure 22 : Rapports isotopiques ( $\delta^{11}\text{B}$ exprimés en ‰ vs. NBS951) du bore dissous dans les drains et eaux souterraines du secteur étudié vs. les concentrations en nitrates. Comparaison avec les rapports isotopiques des pôles polluants potentiels (cette étude et données bibliographiques).....	45
Figure 23 : Rapports isotopiques ( $\delta^{11}\text{B}$ exprimés en ‰ vs. NBS951) du bore dissous dans les drains et eaux souterraines du secteur étudié vs. les concentrations en bore. Comparaison avec les rapports isotopiques des pôles polluants potentiels (cette étude et données bibliographiques). Lignes pointillées : modèle de mélange entre MTDN1 et PZ11N et PZ2 avec pourcentages de la contribution de MTDN1. ....	46
Figure 24 : Concentrations en CFC-12 (chiffre gauche) et CFC-11 (chiffre droite) dans les piézomètres et captages analysés. Les valeurs pour Montodion (MTDN1) sont des minimas. ....	48
Figure 25 : Concentrations calculées du SF <sub>6</sub> et du CFC-12 (en parts par billion volumiques, 10 <sup>-12</sup> ) dans la phase gazeuse en équilibre avec les échantillons analysés. ....	48
Figure 26 : Concentrations calculées du SF <sub>6</sub> et du CFC-113 (en parts par billion volumiques, 10 <sup>-12</sup> ) dans la phase gazeuse en équilibre avec les échantillons analysés. ....	49

## Liste des tableaux

Tableau 1 : Description des nouveaux piézomètres réalisés à l'automne 2017 sur l'AAC d'Airon-Saint-Vaast.....	19
Tableau 2 : Points d'échantillonnage en février 2018. ....	22
Tableau 3 : Paramètres physico-chimiques mesurés obtenus sur les drains et eaux souterraines du secteur d'étude .....	29
Tableau 4 : Résultats chimiques (composés majeurs) obtenus sur les drains et eaux souterraines du secteur d'étude .....	30
Tableau 5 : Résultats chimiques (éléments mineurs et traces) obtenus sur les drains et eaux souterraines du secteur d'étude .....	31
Tableau 6 : Résultats isotopiques obtenus sur les drains et eaux souterraines du secteur d'étude .....	32
Tableau 7 : Résultats obtenus sur les concentrations en gaz dissous (CFCs, SF <sub>6</sub> ) dans les eaux souterraines du secteur d'étude .....	33
Tableau 8 : Estimations des temps de résidence (TDRM en ans) par les CFCs et le SF <sub>6</sub> .....	52

# 1. Objectifs de l'étude

Le bassin versant d'Airon-Saint-Vaast (62) abrite au sein de l'aquifère de la craie séno-turonienne, partiellement karstifiée, recouverte de limons et argiles à silex, une ressource en eau importante, permettant d'alimenter les quatre forages du champ captant (Figure 1) ayant une production moyenne annuelle de l'ordre de 2 Mm<sup>3</sup>. Tout le bassin d'alimentation des captages (BAC) a été classé comme zone vulnérable en 1992 et des mesures d'amélioration des pratiques agricoles ont été entreprises. On constate néanmoins, depuis les années 1970, une augmentation des concentrations en nitrates, dépassant pour les quatre captages le seuil de 50 mg/L et avec des pics supérieurs à 65 mg/L pour le forage F4.

En 2011, un Diagnostic Territorial Multi-Pressions (DTMP) et l'élaboration d'un programme d'actions ont été réalisés sur le champ captant d'Airon-Saint-Vaast par l'entreprise ANTEA (Delcambre *et al.*, 2011). En matière de lutte contre les pollutions diffuses, le champ captant d'Airon-Saint-Vaast fait partie des 6 sites de production d'eau destinée à la consommation humaine qui ont été désignés prioritaires au titre du Grenelle de l'environnement dans la région Nord – Pas-de-Calais en 2013. En 2015, la DDTM 62 a jugé nécessaire de réaliser un inventaire des ouvrages souterrains accessibles (Crales de Paulet, 2015).

Sur cette base, le service d'eau potable de la ville de Berck-sur-Mer (gérant les captages d'Airon-Saint-Vaast) a sollicité l'aide du BRGM pour mieux comprendre l'origine et l'évolution des concentrations en nitrate et en produits phytosanitaires à l'échelle du bassin versant. La présente étude, cofinancée par la Ville de Berck-sur-Mer et le BRGM, avait pour but de mieux estimer les contributions respectives des nitrates d'origines organique et chimique sur les captages et une quinzaine de points du bassin d'alimentation afin de mieux cibler le type de mesures à mettre en place pour réduire le transfert des nitrates vers la nappe. Elle tentera de répondre notamment aux questions suivantes :

- Existe-t-il des transferts directs d'engrais minéraux vers la nappe et quelle est leur importance par rapport aux nitrates d'origine organique ?
- Quelle est la contribution des eaux usées domestiques dans la contamination en azote ?
- Pour quelle raison y a-t-il une augmentation de la pollution dans l'axe de la vallée et vers l'aval (cumul par ruissellement, temps de transfert plus long sur les coteaux à travers la zone non saturée plus épaisse et moins fracturée, pollution ponctuelle par la carrière Becquelin-Coulon/décharge Montodion ...) ?
- Quel est le temps de résidence moyen de l'eau dans la nappe pour les différents points de prélèvement et quelle est la conséquence sur le délai de la réaction du système aux mesures de remédiation ?

Pour mener à bien ce projet, une approche multi-isotopique ( $\delta^{15}\text{N}$  et  $\delta^{18}\text{O}$  des  $\text{NO}_3^-$  dissous,  $\delta^{11}\text{B}$ ) a été utilisée afin de caractériser l'origine, potentiellement multiple, des teneurs en nitrates dans les eaux souterraines captées ainsi que les cheminements et mécanismes de la pollution. Les isotopes de l'azote et de l'oxygène sont utilisés comme traceurs intrinsèques des nitrates permettant de distinguer différentes sources et d'identifier des processus de transformation de l'azote tels que la dénitrification dans le sol, la zone non saturée (ZNS) et la nappe. Les isotopes du bore constituent un excellent traceur des eaux usées domestiques du fait des teneurs en

perborates des lessives qui se caractérisent par une signature isotopique bien définie. L'analyse des traceurs gazeux CFCs et SF<sub>6</sub> permet de contraindre l'« âge » (ou plutôt le temps de résidence moyen dans l'aquifère) des eaux échantillonnées.

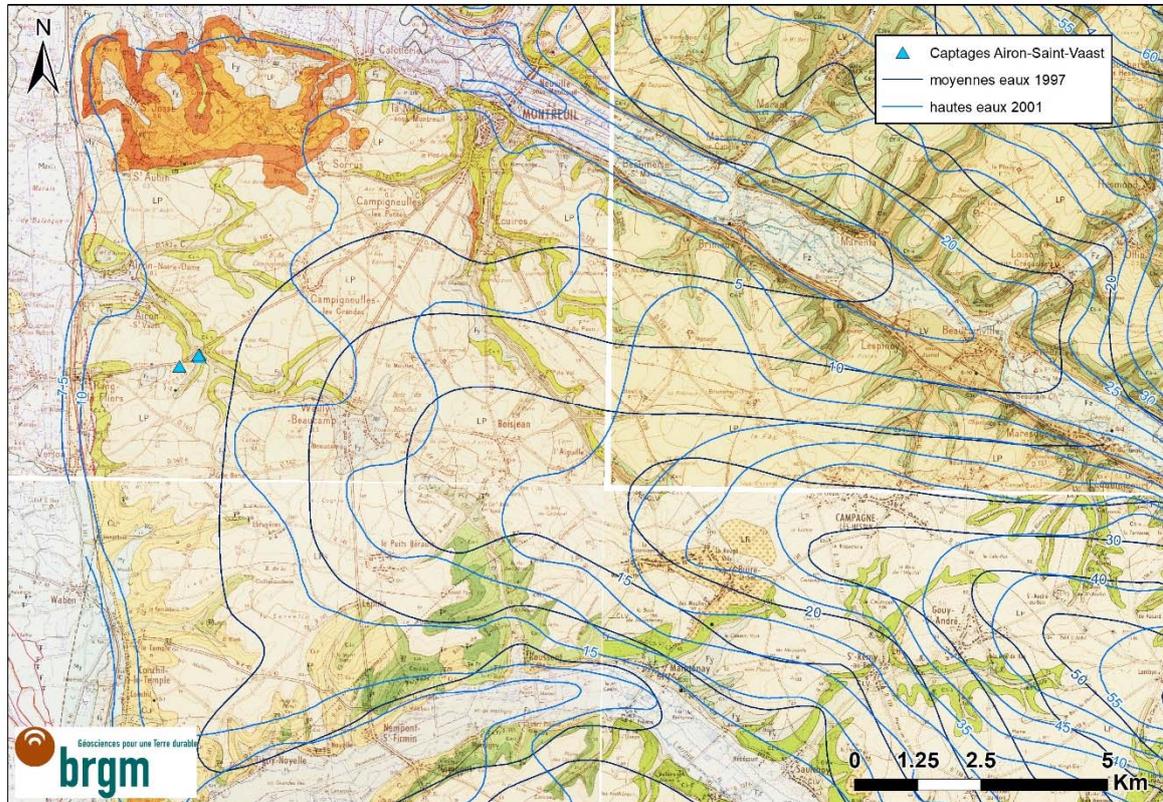


Figure 1 : Zone d'alimentation du champ captant d'Airon-Saint-Vaast.

## 2. Cadre de l'étude

Ce chapitre est basé en grande partie sur le rapport RP-64879-FR (Crastes de Paulet, 2015). En particulier, le descriptif du contexte hydrogéologique est repris, avec quelques adaptations ou mise à jour.

### 2.1. DELIMITATION DU SECTEUR ETUDIE ET CONTEXTE HYDROGEOLOGIQUE

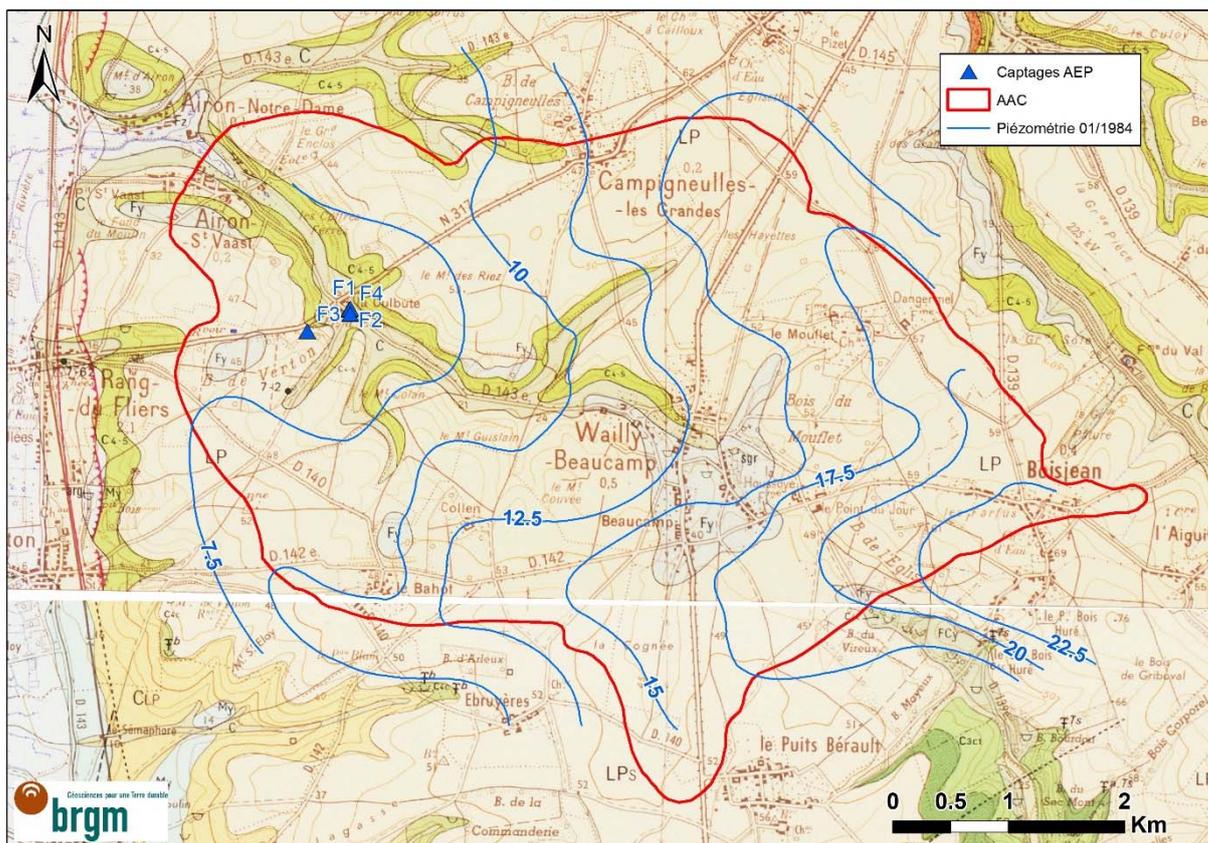


Figure 2 : Situation de l'aire d'alimentation des captages (AAC) d'Airon-Saint-Vaast dans son contexte géologique (carte géologique 1 :50 000) et hydrogéologique (carte piézométrique de 1984).

#### 2.1.1. Cadre hydrogéologique général

L'aquifère étudié est contenu dans les bancs crayeux du Sénonien et du Turonien (Secondaire). N'étant pas recouverte par une couche imperméable, la nappe est donc en régime libre dans le secteur étudié. Elle peut être décrite en 2 zones : la zone non-saturée où l'air est encore présent et l'essentiel de l'écoulement se réalise verticalement ; la zone saturée où l'écoulement suit plutôt un plan horizontal. La craie tient son caractère aquifère grâce « au développement de la fissuration avec des ouvertures et une connectivité suffisantes, [...], mais aussi à la faveur de joints de stratification plus ou moins ouverts » (Roux *et al.*, 2006).

Plusieurs cartes piézométriques sont disponibles pour le secteur d'étude. La plus précise correspond à une carte piézométrique locale de janvier 1984 (Préaux & Caulier, 1985), les plus récentes sont les cartes régionales de mai et octobre 2009 (Cardin et Dufresnoy, 2009). Malgré

des précisions différentes, ces 3 cartes s'accordent pour montrer que l'écoulement régional se fait suivant une direction ONO, suivant ainsi l'axe de la vallée d'Airon-Saint-Vaast. La carte de janvier 1984 montre que :

- Le niveau d'eau dans la partie amont culminait aux alentours de 22,5 m NGF, soit environ 45 m sous la surface du sol, sur la commune de Boisjean ;
- Le niveau d'eau dans la partie aval approchait de 6 m NGF, soit environ 7 m de profondeur, dans les captages 00167X0003/F1, 000167X0098/F2 et 00167X0100/F4 (le captage 00167X0002/F3 étant situé plus en hauteur sur le flanc sud) ;
- Un axe de drainage semble exister le long de l'axe principal de la vallée, partant du bois du Moufflet jusqu'aux captages. De façon logique, la nappe est à plus faible profondeur au centre du vallon que sur les plateaux.

Le piézomètre le plus proche suivi par le BRGM était le sondage 00167X0001/P1 situé sur la commune de St-Aubin, environ 4 km au nord des captages d'Airon-Saint-Vaast. Il s'agit d'un ancien forage d'alimentation en eau potable. D'après son dossier en BSS (Banque du Sous-Sol), cet ouvrage d'une profondeur de 43 m traverse 41 m de craie sénonienne. Disponible depuis 1976 (sur [www.ades.eaufrance.fr](http://www.ades.eaufrance.fr)), sa chronique confirme la présence de cycles intra- et inter-annuels liés aux variations météorologiques. L'écart entre les hautes et basses eaux est généralement de l'ordre de 2 m, avec parfois des valeurs supérieures à 6 voire 7 m comme en 1988, 1995, 2000-2001 et 2013 (Figure 3). Ce forage captait environ 100 000 m<sup>3</sup>/an (soit environ 274 m<sup>3</sup>/jour) avant d'être abandonné en fin d'année 2017.

À l'échelle régionale, la nappe de la craie a une transmissivité de l'ordre de  $1,5 \cdot 10^{-2}$  m<sup>2</sup>/s. Pour les 4 captages, les débits spécifiques calculés suite aux essais de pompage sont relativement homogènes et varient entre  $4,3 \cdot 10^{-3}$  m<sup>2</sup>/s (00167X0098/F2) et  $2,1 \cdot 10^{-2}$  m<sup>2</sup>/s (00167X0003/F1). Par contre, les tests hydrauliques effectués sur 12 piézomètres montrent une forte hétérogénéité, avec des valeurs allant de  $9 \cdot 10^{-6}$  à  $3,2 \cdot 10^{-2}$  m<sup>2</sup>/s. Les valeurs les plus faibles sont rencontrées de façon nettement préférentielle sur les plateaux ; les plus fortes dans les vallons central et adjacents. Il y a donc localement une variation spatiale importante de la transmissivité horizontale au sein de la craie. Le même constat a été fait sur l'axe vertical avec un essai au micro-moulinet sur le forage 00167X0100/F4 en octobre 1983. Entre 20 et 32 m de profondeur, seuls 3 intervalles longs respectivement de 3, 1,5 et 3 m produisaient respectivement 57%, 10 % et 33% du débit total. Au-delà, la craie n'était plus productive.

Le même rapport BRGM/RP-85-SGN212-NPC (Préaux & Caulier, 1985) indiquait que 0,5 m/an est une valeur assez représentative de la vitesse de percolation dans la zone non-saturée. Des essais d'infiltration réalisés sur les plateaux et les vallons tendraient à prouver que les sédiments des vallons ont une plus forte perméabilité que ceux des plateaux, mais que tous présentent une infiltration avec une composante nettement verticale (plutôt qu'horizontale – malgré la pente de certains versants).

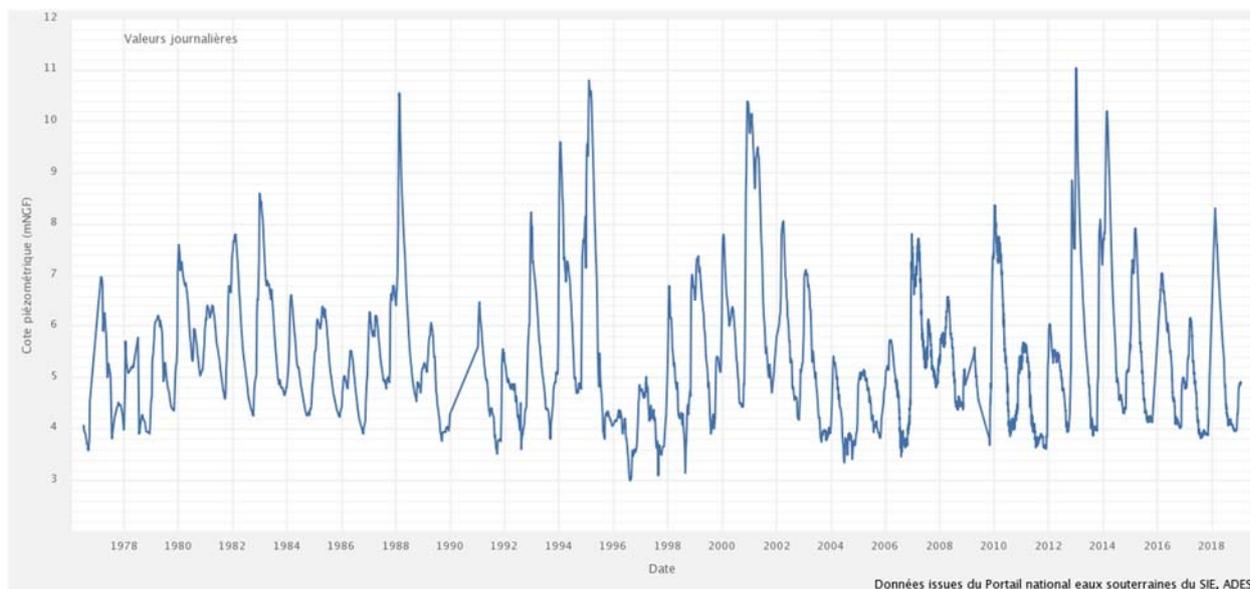


Figure 3 : Chronique piézométrique au point 00167X0001/P1, sur la commune de Saint-Aubin.

### 2.1.2. Fracturation / Karstification

En comparaison des zones méditerranéennes, le Nord - Pas-de-Calais n'est pas une région connue historiquement pour la karstification de ses formations carbonatées. Dans les années 1970-1990, plusieurs auteurs (Rodet, Sommé, Colbeaux, Bracq, Louche, Crampon, Maqsoud...) ont pourtant indiqué l'existence de formes karstiques dans la craie, avec parfois des vitesses d'écoulement (mesurées par essai de traçage) de l'ordre de 300 m/h, dans plusieurs secteurs de la région (Crampon, 1996). Ces valeurs sont à mettre en parallèle avec la vitesse d'infiltration habituellement admise pour la zone non-saturée, environ 1 à 2 m/an et la vitesse de d'écoulement en milieu saturé crayeux, de l'ordre 0,1 à 1,5 m/h (Roux *et al*, 2006).

D'après la base de données Géorisques (alimentée par le BRGM), la présence d'effondrements de cavités non minières est avérée dans le secteur d'étude. La craie est, par endroits, suffisamment fracturée ou fissurée pour entraîner la formation progressive de poches de dissolution, puis de dolines (creux plus larges que profonds) voire de bétoires ou avens (gouffres plus profonds que larges apparus suite à des effondrements). D'autre part, la craie a été exploitée comme matériau de construction à l'échelle régionale ; des carrières souterraines ont été aménagées dans la partie saine non fissurée et non-aquifère afin d'en extraire des blocs.

Le site Géorisques et le rapport BRGM 85-SGN-212-NPC (Préaux & Caulier, 1985) précisent d'ailleurs l'emplacement de plusieurs effondrements (Figure 4). La majeure partie des cuvettes repérées en 1984-1985 (grâce à une étude pédologique et des sondages à la tarière) est située le long de vallons secs adjacents. Par contre, au regard d'autres vallées limitrophes, celle d'Airon-Saint-Vaast comporte un faible nombre de cavités non minières enregistrées.

La thèse de B. Louche (1996) mentionne l'existence de conduits karstiques dans l'ancienne carrière du lieu-dit La Culbute, située 250 m au N-E des captages. Plusieurs « faux-puits » (non local pour les effondrements plus profonds que large) auraient été constatés par les agriculteurs du secteur d'étude pendant l'hiver 1995, correspondant à des effondrements « rapides pouvant avoir un diamètre compris entre 1 et 3 m avec des profondeurs pouvant atteindre 5 m ». De nombreuses poches de dissolution ont également été observées lors de la réalisation de l'autoroute A16. Plus à l'est, dans le secteur d'Ecuires, plus de 55 effondrements ont été référencés ; le SDICS (Service d'Inspection des Carrières Souterraines) avait d'ailleurs indiqué l'absence de lien entre la localisation des effondrements et celle des anciennes carrières.

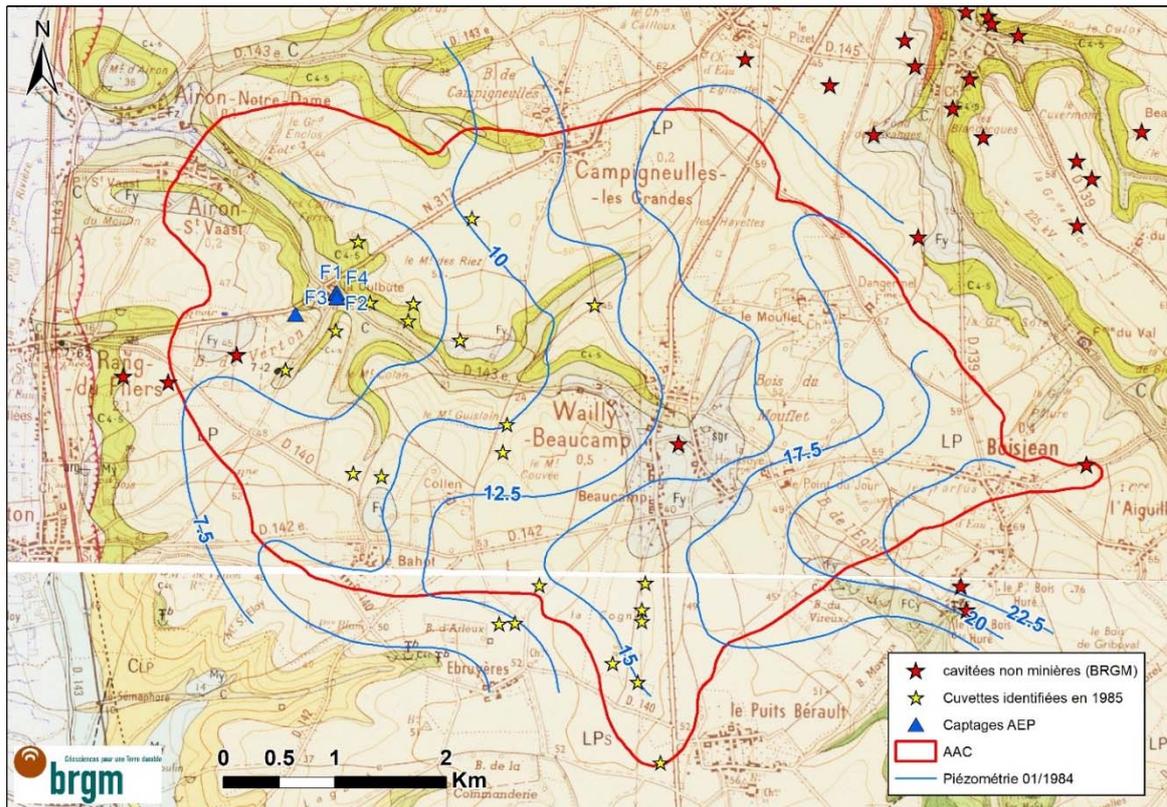


Figure 4 : Localisation des cuvettes d'effondrement et des cavités non minières (source : BRGM).

Notons que seuls les effondrements recensés peuvent être décrits ici. Or il est probable que le nombre d'effondrement est sous-estimé. En effet, il existe des effondrements et affaissements de faible ampleur, survenant en plein champ (Figure 5) et qui ne sont pas connus, car rebouchés par les exploitants agricoles.



Figure 5 : Exemple d'effondrement de faible ampleur survenant en plein champ qui ne sont actuellement pas recensés (photo prise sur l'AAC d'Airon Saint-Vaast en 2016).

## 2.2. EVOLUTION DES CONCENTRATIONS EN NITRATES

D'après les données disponibles sur le site ADES, la teneur en nitrate dans les 4 captages a connu une évolution à la hausse entre 1983 et 2003. La valeur maximale (67 mg/L) a été atteinte pour le captage 00167X0100/F4. Ce n'est qu'à partir de 2004 qu'une stabilisation, voire une légère baisse, apparaît : les concentrations passent sous le seuil des 60 mg/L.

En 1983, l'essai au micro-moulinet sur le forage 00167X0100/F4 avait également mis en évidence une hétérogénéité des concentrations en nitrate suivant les sections productives : 43,4 mg/L dans la zone la plus profonde, 51,2 mg/L pour la zone intermédiaire et environ 49,6 mg/L pour la plus proche de la surface.

Le rapport BRGM/RP-85-SGN-212-NPC (Préaux & Caulier, 1985) indiquait aussi une similitude dans l'allure des courbes représentant la piézométrie et la concentration en nitrate : cette dernière était plus faible en période d'étiage et plus forte en période de réalimentation. Au final, cette étude tendait à démontrer que l'axe central de la vallée devait ses fortes concentrations en nitrates à l'apport par ruissellement des flancs, ainsi qu'à la rapidité de l'infiltration, la faible profondeur de la nappe et la forte transmissivité au fond du vallon.

Avec une certaine réserve liée au faible nombre de profils verticaux réalisés, Lacherez et al. (1997) indiquaient que la vitesse de migration des nitrates dans la zone non-saturée était de :

- 1,25 à 1,5 m/an dans un horizon sableux de plus de 2 m ;
- environ 1 m/an dans un horizon limoneux sus-jacent à la craie ;
- 0,5 m/an pour un horizon argileux surmontant la craie.

Une comparaison des profils « nitrate » réalisés dans la zone saturée en 1985 et 1997 a été également réalisée. Dans la même étude, la datation d'un retournement de prairie non loin du sondage S11 (proche de l'ouvrage 00168X0126/PZ11) laisse penser que, par endroits, l'infiltration et la migration à travers la zone non-saturée peut être supérieure à cette estimation (>2,5 m/an).

A titre d'exemple, le même rapport indique aussi que la concentration en nitrate dans la craie saturée est passée de 59,3 à 85 mg/L entre 1984 et 1997, du fait du ruissellement puis de son infiltration au centre du vallon.

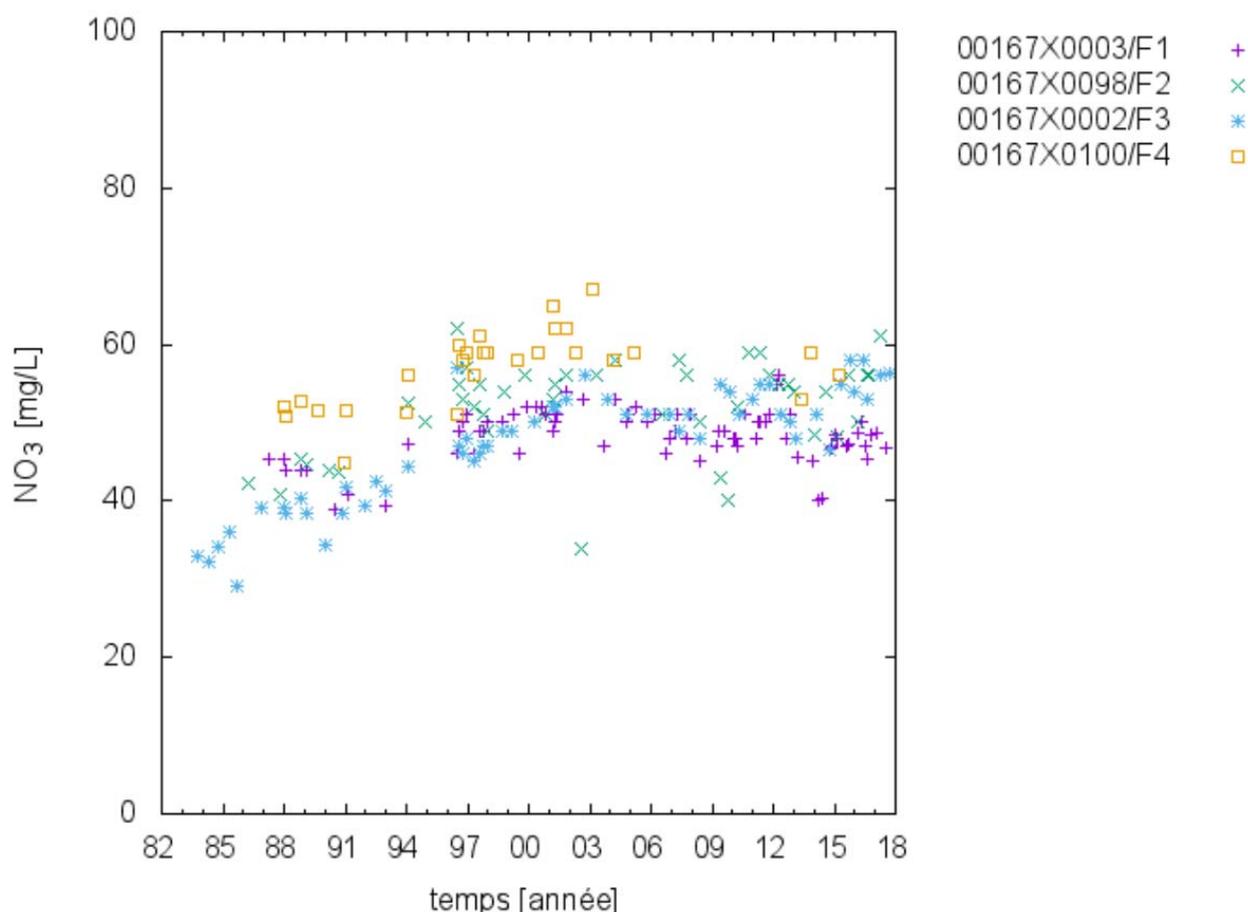


Figure 6 : Concentrations en nitrate pour les captages F1, F2, F3 et F4 (Source : ADES, extraction du 16/09/2018).

## 2.3. SOURCES POTENTIELLES DE POLLUTION

### 2.3.1. Agriculture

Lors de l'étude de 1985 avec le BRGM, l'INRA, l'Institut Supérieur d'Agriculture et le Service Régional d'aménagement des Eaux, les observations suivantes avaient été faites :

- Sur les terres labourées (5/6 de la surface agricole utile), la rotation culturale la plus habituelle est betterave – blé – escourgeon ou maïs ou pois ;
- Sur les prairies (1/6 de la surface agricole utile), l'élevage bovin est dominant ;
- La part d'azote d'origine agricole dans l'eau souterraine est estimée à 37,4 mg/L, soit 85% de la concentration totale.

L'analyse de la figure 7 montre que la rotation à base de céréales à paille reste dominante même si des exploitations plus spécialisées peuvent exister notamment à base de pomme de terre (légume fleur) ou utilisant le colza en tête de rotation.

D'après un document du SAGE de l'Authie (présentation de la CLE – mars 2010), les effluents agricoles « sont issus des activités d'élevage. Etant donné l'importance de cette activité sur le territoire de l'Authie, ces rejets sont assez conséquents et représentent la majorité des effluents épandus sur les sols agricoles. La quantité d'azote épandue sur le territoire est estimée à 43,3 kg par an et par ha de SAU [...] ». En comparant avec les chiffres fournis par cette même source, la

part agricole dans les épandages serait 20 fois supérieure aux autres sources d'épandage (boues industrielles et domestiques). La quantité d'azote d'origine agricole épandue sur le territoire reste néanmoins inférieure à la limite autorisée 170 kg par an

Le volet dédié à la pression agricole dans le DTMP de 2011 a été confiée à la Chambre d'Agriculture et au GABNOR (Groupement des Agriculteurs Biologiques du Nord – Pas-de-Calais). Ce rapport indique que les céréales représentent encore la majorité de la surface cultivée (45%). Viennent ensuite les prairies (19%), les surfaces dédiées aux plantes sarclées et les légumes de plein champ (betterave sucrière, pomme de terre, etc) à hauteur de 17 %. L'élevage bovin (viandes et lait) sur les prairies est toujours aussi dominant.

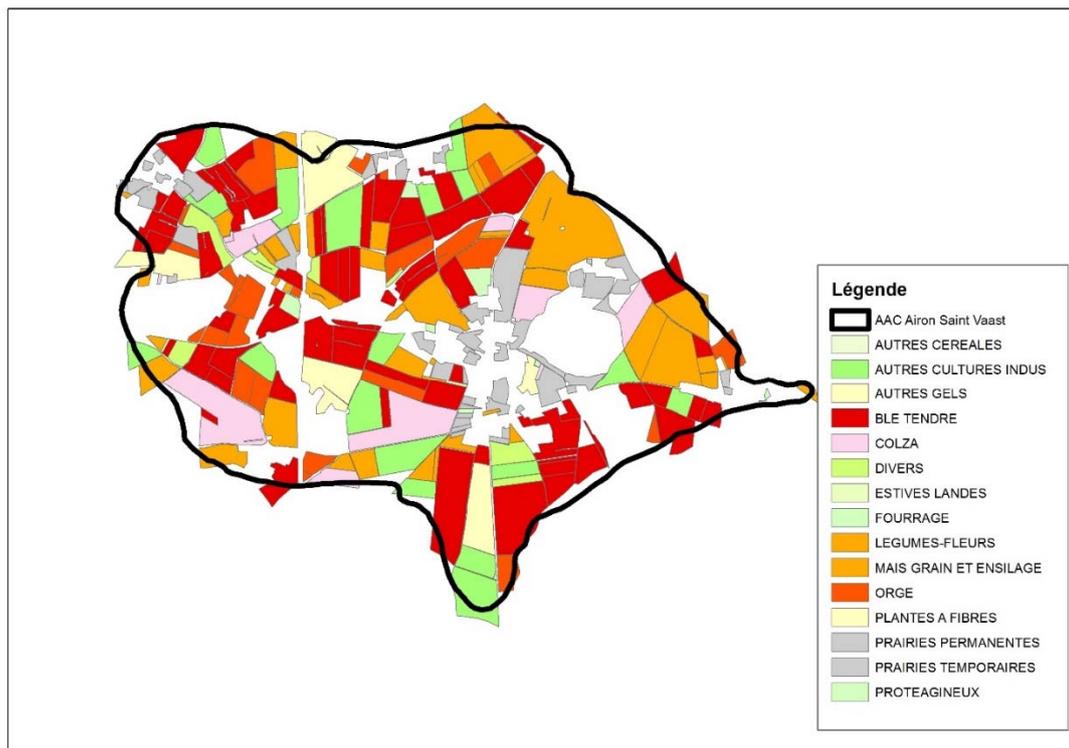


Figure 7 : Emplacement des parcelles en 2013 sur Airon-Saint-Vaast.

### 2.3.2. Assainissement

Concernant l'assainissement, les eaux usées de la commune de Boisjean ne sont pas collectées en collectif (assainissement individuel). Bien que collectées, les eaux usées de Wailly Beaucamps et Campigneulles-les-Grandes ne sont pas, à ce jour, traitées de façon centralisée. L'assainissement non-collectif des eaux usées domestiques constitue donc un facteur de risque pour la pollution diffuse en nitrates.

### 2.3.3. Décharges

L'ancienne carrière Becquelin-Coulon, aujourd'hui réhabilitée et transformée en zone de dépôt de déchets verts, a servi dans le passé de décharge sauvage de produits phytosanitaires. Se situant directement en amont du champ captant (lieu-dit de Montodion), elle peut constituer une source ponctuelle de nitrates et phytosanitaires. La Figure 8 montre l'état de cette décharge sauvage il y a 24 ans ainsi que certains éléments de ses contenus (produits phytosanitaires).



Figure 8 : Photos prises de l'ancienne carrière Becquelin-Coulon (Montodion) par le Groupement de l'Environnement de l'Arrondissement de Montreuil-sur-Mer en 1995 (Delcambre et al., 2011)

## 2.4. LES POINTS D'ACCES A LA NAPPE

Dans les années 1980, 12 piézomètres ont été forés, répartis sur l'AAC. Malgré les campagnes de terrain répétées en 2015 et 2016, seule la moitié a pu être retrouvée. Les points d'accès à la nappe sont désormais peu nombreux et mal répartis sur l'AAC. C'est pourquoi de nouveaux piézomètres ont été forés en septembre 2017, permettant de mener à bien cette étude.

### 2.4.1. Les nouveaux piézomètres

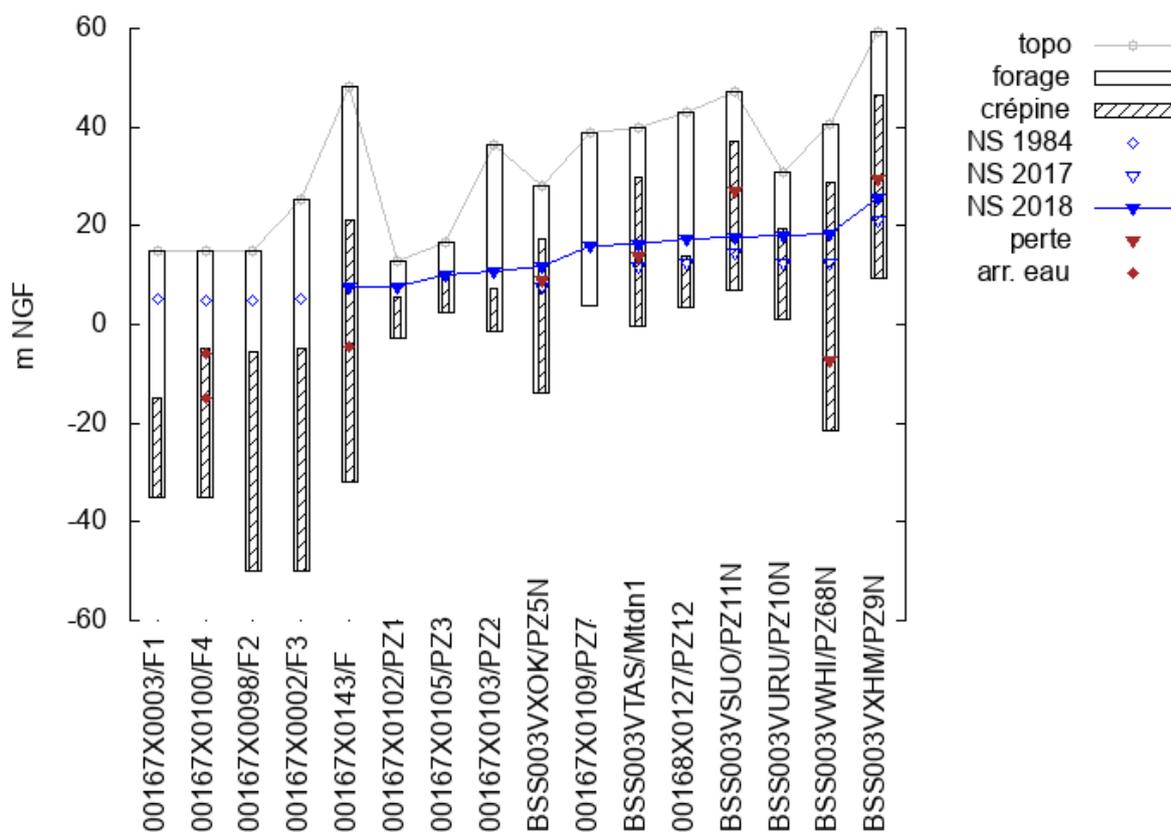
L'emplacement des nouveaux piézomètres a été choisi afin de remplacer les anciens piézomètres non retrouvés et de garantir une uniformité des points d'accès à la nappe sur l'AAC. De plus, afin d'estimer l'impact de l'ancienne décharge Becquelin-Coulon en amont du champ captant, deux nouveaux piézomètres BSS003VSUO/PZ11N et BSS003VTAS/Mtdn1 ont été implantés respectivement à l'amont et l'aval de l'ancienne décharge. Les caractéristiques de ces piézomètres forés à l'automne 2017 sont synthétisées dans le tableau ci-dessous.

**Tableau 1 : Description des nouveaux piézomètres réalisés à l'automne 2017 sur l'AAC d'Airon-Saint-Vaast.**

BSS	Ancien numéro BSS	désignation	Z sol m NGF	prof atteinte m	prof crépine m	prof perte liquide foration m
BSS003VXOK	-	PZ5N	29,09	42	11	19
BSS003VTAS	-	Mtdn1	40,65	40,25	10	26
BSS000BQFT	00168X0127*	PZ12N	43*	39,36	?	?
BSS003VSUO	-	PZ11N	48,13	40,25	10	20
BSS003VURU	-	PZ10N	32,01	30,1	11,7	?
BSS003VWHI	-	PZ68N	41,9	62,3	12	48
BSS003VXHM	-	PZ9N	59,33	50,04	13	30

\* : Le piézomètre 00168X0127 date de 1982 avec réfection de la tête de l'ouvrage en 2017. Les mesures altimétriques en GPS différentiel sont peu précises du fait de l'importance de la couverture végétale. Le Z altimétrique est issu de l'estimation donnée dans la BSS.

La composante verticale de l'AAC d'Airon-Saint-Vaast est analysée en comparant les coupes techniques des différents ouvrages (Figure 9). On remarque immédiatement que les ouvrages de prélèvements d'eau potable captent une craie plus profonde comparativement aux piézomètres.



**Figure 9 : Coupes techniques des ouvrages de l'AAC d'Airon-Saint-Vaast. Les 4 captages sont à gauche et les piézomètres sont classés selon leur niveau piézométrique de février 2018. NS : Niveaux statiques relevés en septembre 2017 et en février 2018. Sont indiqués également les profondeurs des pertes de liquide de forage lors de la foration (perte) et les arrivées d'eau identifiées lors d'essais au micro-moulinet (arr. eau).**

## 2.4.2. Suivi piézométrique

Le piézomètre suivi le plus proche de l'AAC est l'ouvrage 00167X0001/P1 situé sur la commune de St-Aubin, à environ 4 km au nord des captages d'Airon-Saint-Vaast. A défaut de données plus précises, ce piézomètre a été considéré comme représentatif de l'évolution de la nappe sur ce secteur. Mais la pertinence de cette approximation mériterait d'être évaluée par un suivi piézométrique régulier d'un des ouvrages de l'AAC.

Bien que non prévu dans le cadre de la convention, un suivi piézométrique a été initié dans certains nouveaux ouvrages de AAC. Le piézomètre PZ5N (BSS003VXOK/PZ5N) situé en fond de vallon et le piézomètre PZ68N (BSS003VWHI/PZ68N) situé sur le plateau nord ont ainsi été équipé de matériel enregistreur en février 2018. A la date de rédaction de ce rapport, les données ont pu être collectées jusque juin 2018. La collecte de l'ensemble des données 2018 nécessitera une nouvelle intervention sur place de notre technicien en 2019.

Les données collectées à ce jour sur les ouvrages de l'AAC d'Airon-Saint-Vaast sont comparées entre elles et à la chronique du piézomètre d'Airon-Saint-Vaast (Figure 10). Bien que la durée de recouvrement des chroniques soit relativement courte (environ 5 mois), plusieurs remarques peuvent déjà être faites. Les deux chroniques sont parfaitement cohérentes avec des évolutions concomitantes mais le piézomètre sur le plateau présente un niveau piézométrique plus haut et une amplitude de variation plus grande, comparativement au piézomètre dans le vallon. Les hautes eaux semblent avoir eu lieu fin février - début mars à Airon-Saint-Vaast, tandis qu'elles

semblent plus précoces à Saint Aubin. Cette différence, si elle est confirmée par une chronique plus longue, est de nature à mettre en doute la représentativité de la chronique de Saint Aubin pour l'analyse hydrogéologique de l'AAC d'Airon-Saint-Vaast.

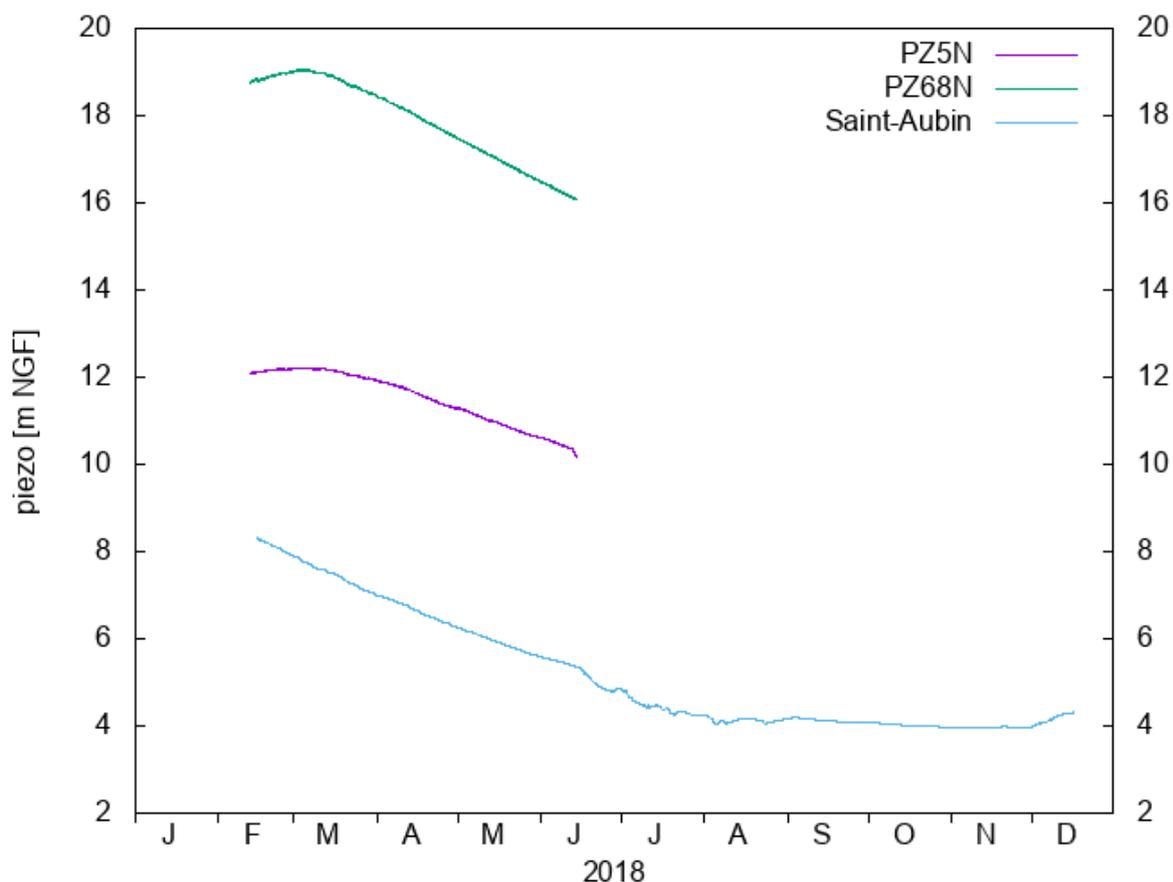


Figure 10 : Suivis piézométriques à Saint Aubin (00167X0001) et sur deux nouveaux piézomètres de l'AAC d'Airon-Saint-Vaast (BSS003VXOK/PZ5N et BSS003VWHI/PZ68N).

Le suivi piézométrique mis en place sur l'AAC d'Airon-Saint-Vaast mériterait d'être poursuivi afin de pouvoir confirmer les conclusions préliminaires faites ici. A terme, une chronique plus longue permettrait en particulier la gestion quantitative de la ressource sur ce secteur, et l'amélioration de la compréhension du fonctionnement de cette ressource, par exemple en recherchant des corrélations entre évolution des nitrates et évolution piézométrique.

### 2.4.3. Choix des points d'échantillonnage

Les nouveaux piézomètres, forés en 2017, ont été échantillonnés. D'autres points d'eau complètent la campagne d'échantillonnage, en particulier les captages d'eau potable, pour un total de 16 points d'eau.

Tableau 2 : Points d'échantillonnage en février 2018.

nom	code BSS	date	situation
F1	00167X0003/F1?	14/02/2018	captage
Piezo F	00167X0143/F	14/02/2018	plateau
F3	00167X0002/F3	14/02/2018	captage
PZ10N	BSS003VURU/PZ10N	13/02/2018	vallée
F4	00167X0100/F4	14/02/2018	captage
F2	00167X0098/F2	14/02/2018	captage
PZ68N	BSS003VWHI/PZ68N	12/02/2018	plateau
PZ5N	BSS003VXOK/PZ5N	12/02/2018	vallée
PZ12	00168X0127/PZ12	13/02/2018	plateau
PZ2	00167X0103/PZ2?	13/02/2018	plateau
PZ9N	BSS003VXHM/PZ9N	13/02/2018	plateau
PZ3	00167X0105/PZ3	14/02/2018	vallée
PZ7	00167X0109/PZ7	13/02/2018	plateau
PZ1	00167X0102/PZ1?	14/02/2018	vallée
PZ11N	BSS003VSUO/PZ11N	13/02/2018	plateau
MTDN1	BSS003VTAS/Mdn1	13/02/2018	décharge

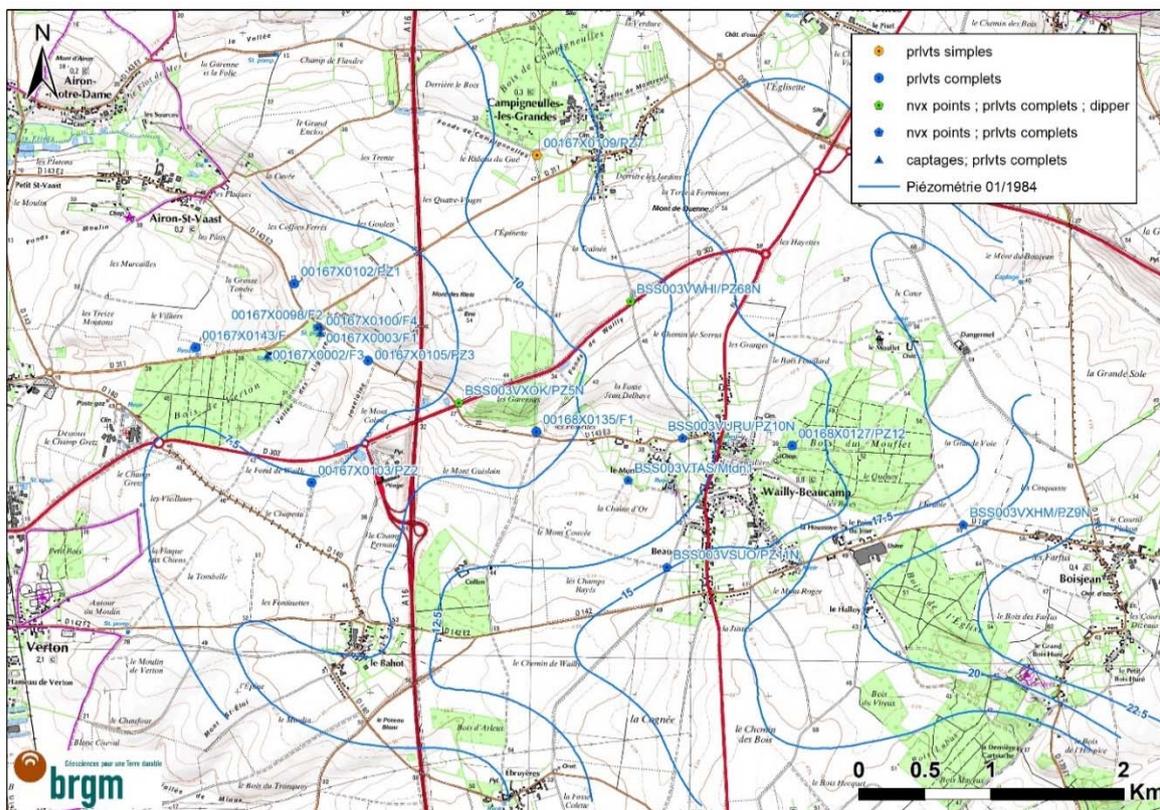


Figure 11: Localisation des points d'échantillonnage en février 2018.

## 3. Outils appliqués

### 3.1. METHODOLOGIE

Les "isotopes environnementaux" sont naturellement présents dans l'hydrosphère, par opposition aux traceurs isotopiques artificiellement introduits dans un système afin d'étudier son comportement. Le point commun des applications de ces traceurs est la notion **d'origine** et celle de **l'historique** : l'eau souterraine a une origine, elle se recharge à un moment et à un endroit donné. Mais elle peut avoir été mélangée avec des eaux d'origines différentes, avoir partiellement changé de phase ou avoir interagi avec son environnement, c'est la notion de son historique. Il en est de même pour les espèces chimiques dissoutes dans l'eau.

Les techniques isotopiques ne s'arrêtent pas aux éléments constitutifs de la molécule d'eau, elles permettent aussi un regard très précis sur certaines espèces dissoutes dans une eau naturelle. Outre la question de la pollution azotée qui est au centre de la présente étude, nous citons, à titre d'exemple le cas des sulfates : ils ont une source, telle que la dissolution de gypse ( $\text{CaSO}_4$ ), le  $\text{SO}_2$  atmosphérique ou encore l'oxydation de la pyrite ( $\text{FeS}_2$ ). Mais les concentrations peuvent évoluer, par exemple par réduction microbienne des sulfates en  $\text{H}_2\text{S}$  et  $\text{HS}^-$ , les espèces dissoutes ont donc, en quelque sorte, une histoire qui est inscrite dans leur composition isotopique. D'autres questions pratiques de la gestion de l'eau peuvent être abordées avec les techniques isotopiques : quelles sont les causes d'une salinisation progressive d'une ressource en eau qui la rend impropre à certains usages, avec quelles roches l'eau est-elle entrée en contact lors de son cheminement souterrain ? Telles sont les questions auxquelles les isotopes stables d'éléments dissous comme l'azote, le bore, le strontium, le carbone et le soufre peuvent nous donner des éléments de réponse.

Dans le cas de l'étude de l'origine de la pollution azotée de l'AAC d'Airon-Saint-Vaast, nous avons sélectionné, outre la caractérisation chimique des eaux, les traceurs isotopiques suivants : isotopes stables de **l'azote**, de **l'oxygène**, les deux éléments constitutifs des nitrates ( $\text{NO}_3$ ) ainsi que ceux du **bore**, co-traceur pertinent de certaines sources de pollution azotée.

#### 3.1.1. Isotopes de l'azote ( $^{15}\text{N}$ , $^{14}\text{N}$ ) et de l'oxygène ( $^{18}\text{O}$ , $^{16}\text{O}$ ) des nitrates ( $\text{NO}_3$ ):

Le traçage isotopique naturel par l'azote est d'un intérêt certain pour la détermination de l'origine et le suivi des transformations de l'ion nitrate au sein d'un aquifère (notamment de la dénitrification). Les isotopes de l'azote sont un traceur intrinsèque du polluant même : ils sont transportés de la même façon et le caractérisent de façon directe. Les différents mécanismes intervenant dans les transformations chimiques de l'azote dans le sol provoquent un fractionnement isotopique qui modifie la signature d'origine. On peut ainsi établir des modèles d'évolution isotopique de l'azote au sein des sols, de la zone non saturée et dans les eaux, et évaluer les sources et/ou le rôle de mécanismes qui changent la spéciation de l'azote comme notamment la dénitrification (transformation des nitrates en formes gazeux de l'azote,  $\text{N}_2$  et  $\text{N}_2\text{O}$ ).

Sur un bassin versant type, les principales sources d'azote dissous (nitrates, nitrites, sels ammoniacaux, azote élémentaire) sont les suivantes :

- Espèces nitratées produites par synthèse industrielle (engrais fertilisants),
- Espèces nitratées provenant de l'oxydation des matières organiques liées aux activités humaines agricoles (fumier, lisier...) et urbaines (effluents domestiques),
- Nitrates synthétisés dans le sol par la minéralisation puis la nitrification de la matière organique du sol.

Les rapports isotopiques de l'azote et de l'oxygène, constituants des nitrates, ont été utilisés de façon extensive pour distinguer ces diverses sources de l'azote dans les eaux superficielles et souterraines (Kendall *et al.*, 2007). Le fait que la signature isotopique des nitrates change de façon systématique lors de la réduction des nitrates permet de mettre en évidence l'existence de processus de dénitrification naturelle dans la nappe ainsi que de fixation-reminéralisation-nitrification dans le sol (Mengis *et al.*, 2001; Einsiedl & Mayer, 2006). La superposition de plusieurs sources, d'une éventuelle dénitrification et de processus secondaires peut rendre difficile une discrimination de l'origine de la pollution, mais cette ambiguïté peut être levée grâce à l'utilisation d'outils complémentaires.

**Nitrates résiduels d'un processus de dénitrification :** la dénitrification est un processus de réduction de l'ion nitrate en azote gazeux  $N_2$  ou en  $N_2O$  en plusieurs étapes. Les liaisons chimiques établies par les isotopes légers ( $^{14}N$ ,  $^{16}O$ ) sont plus facilement et plus rapidement brisées que celles entre les isotopes lourds ( $^{15}N$ ,  $^{18}O$ ). Cet écart des forces de liaison est la cause d'une très légère différence de vitesse de réaction des deux isotopes lors de la dénitrification, ce qui induit un fractionnement isotopique. Dès la première étape, la rupture de la liaison N-O s'accompagne d'un fractionnement isotopique. L'azote moléculaire  $N_2$ , qui apparaît comme produit final, est enrichi en  $^{14}N$  et le nitrate résiduel (non dénitrifié) s'enrichit en  $^{15}N$ . De la même façon, ces nitrates résiduels seront enrichis en  $^{18}O$  par rapport à l' $^{16}O$  léger. Ainsi pendant la dénitrification, alors que la concentration en nitrates diminue régulièrement, le  $\delta^{15}N$  et le  $\delta^{18}O$  du nitrate augmentent de façon systématique (Mariotti, 1986).

### 3.1.2. Isotopes du bore ( $^{11}B$ , $^{10}B$ )

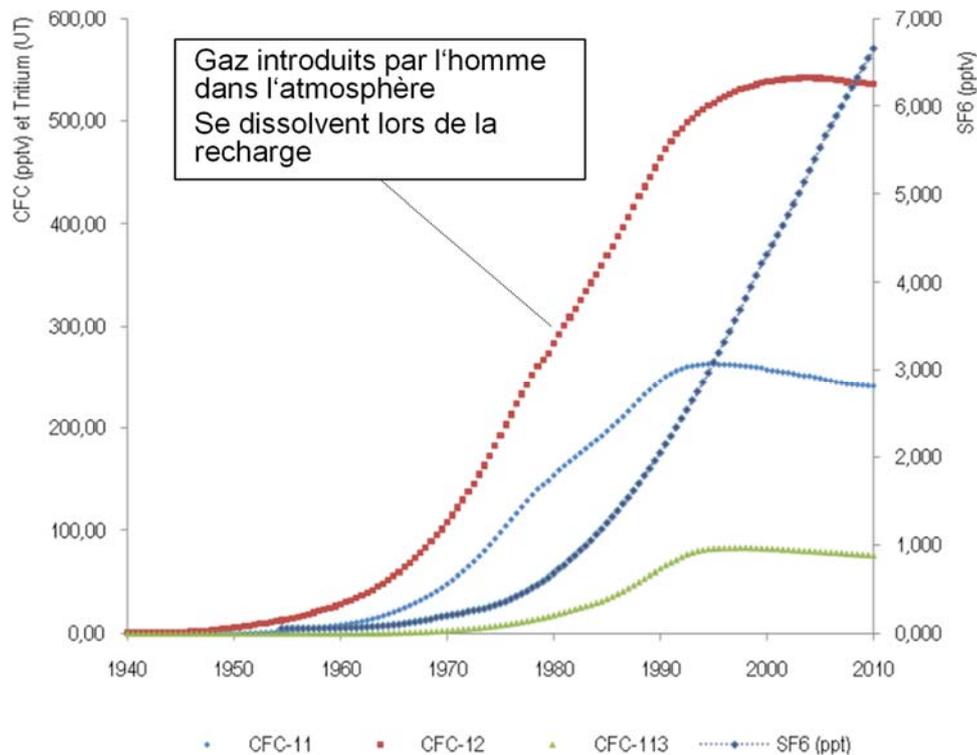
Le bore est un élément omniprésent dans l'eau, qui montre de très forts contrastes isotopiques dans le milieu naturel, ce qui lui confère un potentiel certain pour la discrimination de sources de pollution. Les isotopes du bore ne sont pas fractionnés par les mêmes processus que l'azote ce qui est un atout quant à l'identification des sources de pollution. En effet, le bore se distingue comme traceur par sa forte solubilité et l'absence d'effet isotopique de processus comme les réactions d'oxydo-réduction (ex. dénitrification) qui affectent les rapports isotopiques des nitrates.

Les isotopes du bore sont, par contre, sensibles aux processus d'adsorption/désorption sur les argiles. Des polluants comme certains engrais minéraux ou organiques et les eaux usées domestiques se caractérisent par leur teneur en bore et leur composition isotopique particulière du bore (voir le résumé de Vengosh, 1998 et Vengosh *et al.*, 1999). Il a, en conséquence, été utilisé comme traceur dans le contexte de la caractérisation des pollutions agricoles (Komor, 1997; Leenhouts *et al.*, 1998; Kloppmann, 2003; Widory *et al.*, 2004; Widory *et al.*, 2005; Widory *et al.*, 2013; Kloppmann *et al.*, 2014; Kloppmann, 2015). La technique analytique est complexe et les isotopes du bore ne sont analysés que par un nombre très restreint de laboratoires.

### 3.1.3. Estimation des temps de résidence des eaux souterraines par les teneurs en CFCs et SF<sub>6</sub>

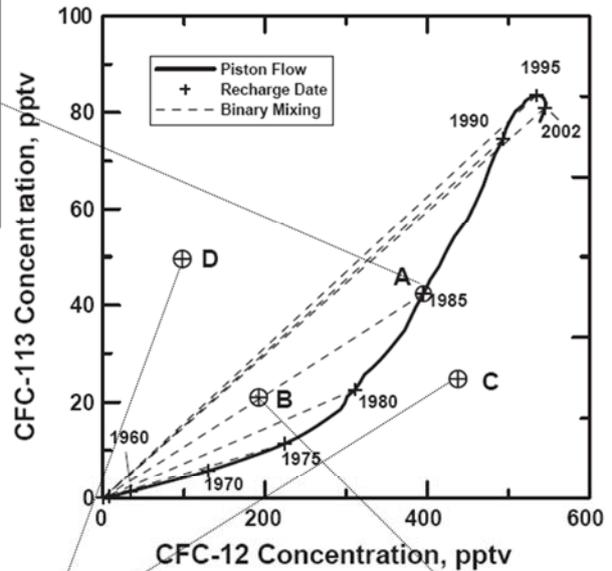
Généralement connus sous le nom de Fréons, les CFCs sont des gaz de synthèse utilisés dès les années 1930 dans les applications de réfrigération (CFC-12), comme agents gonflants, dans les aérosols (CFC-11) et comme solvants pour le dégraissage (CFC-13). Après une évolution plutôt lente dans les années 50, les concentrations atmosphériques ont augmenté rapidement. A partir de 1990, avec l'application du protocole de Montréal, les concentrations atmosphériques des CFC ont commencé à stagner, puis diminuer. Ces gaz se sont répandus à l'échelle de la planète, ils se dissolvent dans les eaux d'infiltration et sont ensuite isolés de l'atmosphère dans les nappes. A l'instar des CFCs, l'hexafluorure de soufre (SF<sub>6</sub>) est un gaz industriel, plus persistant que les CFCs et moins soumis à des contaminations locales et dont la courbe d'introduction dans l'atmosphère ne fléchit pas encore (Figure 12).

Connaissant les courbes de l'introduction de ces gaz dans l'atmosphère, ainsi que leur solubilité dans l'eau, les concentrations mesurées dans une eau souterraine peuvent permettre de remonter, à l'aide de modèles analytiques (Figure 13), à l'instant où l'eau de recharge a atteint la nappe et ainsi estimer le temps de résidence moyen de l'eau dans la nappe (Figure 14). Ces estimations peuvent être perturbées par divers phénomènes, notamment la contamination par des sources locales ainsi que la biodégradation des traceurs mais ces effets sont facilement identifiables en combinant plusieurs traceurs (Figure 13). Les modèles choisis de calcul « d'âge » doivent être adaptés au mode de recharge de la nappe. A titre d'exemple, une nappe libre avec une recharge homogène sur toute sa surface conduit à un mélange « d'âges » à un point de prélèvement (Figure 14). Ces « âges » représentent les temps de transfert de l'eau entre le point de recharge et le point de prélèvement sur une multitude de chemins. Un volume prélevé contient donc des molécules d'eau qui ont parcouru des distances très différents et « l'âge » calculé est en fait un **temps de résidence moyen de l'eau dans la nappe en amont du point de prélèvement**.



**Figure 12 : Courbes des concentrations atmosphériques des gaz synthétiques CFC et SF<sub>6</sub> depuis leur première émission par l'homme.**

On calcule à partir des concentrations connues dans l'air les concentrations dans l'eau de recharge pour une année donnée. On compare ensuite les teneurs mesurées dans l'eau à ces courbes. En combinant plusieurs traceurs et en choisissant un modèle approprié, on remonte au moment de la recharge



Contaminations ou dégradations qui peuvent perturber le calcul des ages

Mélanges entre eaux « jeunes » et « anciennes » (plus de 50 ans)

Figure 13 : Principe de l'estimation du temps de résidence à partir des teneurs en gaz atmosphériques (CFCs et SF<sub>6</sub>)

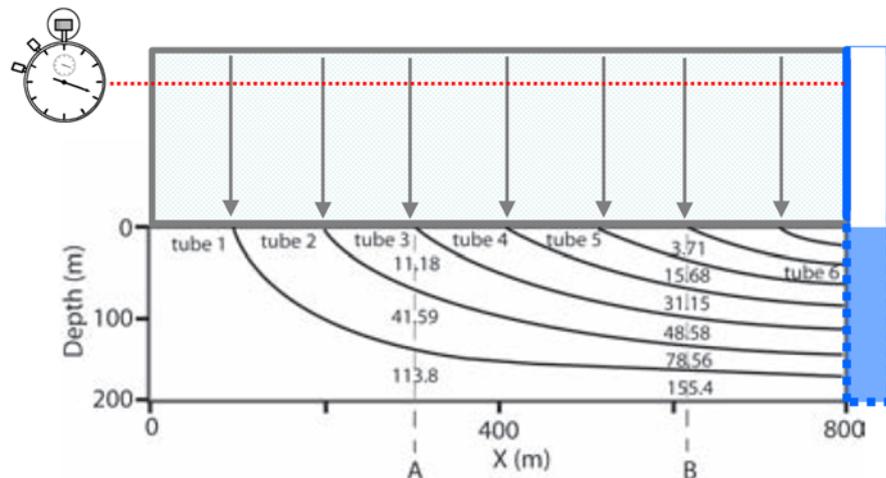


Figure 14 : Schéma d'un modèle de recharge correspondant à celui retenu pour la craie de la Somme : Recharge à travers une zone non saturée épaisse puis transfert par des cheminements plus ou moins longs jusqu'à l'ouvrage prélevé. Le « déclenchement du chronomètre » correspond au moment où l'eau d'infiltration est isolée de l'atmosphère.

### 3.2. METHODES ANALYTIQUES

Les **paramètres physico-chimiques** ont été déterminés sur le terrain par des méthodes potentiométriques (Eh, O<sub>2</sub>, pH, conductivité).

Les concentrations des **espèces majeures** ont été déterminées par des méthodes standards :

- Chromatographie ionique (Dionex) selon la norme NF EN ISO 10304-1 (juillet 2009) pour NO<sub>3</sub>, SO<sub>4</sub>, Cl,
- ICP-MS-AES pour Mg, Na, K,
- Analyse colorimétrique sur un système d'analyse discrète suivant la norme NF ISO 15923-1 pour NO<sub>2</sub> et NH<sub>4</sub>,
- Titration/potentiométrie pour HCO<sub>3</sub>, CO<sub>3</sub>,
- ICP-spectrométrie d'émission pour Ca, K, Na, Fe, Mg

Les **éléments traces** ont été analysés par ICP-MS selon la norme NF EN ISO 17294-2 d'avril 2005.

Les **isotopes de l'azote ( $\delta^{15}\text{N}$ ) et les isotopes de l'oxygène ( $\delta^{18}\text{O}$ ) sur les nitrates** sont analysés par spectrométrie de masse à source gazeuse et à flux continu. Les eaux filtrées sont chimiquement purifiées par plusieurs étapes de passage sur des colonnes d'échange d'ions, de précipitation de chlorures, carbonates, sulfates et phosphates par ajout de AgCl et BaCl<sub>2</sub> (modifié d'après Chang *et al.*, 1999; Silva *et al.*, 2000). Des nitrates solides sont obtenus par lyophilisation sous forme d'AgNO<sub>3</sub>. L'AgNO<sub>3</sub> solide est ensuite injecté dans des capsules d'argent dans un four à pyrolyse à graphite à 1450°C. Les gaz obtenus (CO et N<sub>2</sub>) sont séparés par chromatographie gazeuse et analysés successivement par CF-IRMS (Thermo Scientific DELTA V). Les échantillons sont analysés en dupliquas et l'erreur analytique reste, en général, inférieure à 0,6 ‰.

On exprime les rapports isotopiques par la notation  $\delta$ , qui représente, en parts pour mille, l'écart relatif des rapports isotopiques par rapport avec un standard :

$$\delta = \left[ \frac{R_{\text{échantillon}}}{R_{\text{standard}}} - 1 \right] \cdot 1000$$

où R est le rapport isotopique.

Pour l'azote,

$$\delta^{15}\text{N} = \left[ \frac{\left( \frac{^{15}\text{N}}{^{14}\text{N}} \right)_{\text{échantillon}}}{\left( \frac{^{15}\text{N}}{^{14}\text{N}} \right)_{\text{standard}}} - 1 \right] \cdot 1000$$

Le standard pour les isotopes stables de l'azote est l'azote atmosphérique (standard AIR).

Les **isotopes du bore ( $\delta^{11}\text{B}$ )** sont mesurés par spectrométrie de masse par thermoionisation à source solide (TIMS) sur un Finnigan MAT 261. Une préparation préalable est nécessaire pour transformer le bore sous forme d'ion Cs<sub>2</sub>BO<sub>2</sub><sup>+</sup>, la procédure utilisée dans le laboratoire du BRGM est celle de Mossadik (1997). De façon analogue aux isotopes de l'azote, les valeurs sont reportées sous forme d'unité delta par rapport au standard NBS-951 (acide borique) distribué par le NBS (National Bureau of Standards).

Les **gaz CFCs, SF<sub>6</sub>** ont été analysés au Spurenstofflabor du Dr. Oster à Wachenheim, Allemagne, par chromatographie gazeuse avec détection par capture d'électrons (Oster *et al.*, 1996).



## 4. Résultats

### 4.1. PARAMETRES PHYSICO-CHIMIQUES ET ELEMENTS MAJEURS

Tableau 3 : Paramètres physico-chimiques mesurés obtenus sur les drains et eaux souterraines du secteur d'étude

Nom	Date	T	pH	Eh corr.	Conductivité à 25°C	O <sub>2</sub>	O <sub>2</sub>
		(°C)		(mV)	(μS/cm)	(ppm)	(% sat.)
F1	14/02/2018	8	7,7	540,9	781	9	77,9
Piezo F	14/02/2018	12	7,3	540,9	733	9	87,7
F3	14/02/2018	11	7,3	529,8	819	10	86,7
PZ10N	13/02/2018	11	7,4	533,0	815	9	85,8
F4	14/02/2018	9,1	7,4	521,1	813	9	79,5
F2	14/02/2018	11	7,4	531,1	791	8	76,4
PZ68N	12/02/2018	12	6,3	537,2	722	10	88,4
PZ5N	12/02/2018	11	7	556,5	726	11	95,5
PZ12	13/02/2018	11	7,7	509,7	787	9	86,3
PZ2	13/02/2018	11	7,8	518,0	808	10	89,1
PZ9N	13/02/2018	11	7,8	461,8	757	9	83,6
PZ3	14/02/2018	11	7,4	530,6	830	9	83,4
PZ7	13/02/2018	11	7,3	508,5	729	10	89,9
PZ1	14/02/2018	11	7,7	533,6	751	10	90,7
PZ11N	13/02/2018	12	7,7	524,3	833	10	88,2
MTDN1	13/02/2018	11	7,2	535,9	1005	8	69,8

## 4.2. RESULTATS CHIMIQUES

Tableau 4 : Résultats chimiques (composés majeurs) obtenus sur les drains et eaux souterraines du secteur d'étude

Nom	Ca	Mg	Na	K	HCO3	Cl	SO4	NO3	NO2	NH4
Limite de quantification (LQ)	0,5	0,5	0,5	0,5	10	0,5	0,5	0,5	0,01	0,05
	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L
F1	138,4	4,1	19,9	3,6	344	38,5	19,3	48,3	< LQ	< LQ
Piezo F	130	4,4	20,3	1,2	330	41,9	14,4	35,7	< LQ	< LQ
F3	122,5	4,8	36,8	1,4	288	74,7	19,5	51,7	< LQ	< LQ
PZ10N	152,1	4,6	15,5	4,2	375	31,5	20,4	55,5	< LQ	< LQ
F4	146,1	4,6	19	4,4	356	37,7	21,7	60,3	< LQ	< LQ
F2	142,3	4,6	19	4,1	351	37,6	20,7	57	< LQ	< LQ
PZ68N	131	4,6	14,3	1,3	316	35,6	14,6	50,8	< LQ	< LQ
PZ5N	130,2	4	16	2,7	321	34,9	18,7	46	< LQ	< LQ
PZ12	135,6	4	25	1,2	358	45,4	12,7	38,1	0,02	< LQ
PZ2	143,1	4,7	17,2	1,5	318	49,6	24,8	61,8	< LQ	< LQ
PZ9N	135,2	5,3	14,8	1,5	325	39,5	15,2	56	0,02	< LQ
PZ3	146	3,4	24,6	3,1	367	45,9	22,7	43,7	< LQ	< LQ
PZ7	135,9	4,1	14,9	1,2	324	38,6	16,7	58,4	< LQ	< LQ
PZ1	135,9	3,9	16,5	2,7	330	35,4	20,1	51	0,01	< LQ
PZ11N	148,9	9,5	11,9	1	343	38,8	28,9	73,5	0,01	< LQ
MTDN1	194	5,2	20,1	2,7	461	36,3	69,3	69,3	0,04	< LQ

\* le dégradé de couleurs permet de visualiser les concentrations en nitrates

Tableau 5 : Résultats chimiques (éléments mineurs et traces) obtenus sur les drains et eaux souterraines du secteur d'étude

Nom	Ag	Al	As	B	Ba	Be	CO3	Cd	ClO4-	Co	Cr	Cu	F	Fe	Li	Mn	Ni	PO4	Pb	SiO2	Sr	Zn
LQ	0,01	0,5	0,05	0,5	0,05	0,01	10	0,01	0,5	0,05	0,1	0,1	0,1	0,02	0,1	0,1	0,1	0,05	0,05	0,5	0,1	0,5
	µg/L	µg/L	µg/L	µg/L	µg/L	µg/L	mg/L	µg/L	µg/L	µg/L	µg/L	µg/L	mg/L	mg/L	µg/L	µg/L	µg/L	mg/L	µg/L	mg/L	µg/L	µg/L
F1	< LQ	< LQ	0,23	41,2	19,9	< LQ	< LQ	0,02	< LQ	0,83	8,67	< LQ	< LQ	< LQ	1,44	< LQ	0,48	0,19	0,52	8,9	254	12,56
Piezo F	< LQ	< LQ	0,17	14,8	14,1	< LQ	< LQ	0,02	0,05	0,7	0,24	< LQ	< LQ	< LQ	0,81	0,23	0,45	0,14	< LQ	9	237	1,69
F3	< LQ	< LQ	0,16	19,6	21,8	< LQ	< LQ	0,02	< LQ	0,24	2,92	0,1	< LQ	< LQ	1,66	< LQ	0,49	0,12	0,24	7,7	303	13,87
PZ10N	< LQ	< LQ	0,94	32,1	17,5	< LQ	< LQ	0,05	< LQ	0,95	0,47	< LQ	< LQ	< LQ	0,97	0,21	0,47	1,86	< LQ	10,7	243	1,95
F4	< LQ	< LQ	0,22	51,6	21,1	< LQ	< LQ	0,04	< LQ	0,74	4,49	< LQ	< LQ	< LQ	1,65	0,4	1,43	0,23	0,27	8,9	258	13,13
F2	< LQ	< LQ	0,21	47,2	23,2	< LQ	< LQ	0,02	< LQ	0,61	8,14	< LQ	< LQ	< LQ	1,83	0,7	0,54	0,17	0,44	9	271	9,22
PZ68N	< LQ	0,65	0,17	14,7	17,1	< LQ	< LQ	0,1	< LQ	0,72	0,22	< LQ	< LQ	< LQ	0,97	0,28	0,76	0,13	< LQ	8,1	224	2,24
PZ5N	< LQ	1	0,25	27,1	19,3	< LQ	< LQ	0,38	< LQ	0,66	0,65	< LQ	< LQ	< LQ	1,02	0,92	0,39	0,21	< LQ	8,9	220	2,74
PZ12	< LQ	< LQ	0,11	13,9	17,6	< LQ	< LQ	0,02	0,09	0,7	0,21	< LQ	< LQ	< LQ	1,42	0,14	0,59	0,14	< LQ	9,4	225	1,88
PZ2	< LQ	< LQ	0,13	16,3	12,6	< LQ	< LQ	0,01	< LQ	0,61	1,05	< LQ	< LQ	< LQ	0,57	0,11	0,5	0,16	< LQ	8,1	214	1,94
PZ9N	< LQ	0,67	0,15	16,7	26	< LQ	< LQ	0,04	0,07	0,62	0,34	< LQ	< LQ	< LQ	1,52	3,04	0,71	0,15	< LQ	8,2	246	1,71
PZ3	< LQ	< LQ	0,31	40	16,3	< LQ	< LQ	0,03	< LQ	0,64	0,76	< LQ	< LQ	< LQ	0,69	0,1	0,32	0,27	< LQ	8,4	226	1,75
PZ7	< LQ	< LQ	0,16	18,4	14	< LQ	< LQ	0,12	< LQ	0,68	0,19	< LQ	< LQ	< LQ	0,69	1,32	0,71	0,17	< LQ	8	231	2,24
PZ1	< LQ	< LQ	0,19	30,6	16,7	< LQ	< LQ	0,02	< LQ	0,61	0,29	< LQ	< LQ	< LQ	0,87	< LQ	0,31	0,17	< LQ	8,6	232	1,65
PZ11N	< LQ	1,06	0,48	10,7	130	< LQ	< LQ	0,05	0,11	0,45	0,47	< LQ	< LQ	< LQ	2,03	6,37	0,97	0,09	< LQ	9,9	301	1,91
MTDN1	< LQ	0,79	0,2	55,0	32,8	< LQ	< LQ	0,03	0,09	0,4	0,53	< LQ	< LQ	< LQ	1,05	0,51	0,92	0,25	< LQ	10,1	289	2,59

\* LQ = Limite de quantification. Pour certains éléments traces présentant de fortes variations dans la nappe (B, Cr, Zn), les codes couleurs permettent de visualiser les concentrations.

### 4.3. RESULTATS ISOTOPIQUES (N, O, B)

Tableau 6 : Résultats isotopiques obtenus sur les drains et eaux souterraines du secteur d'étude

Nom	$\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$	$\pm$	$\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$	$\pm$	$\delta^{11}\text{B}$	$\pm$
	‰ vs AIR		‰ vs SMOW		‰ vs NBS951	
F1	4,6	0,5	1,4	0,5	21,98	0,18
Piezo F	3,2	0,5	2,4	0,5	26,43	0,04
F3	2,2	0,5	1,5	0,5	25,84	0,07
PZ10N	4,5	0,5	2,4	0,5	20,5	0,17
F4	4,3	0,5	2,1	0,5	17,93	0,05
F2	5,1	0,5	2,1	0,5	17,79	0,04
PZ68N	3,1	0,5	1,7	0,5	27,94	0,07
PZ5N	4,1	0,5	2,6	0,5	23,16	0,11
PZ12	2,2	0,5	3,5	0,5	27,16	0,08
PZ2	2,9	0,5	2,7	0,5	39,93	0,14
PZ9N	3,8	0,5	2,4	0,5	28,84	0,17
PZ3	4,0	0,5	1,7	0,5	28,26	0,15
PZ1	4,0	0,5	2,5	0,5	25,2	0,11
PZ11N	3,6	0,5	3,0	0,5	28,2	0,18
MTDN1	5,3	0,5	4,3	0,5	14,6	0,11

\* le dégradé de couleurs permet de visualiser les valeurs de  $\delta^{11}\text{B}$ .

#### 4.4. CONCENTRATIONS EN GAZ DISSOUS

Tableau 7 : Résultats obtenus sur les concentrations en gaz dissous (CFCs, SF<sub>6</sub>) dans les eaux souterraines du secteur d'étude

Nom	CFC-12	±	CFC-11	±	CFC-113	±	SF <sub>6</sub>	±
	[pmol/L]		[pmol/L]		[pmol/L]		fmol/L	
F1	11	3	42	13	2	0,2	2,5	0,3
Piezo F	2,9	0,2	15	3	0,6	0,1	2	0,3
F3	2,8	0,2	17	4	0,44	0,05	2,3	0,3
PZ10N	3,3	0,2	12	3	2,4	0,3	2,8	0,3
F4	33	7	370		0,21	0,05	2	0,2
F2	26	6	330		0,7	0,1	1,9	0,2
PZ68N	6	0,4	13	3	9	2	1,7	0,2
PZ5N	3,1	0,2	8	1	11	3	2,6	0,3
PZ12	4,6	0,3	14	3	90		2,5	0,3
PZ2	2,6	0,2	10	1	2,1	0,3	2,3	0,3
PZ9N	6,1	0,4	23	5	70		2	0,3
PZ3	5,1	0,3	43	13	0,38	0,05	2,8	0,3
PZ1	3,6	0,2	14	3	14	3	2,4	0,3
PZ11N	3,4	0,2	9	1	0,5	0,1	2,9	0,3
MTDN1	140**		>700		0,39	0,05	2,9	0,3

\* le dégradé de couleurs visualise les concentrations en CFCs \*\*hors gamme, valeur approximatif



## 5. Discussion

### 5.1. SITUATION ACTUELLE DE LA CONTAMINATION EN NITRATES

Dans les années 1980 et 90, deux campagnes de mesures des concentrations en nitrates ont été menées : étude BRGM de 1984 (Préaux & Caulier, 1985) et étude SOREG de 1997 (Lacherez et al., 1997), citées dans Mavel (2010). Les deux font apparaître des concentrations en nitrates maximales (supérieures à 80mg/L en 1997) dans l'axe de la vallée sèche, en aval de Wailly-Beaucamp et en amont des captages (Figure 15).

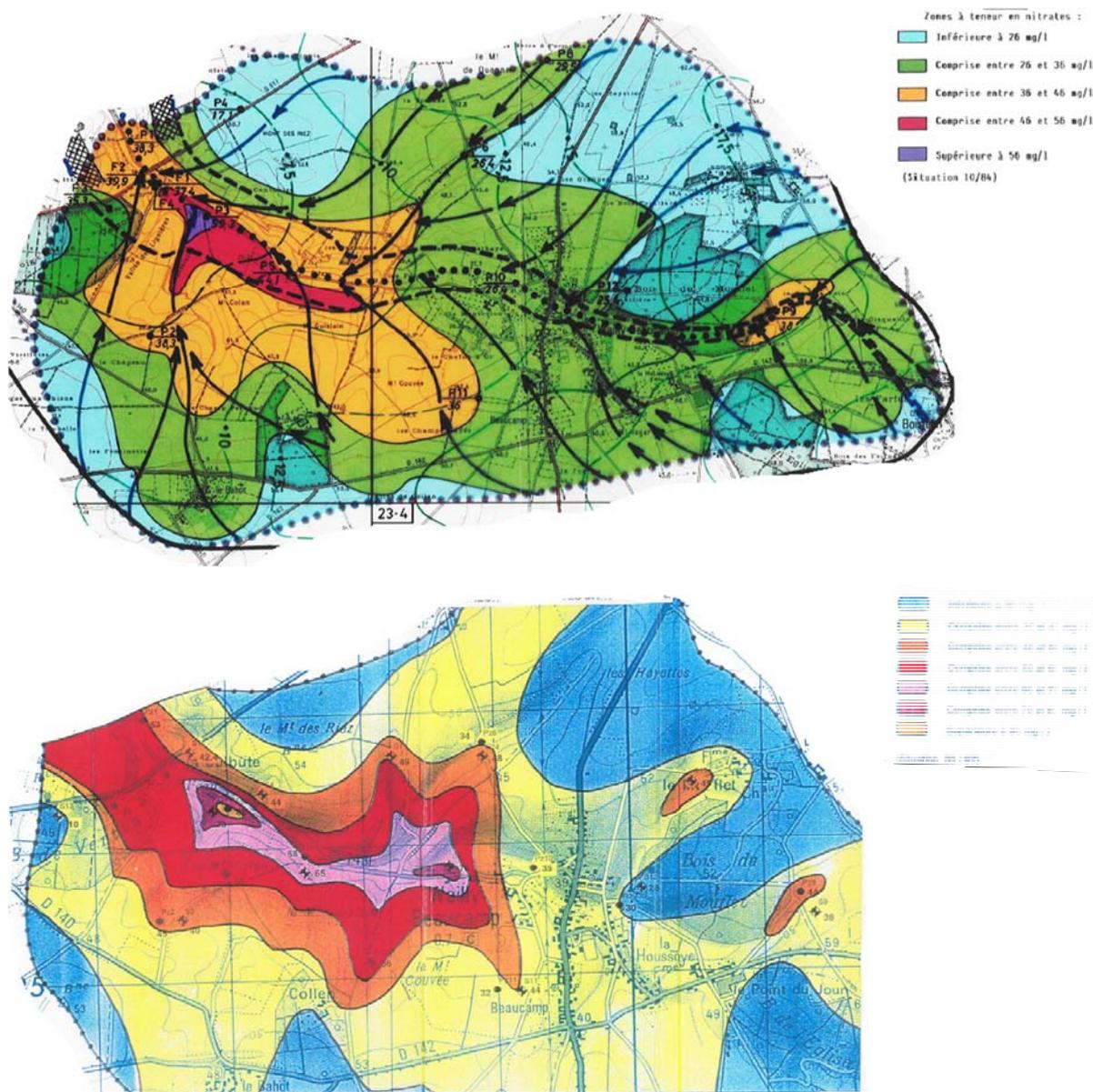


Figure 15 : Répartition des teneurs en nitrates en octobre 1984 (en haut, Préaux et Caulier, 1985) et mars 1997 (en bas, Lacherez et al., 1997).

En février 2018, la répartition entre vallée sèche et plateaux semble inversée par rapport aux campagnes antérieures. En effet, sur l'ensemble des points d'observation sur les plateaux les

concentrations dépassent les 50 mg/L avec des pointes à 73 mg/L (PZ11N) et 69,3 mg/L (Mtdn1, en aval de la carrière de Becquelin-Coulon). Dans la vallée sèche entre Wailly-Beaucamp et les captages, les zones les plus contaminées en 1984 et 1997 montrent aujourd'hui des concentrations moins élevées (43-46 mg/L). Pour autant, les concentrations aux captages sont toujours supérieures à celles mesurées en amont de la vallée sèche. Une explication possible est celle d'une variabilité des concentrations avec la profondeur, les piézomètres PZ3 et PZ5N étant moins profonds que les captages (Figure 9). Nous ne pouvons pas, notamment en dessous de la vallée sèche, exclure des conduits karstiques entraînant des écoulements préférentiels d'eaux plus concentrées en nitrates qu'à l'amont hydraulique immédiat des captages (voir discussion plus loin). De tels écoulements pourraient, par ailleurs, également expliquer la répartition des concentrations en 1984 et 1997 avec l'apparition de maxima de nitrates entourés de points moins concentrés.

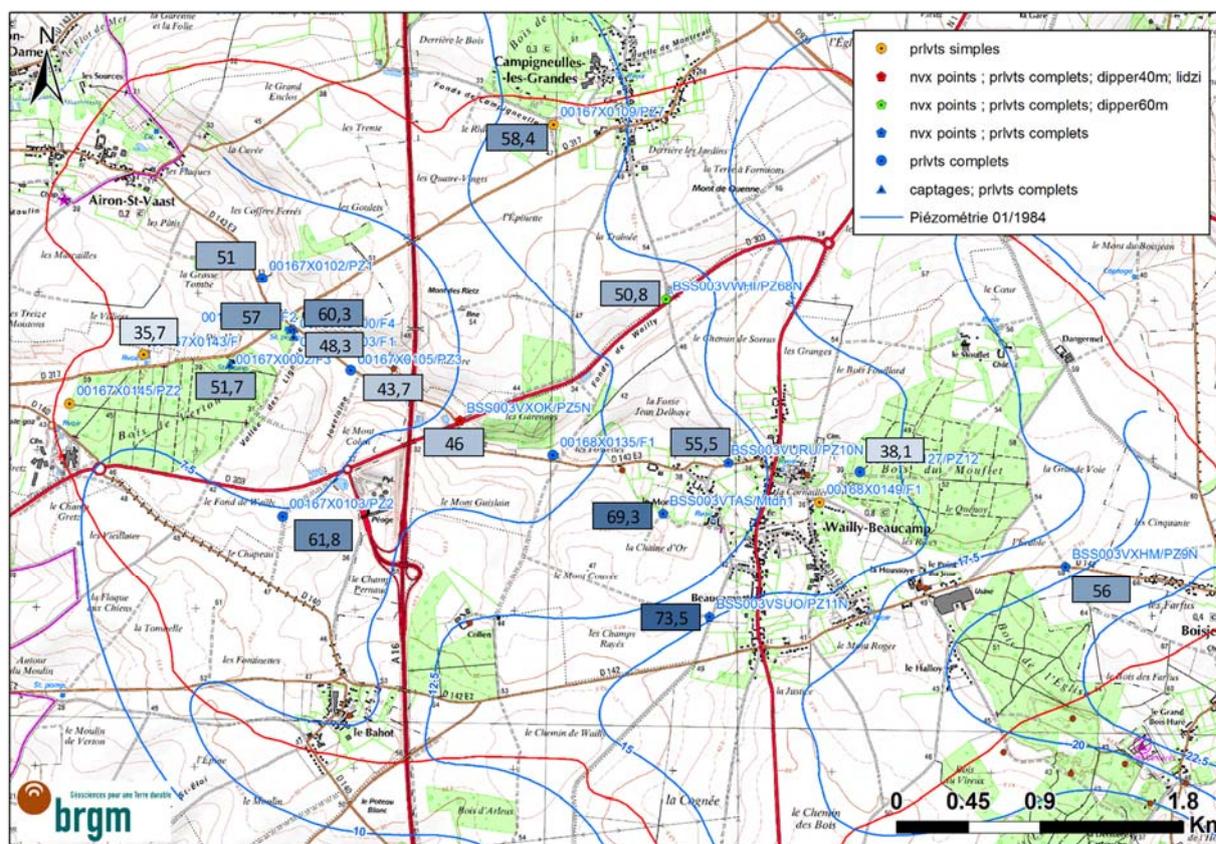


Figure 16 : Répartition des teneurs en nitrates (13-14 février 2018).

## 5.2. CHIMIE DES EAUX

### 5.2.1. Physico-chimie et éléments majeurs

Une majorité des eaux superficielles et souterraines montre une minéralisation modérée avec des conductivités électriques inférieures à 1000  $\mu\text{S}/\text{cm}$  et des teneurs totales en espèces dissoutes (TDS) de 574 à 850 mg/L, les maxima étant situés en aval de la décharge de Montodion.

Les eaux sont toutes oxydantes avec des potentiels d'oxydo-réduction (Eh) positifs et des teneurs en oxygène dissous comprises entre 69% et 96% de la saturation, le point le plus faible étant



### 5.3. ORIGINES ET TRANSFORMATIONS DE L'AZOTE LORS DU TRANSPORT

#### 5.3.1. Les isotopes de l'azote (NO<sub>3</sub>) : traçage direct de la pollution azotée

Les isotopes de l'azote et de l'oxygène, comme évoqué en chapitre 3.1, sont des traceurs dits « intrinsèques » de la pollution en nitrates : ils sont transportés de la même façon et à la même vitesse que le contaminant. Lors des transformations des nitrates par différents processus dans le sol, dans la zone non saturée et dans la nappe, les rapports isotopiques peuvent changer de façon caractéristique. Les sources initiales peuvent alors devenir plus difficile à identifier, mais, connaissant les fractionnements isotopiques liés aux réactions dans le cycle de l'azote, il est possible de mieux comprendre si et où l'azote est stocké et comment il est transporté jusqu'à la nappe.

La Figure 18 montre les concentrations et les signatures isotopiques de l'azote des eaux analysées pour cette étude. Les valeurs de  $\delta^{15}\text{N}$  sont relativement peu variables, avec une moyenne de 3,8 ‰ vs. AIR. Ces valeurs se situent dans une gamme comparable à celles mesurées dans un contexte similaire (aquifère de la craie, vallée sèche et plateaux) à Caix (Kloppmann *et al.*, 2017) ainsi que dans certaines études antérieures, notamment dans le Haut-Rhin (Kloppmann, 2003; Kloppmann *et al.*, 2014) sans que l'on observe des signes de dénitrification comme dans certaines eaux du Haut-Rhin (zone gris clair dans la Figure 18). La comparaison avec les signatures des sources primaires (partie droite de la Figure 18) montre que les eaux des captages F1, 2 et 4 se situent à la limite de deux domaines, celui des **sources organiques**, avec des valeurs de  $\delta^{15}\text{N}$  supérieures à +5‰, tels que les fumiers ou lisiers mais aussi l'urée de certains fertilisants et les eaux usées domestiques, et celui des **sources minérales** (engrais minéraux contenant nitrates ou ammonium ou les deux). Celui du captage F3 est plutôt compatible avec des engrais minéraux, comme la plupart des eaux du plateau.

Le graphe détaillé (Figure 19) montre une différenciation significative et intéressante entre deux groupes, le premier comprenant les eaux de la vallée sèche, les captages F1, F2 et F4 se situant hydrauliquement en aval des points de la vallée et le piézomètre d'observation de la décharge de Montodion. Le deuxième groupe comprend l'ensemble des points situés sur les plateaux ainsi que le captage F3, hydrauliquement plutôt en aval du plateau sud.

On doit noter la différence significative (en prenant en compte l'incertitude analytique) entre le piézomètre de Montodion et le piézomètre PZ11N, directement en amont du premier et montrant des concentrations en nitrates similairement élevées, autour de 70 mg/L. On peut en conclure que les sources de nitrates ne sont pas les mêmes dans les deux cas, malgré la proximité géographique et les concentrations similaires. Les captages, sauf F3, montrent une signature isotopique qui s'approche de celle de Montodion, ce qui est un premier signe d'une influence possible de cette décharge sur la qualité de l'eau des captages (voir discussion plus bas).

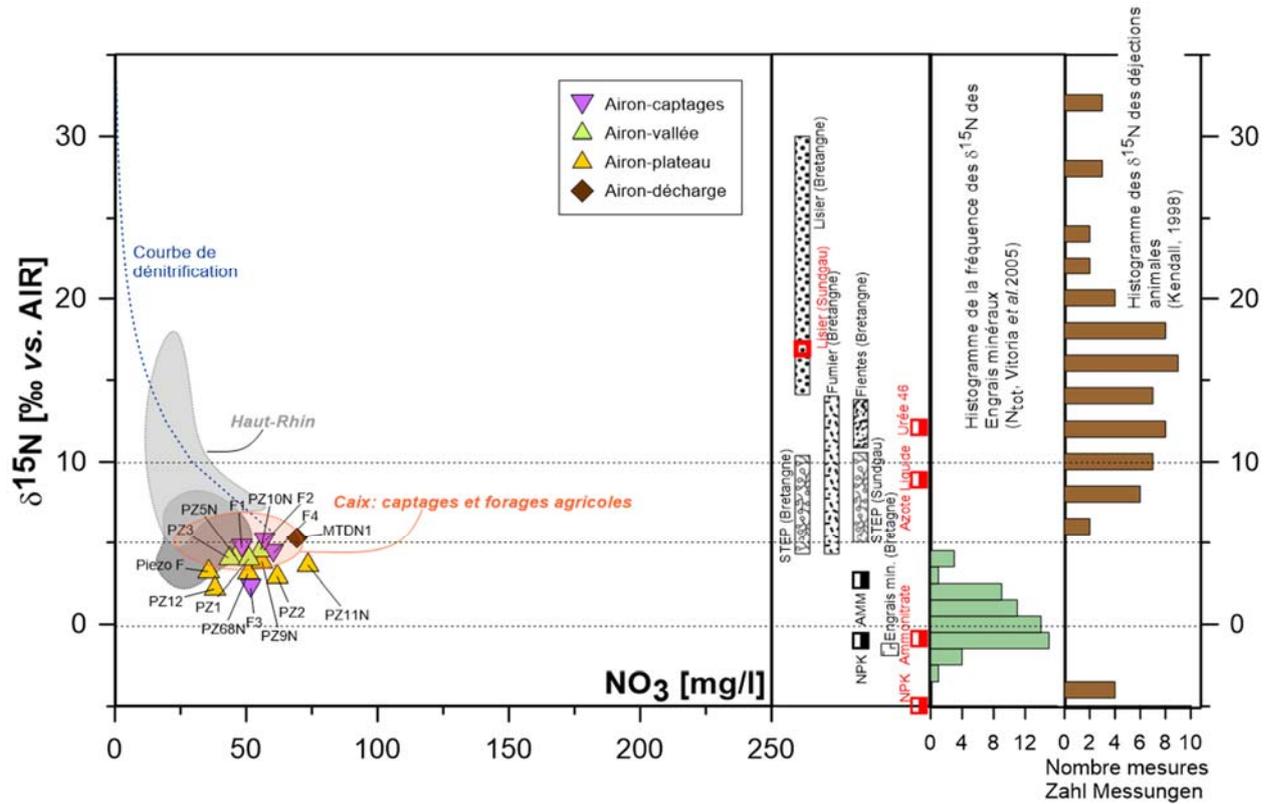


Figure 18 : Rapports isotopiques ( $\delta^{15}\text{N}$  exprimés en ‰ vs. AIR) de l'azote dissous versus les teneurs en nitrates dans les eaux superficielles et souterraines du secteur étudié. Comparaison avec les rapports isotopiques des pôles polluants potentiels (études BRGM et données bibliographiques). Explications des modèles de dénitrification (courbes pointillées) dans le texte (chapitre 5.3.3).

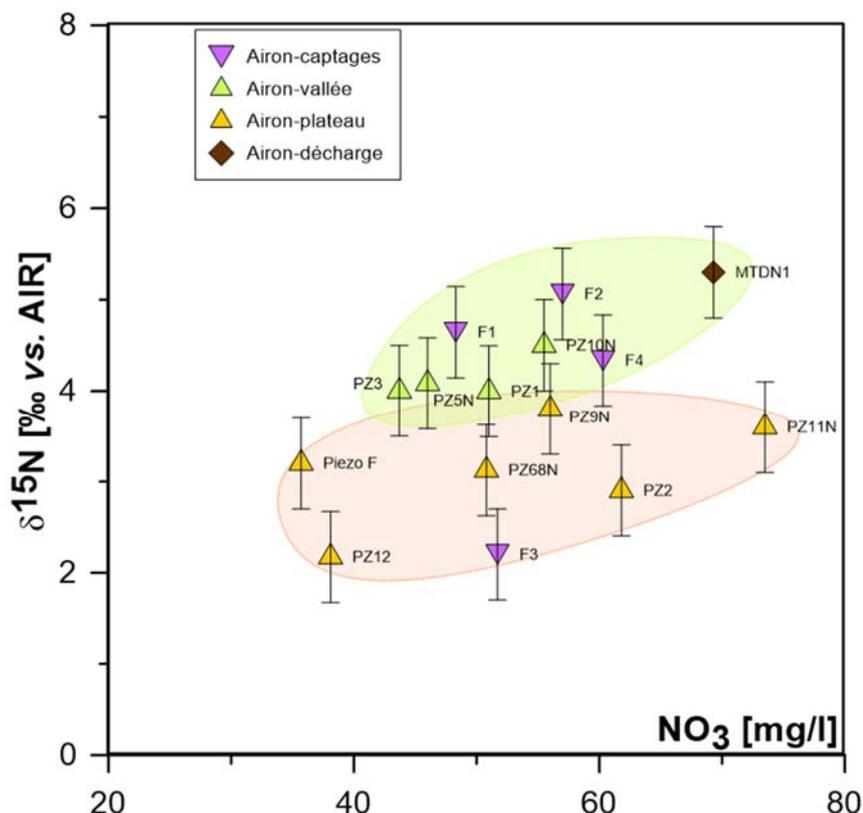


Figure 19 : Rapports isotopiques ( $\delta^{15}\text{N}$  exprimés en ‰ vs. AIR) de l'azote dissous versus les teneurs en nitrates dans les eaux superficielles et souterraines du secteur étudié. Détail de la Figure 16.

### 5.3.2. Quels sont les processus de stockage, de transformation et de transport de l'azote vers la nappe ?

La combinaison des isotopes de l'azote avec les isotopes de l'oxygène permet en principe une meilleure discrimination entre les nitrates d'origine organique et minérale (Figure 20) selon les travaux de Kendall et coauteurs (Kendall *et al.*, 2007). Pour l'ensemble des points du secteur d'Airon Saint Vaast, apparaît une composition isotopique très homogène pour l'oxygène, avec des valeurs variant entre +2,4 et +5,5 ‰. Comme pour l'étude de Caix, aucun des points ne montre la signature caractéristique de fertilisants minéraux contenant l'azote sous forme de nitrates. L'ensemble des points se situe à la limite des domaines des nitrates issus de la nitrification d'ammonium (soit issu de fertilisants minéraux ou du sol) selon  $\text{NH}_4^+ \rightarrow \text{NO}_2^- \rightarrow \text{NO}_3$  et ceux issus de la minéralisation et nitrification d'azote organique (fertilisants organiques ou eaux usées domestiques).

L'absence totale des signatures des fertilisants minéraux **contenant des nitrates** (NPK, Ammonitrate...), permet de conclure sur une **modification et homogénéisation du signal d'entrée par des processus dans le sol**, de façon analogue à ce qui a été observé à Caix (domaine rouge dans Figure 13). En effet, certaines études de terrain (ex. Einsiedl & Mayer, 2006), ou expérimentales (Mengis *et al.*, 2001, Sebilo *et al.*, 2013) suggèrent qu'une partie significative de l'azote des fertilisants minéraux appliqués en excès sur des sols agricoles est d'abord **immobilisée** sous forme d'azote organique, soit par les bactéries du sol, soit sous forme de débris végétaux. Il est ensuite **minéralisé** pour former de l'ammonium  $\text{NH}_4^+$  plus **nitrifié** en nitrate (via des nitrites) selon  $\text{NH}_4^+ \rightarrow \text{NO}_2^- \rightarrow \text{NO}_3$ . C'est majoritairement ce nitrate « secondaire » qui est finalement lessivé et transporté vers la nappe.

L'oxygène des nitrates produits par la nitrification d'ammonium est généralement considéré comme étant dérivé à un tiers de l'oxygène atmosphérique dissous et à deux tiers de l'oxygène de l'eau selon :

$$\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3} = 2/3 (\delta^{18}\text{O}_{\text{H}_2\text{O}}) + 1/3 (\delta^{18}\text{O}_{\text{O}_2}) \text{ (Kendall et al., 2007 et références citées)}$$

Connaissant la composition moyenne de la recharge efficace (moyenne de la nappe avec  $\delta^{18}\text{O}$  d'environ -6,5 ‰ proche de la côte du Pas-de-Calais, Millot *et al.*, 2010a) et celle de l'oxygène de l'air (+23,5 ‰), on obtient un  $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$  de +3,5 ‰, proche de la valeur médiane de +2,4 ‰ observée pour l'ensemble des valeurs. La Figure 20 montre cette valeur théorique (ligne pointillée verte).

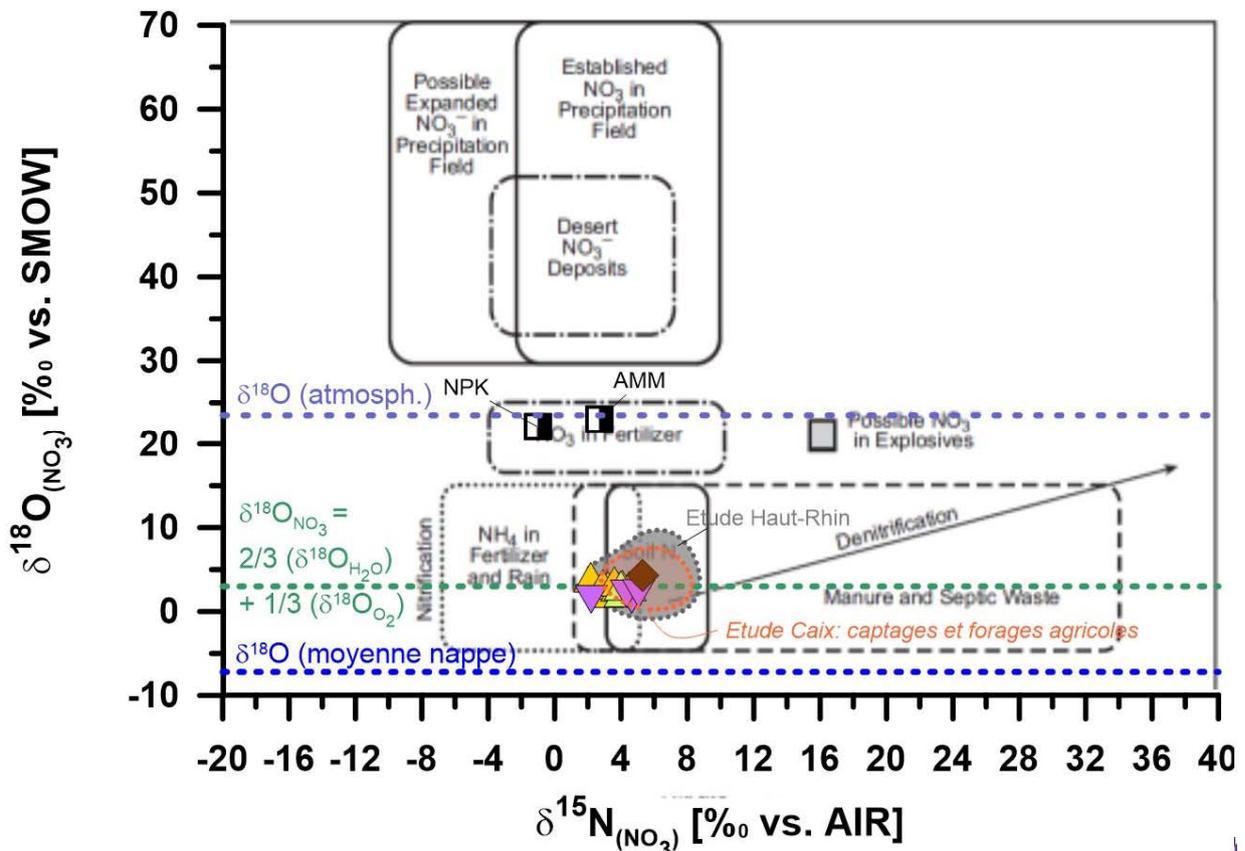


Figure 20 : Rapports isotopiques de l'azote ( $\delta^{15}\text{N}$ ) et de l'oxygène ( $\delta^{18}\text{O}$ ) des nitrates dans les eaux superficielles et souterraines du secteur étudié. Comparaison avec les signatures de différentes sources d'azote (Kendall et al., 2007).

L'homogénéité des signaux, notamment des isotopes de l'oxygène indique donc une fixation et transformation de l'ensemble de nitrates dans le sol, quelle que soit leur origine, avant l'exportation vers la nappe. Cette observation a des implications importantes sur la vitesse des transferts de l'azote vers les captages. Une étude de l'immobilisation de l'azote dans un sol crayeux a été menée dans un contexte géologique tout à fait comparable à celui d'Airon-Saint-Vaast (Sebilo *et al.*, 2013) près de Chalons en Champagne. Une seule application d'un fertilisant minéral marqué isotopiquement (artificiellement très enrichi en  $^{15}\text{N}$ ) a été effectuée en 1982. Le terrain a été par la suite cultivé normalement avec une rotation betteraves/pois/blé d'hiver et une application adaptée de fertilisants non marqués.

Après 27 ans de culture continue, 12-15% de l'azote de cette unique application de fertilisant marqué sont encore présents dans le sol sous forme d'azote organique, 61-65% avait été absorbés par les cultures et 8-12% ont été exportés vers la nappe. Les auteurs estiment qu'une élimination complète de ce stock durera un siècle.

L'immobilisation des nitrates dans le sol sous forme d'azote organique, comme nous avons pu la mettre en évidence via les isotopes de l'oxygène des nitrates, augmente donc considérablement le temps de résidence de l'azote dans le système sol-ZNS-nappe et se rajoute au temps de transfert dans la zone non saturée et dans la nappe. Ceci a un impact important sur le temps de réponse du bassin par rapport à des mesures correctives visant à réduire l'excès en nutriments.

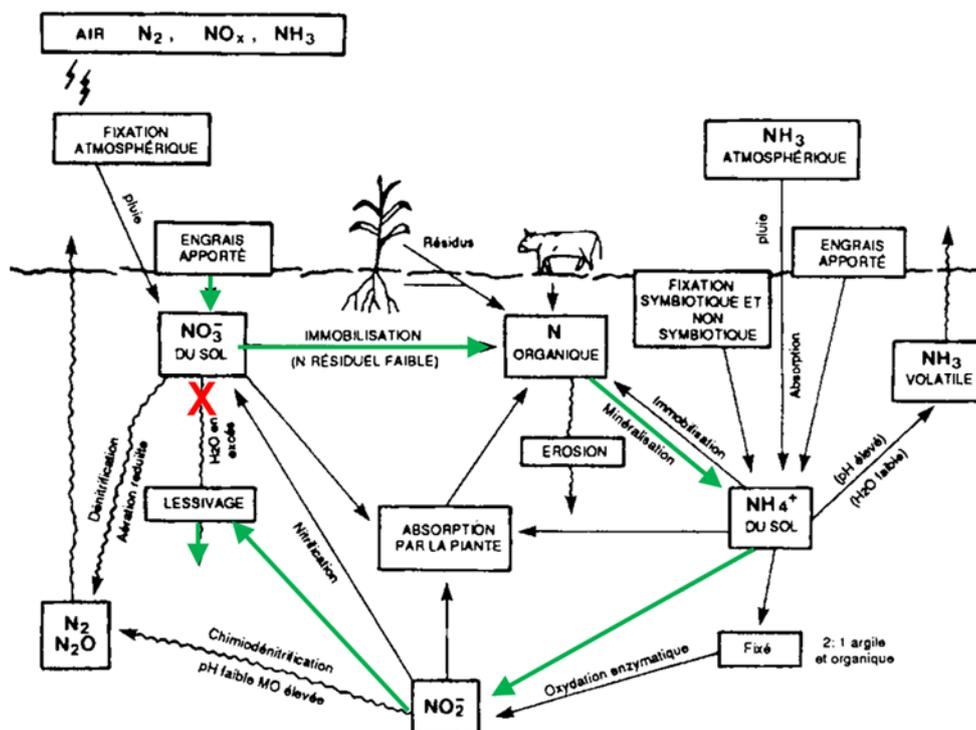


Figure 21 : Concept des transformations et du transport de l'azote dans le sol de l'AAC Airon-Saint-Vaast. Le chemin présumé des transformations de l'azote est indiqué par les flèches vertes.

En conclusion nous pouvons dire que :

- Les signatures isotopiques des nitrates se situent à la limite des signatures « organiques » (fertilisants organiques, urée ou eaux usées) et « minérales » (fertilisants minéraux contenant, à part variable, de l'azote sous forme nitrates et ammoniacale) ;
- Les signatures des eaux des plateaux (plutôt dans le domaine des fertilisants minéraux) et de la vallée sèche dans laquelle se situent les captages F1,2,4 ne sont pas les mêmes, les dernières se rapprochant de celle de la décharge de Montodion.
- Les deux points, voisins, qui montrent la plus forte concentration en nitrates, Montodion (MTDN1) et PZ11N, n'ont pas la même signature isotopique, ce qui pourrait indiquer des sources différentes.
- Nous n'observons pas de transfert direct et rapide de nitrates issus du lessivage de fertilisants minéraux (**sous forme nitrates**) vers la nappe ;

- L'ensemble de l'azote en excès, qu'il soit issu de fertilisants minéraux (nitrates ou ammoniacaux) ou de matière organique semble passer par des processus de fixation, minéralisation et nitrification dans le sol avant d'être lessivé vers la nappe. Ces processus devraient augmenter le temps de résidence de l'azote dans le sol ;
- Il n'y a pas de signe de dénitrification dans les signatures isotopiques des nitrates (voir le chapitre 5.3.3 suivant).

### 5.3.3. Processus de dénitrification

Plusieurs indicateurs existent pour nous renseigner sur l'existence de processus de dénitrification qui pourraient atténuer la pollution azotée par une transformation partielle de l'azote en azote gazeux  $N_2$  ou  $N_2O$ . De tels processus ont été mis en évidence dans un certain nombre de bassins versants en France et à l'étranger (Pauwels *et al.*, 2000, Widory *et al.*, 2004, Widory *et al.*, 2013).

Une première indication sur l'existence de conditions qui favoriseraient la dénitrification dans un aquifère sont les paramètres d'oxydo-réduction, à savoir le taux d'oxygène dissous et le potentiel redox (Eh). Les taux d'oxygène dans la nappe sur l'AAC d'Airon-Saint-Vaast varient entre 76% et 95% du taux de saturation (Tableau 3) et les valeurs du potentiel redox Eh corrigé entre 461 et 556 mV. Ces valeurs sont typiques des eaux d'une nappe bien oxygénée, d'un milieu oxydant qui ne favorise pas la dénitrification.

Le deuxième indicateur sont les isotopes de l'azote et de l'oxygène des nitrates. Comme souligné dans le chapitre 3.1.1, la dénitrification bactérienne favorise l'azote et l'oxygène isotopiquement léger qui se transforme préférentiellement en gaz ( $N_2$  ou  $N_2O$ ), laissant les nitrates résiduels enrichis en isotopes lourds. Ce processus devrait faire évoluer la composition isotopique des nitrates sur des droites caractéristiques de pente 1 à 2 dans le diagramme  $\delta^{15}N$  vs.  $\delta^{18}O$  (Figure 20). Il paraît évident, compte-tenu de l'homogénéité des signatures pour l'ensemble des eaux, qu'aucune dénitrification significative ne peut être mise en évidence.

En conclusion, les conditions géochimiques dans la nappe ne favorisent pas une dénitrification et nous n'avons pas d'indication d'un tel processus dans les signatures isotopiques des nitrates sur l'AAC d'Airon-Saint-Vaast. **En matière de gestion de la ressource, on ne peut espérer aucune atténuation naturelle de la pollution en nitrates dans la nappe.**

### 5.3.4. Isotopes du bore : Quel est le rôle respectif des sources agricoles et des eaux usées ?

Les isotopes du bore (rapport  $^{11}B$  vs.  $^{10}B$  exprimé en  $\delta^{11}B$  vs. NBS951) font apparaître deux groupes de points bien distincts qui se caractérisent aussi par des concentrations en bore différentes (Figure 23) :

- (1) Un groupe avec des concentrations en bore inférieures à 20 $\mu$ g/L et des valeurs de  $\delta^{11}B$  supérieures à +25‰. Ce groupe comprend l'ensemble des points situés sur les plateaux ainsi que le captage F3.
- (2) Le deuxième groupe fait apparaître une tendance vers des valeurs de  $\delta^{11}B$  moins élevées à concentrations en nitrates et bore croissantes. Dans les deux graphes,  $\delta^{11}B$  versus concentrations en nitrates et  $\delta^{11}B$  vs. concentrations en bore (Figure 22 et Figure 23), cette tendance linéaire se dessine assez clairement. Ce groupe comprend les piézomètres dans l'axe de la vallée sèche et les captages F1, F2 et F4 ainsi que, comme point extrême, le piézomètre de la décharge de Montodion.

Nous pouvons constater que le groupement est le même que celui basé sur les isotopes de l'azote. Les points sur les plateaux montrent une signature du bore similaire à celle des pluies

côtières en France : le  $\delta^{11}\text{B}$  varie de 27,5 et 40,6 ‰ dans les pluies de la station de Brest (Millot *et al.*, 2010b). Il est intéressant de constater que ces signatures correspondent à celles des déjections animales mesurées en Bretagne (Widory *et al.*, 2004). Il apparaît que la signature marine des pluies côtières, la mer ayant un  $\delta^{11}\text{B}$  de +39,5 ‰, se conserve dans le couvert végétal et se retrouve dans la matière organique produite par les animaux d'élevage, même si leur alimentation peut comprendre d'autres sources de bore.

On ne peut néanmoins pas en conclure que la pollution en nitrates des plateaux est essentiellement liée aux fertilisants organiques. Les isotopes de l'azote semblent nous indiquer le contraire. Puis, surtout, il n'apparaît aucune corrélation entre les concentrations en bore et les teneurs en nitrates, les premières restant très basses même pour des teneurs en nitrates très élevées, comme celle du point PZ11N. Le bore ne semble donc pas être lié à la contamination en nitrates pour les points sur les plateaux et n'est donc pas un co-traceur pertinent.

En revanche, ce n'est pas le cas pour les points dans l'axe de la vallée sèche. Pour ces points apparaît une tendance claire vers des  $\delta^{11}\text{B}$  inférieures à +15‰ pour les piézomètres et captages les plus riches en nitrates et en bore (F2, F4 et MTDN1). Cette tendance indique un mélange entre un pôle du type « plateau » et un pôle que l'on peut associer à la décharge (point MTDN1). Cette dernière pourrait procurer du bore avec une signature du type « fertilisants minéraux » à une eau déjà riche en nitrates telle que celle du piézomètre PZ11N en amont. Un modèle de mélange entre les points PZ11N et PZ2 représentant des pôles de mélange du type « plateau » et le point MTDN1 est représenté par les courbes pointillées dans le graphe de la Figure 19. Ce modèle suggère que les captages F1, F2 et F4 pourraient contenir entre 60 et 90% d'eau de MTDN1.

Il est néanmoins étonnant que ce ne soient pas les eaux directement en aval de la décharge dans la vallée sèche qui sont géochimiquement les plus proches du point d'observation de la décharge mais bien les eaux des captages F2 et F4. Il se pose donc la question sur les circulations dans et autour de l'axe de la vallée. Une connexion entre décharge et captage paraît assez claire mais elle devrait se faire par des circulations préférentielles (plus profondes ?) « contournant » dans une certaine mesure les piézomètres de la vallée sèche, moins marqués par les eaux de la décharge. Ces hypothèses seront confortées par les observations sur les teneurs en chlorofluorocarbures (voir chapitre 5.4).

Les conclusions sur la base des isotopes du bore sont les suivantes :

- Les eaux du plateau ne semblent pas marquées par des fertilisants minéraux riches en bore tel que celles utilisées pour les betteraves (du type Chelal B utilisé sur l'AAC de Caix). Les caractéristiques chimiques et isotopiques des points des plateaux peuvent indiquer la prépondérance de fertilisants organiques ou fertilisants minéraux pauvres en bore.
- Le captage F3 a des signatures similaires aux eaux des plateaux.
- **Les eaux de la vallée sèche et les captages F2 et F4, à un moindre degré F1, semblent clairement influencées par la décharge.** Cette dernière se caractérise par un apport de bore, compatible avec celui des engrais minéraux.

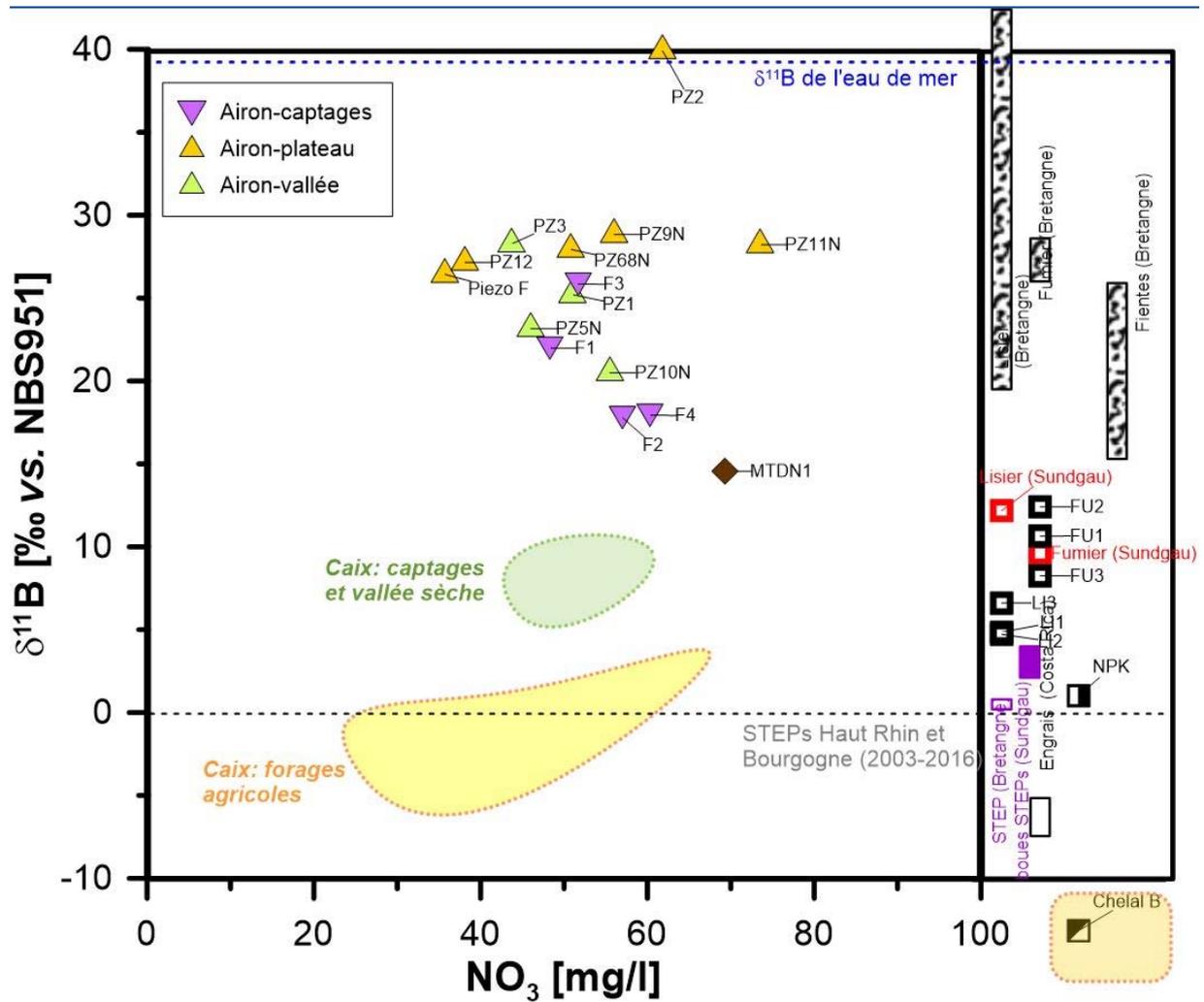


Figure 22 : Rapports isotopiques ( $\delta^{11}\text{B}$  exprimés en ‰ vs. NBS951) du bore dissous dans les drains et eaux souterraines du secteur étudié vs. les concentrations en nitrates. Comparaison avec les rapports isotopiques des pôles polluants potentiels (cette étude et données bibliographiques).

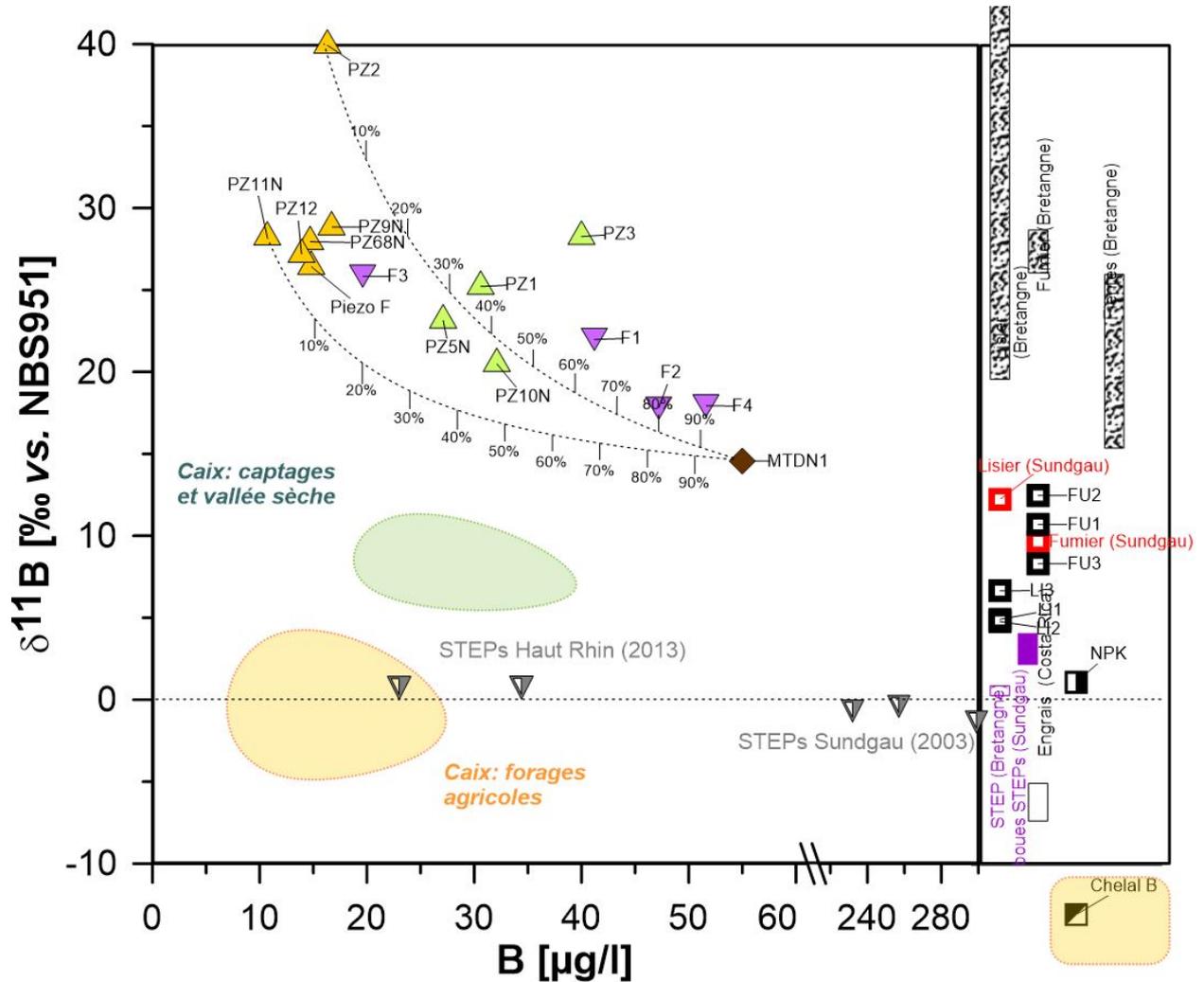


Figure 23 : Rapports isotopiques ( $\delta^{11}\text{B}$  exprimés en ‰ vs. NBS951) du bore dissous dans les drains et eaux souterraines du secteur étudié vs. les concentrations en bore. Comparaison avec les rapports isotopiques des pôles polluants potentiels (cette étude et données bibliographiques). Lignes pointillées : modèle de mélange entre MTDN1 et PZ11N et PZ2 avec pourcentages de la contribution de MTDN1.

#### 5.4. CFCs ET SF<sub>6</sub>: INDICATEURS DE CONTAMINATION PONCTUELLE ET DU TEMPS DE RESIDENCE DE L'EAU

Nom	CFC-12	±	CFC-11	±	CFC-113	±	SF <sub>6</sub>	±
	[pmol/l]		[pmol/l]		[pmol/l]		fmol/l	
F1	11	3	42	13	2	0,2	2,5	0,3
Piezo F	2,9	0,2	15	3	0,6	0,1	2	0,3
F3	2,8	0,2	17	4	0,44	0,05	2,3	0,3
PZ10N	3,3	0,2	12	3	2,4	0,3	2,8	0,3
F4	33	7	370		0,21	0,05	2	0,2
F2	26	6	330		0,7	0,1	1,9	0,2
PZ68N	6	0,4	13	3	9	2	1,7	0,2
PZ5N	3,1	0,2	8	1	11	3	2,6	0,3
PZ12	4,6	0,3	14	3	90		2,5	0,3
PZ2	2,6	0,2	10	1	2,1	0,3	2,3	0,3
PZ9N	6,1	0,4	23	5	70		2	0,3
PZ3	5,1	0,3	43	13	0,38	0,05	2,8	0,3
PZ7								
PZ1	3,6	0,2	14	3	14	3	2,4	0,3
PZ11N	3,4	0,2	9	1	0,5	0,1	2,9	0,3
MTDN1	140		700		0,39	0,05	2,9	0,3

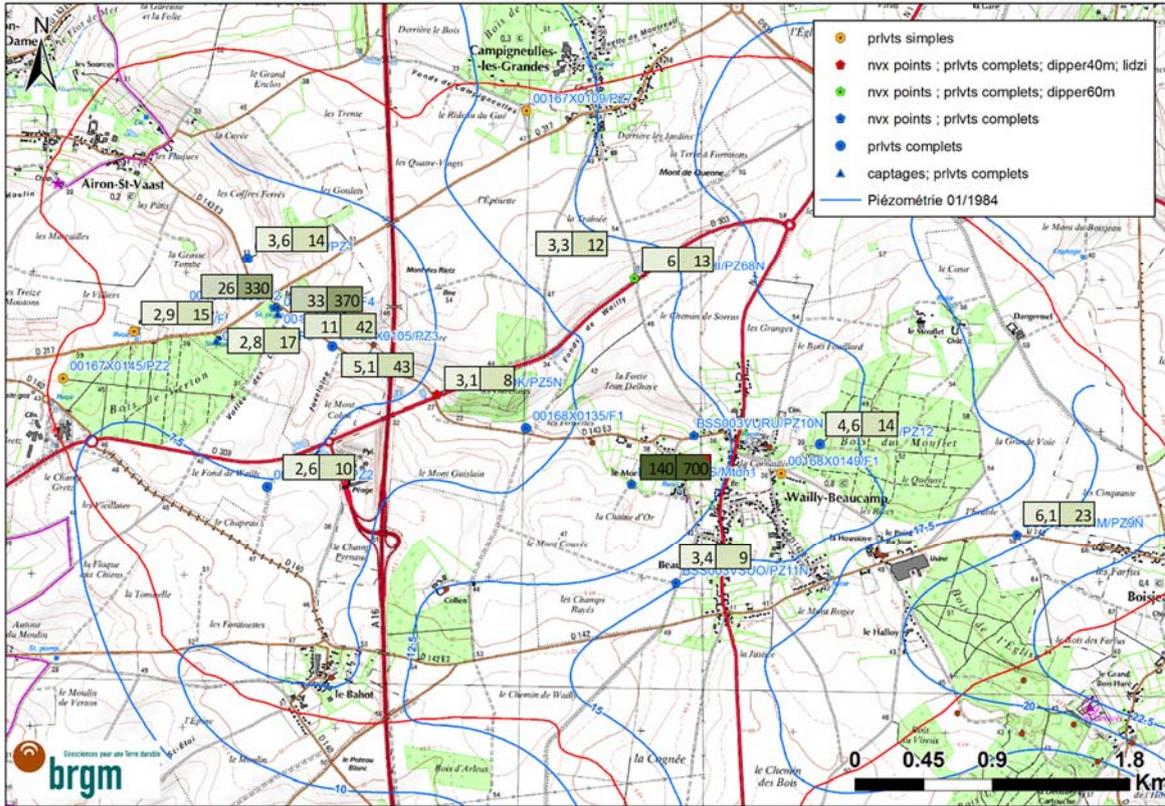


Figure 24 : Concentrations en CFC-12 (chiffre gauche) et CFC-11 (chiffre droite) dans les piézomètres et captages analysés. Les valeurs pour Montodion (MTDN1) sont des minimas.

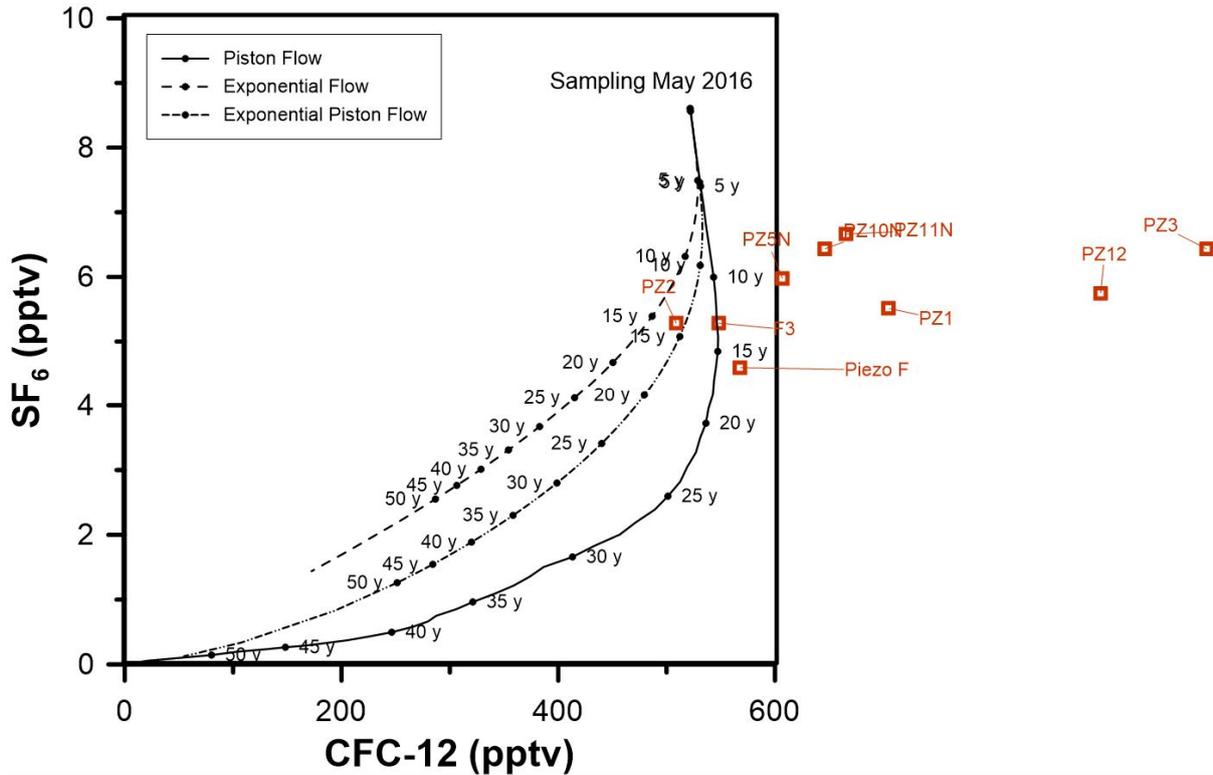


Figure 25 : Concentrations calculées du SF<sub>6</sub> et du CFC-12 (en parts par billion volumiques, 10<sup>-12</sup>) dans la phase gazeuse en équilibre avec les échantillons analysés.

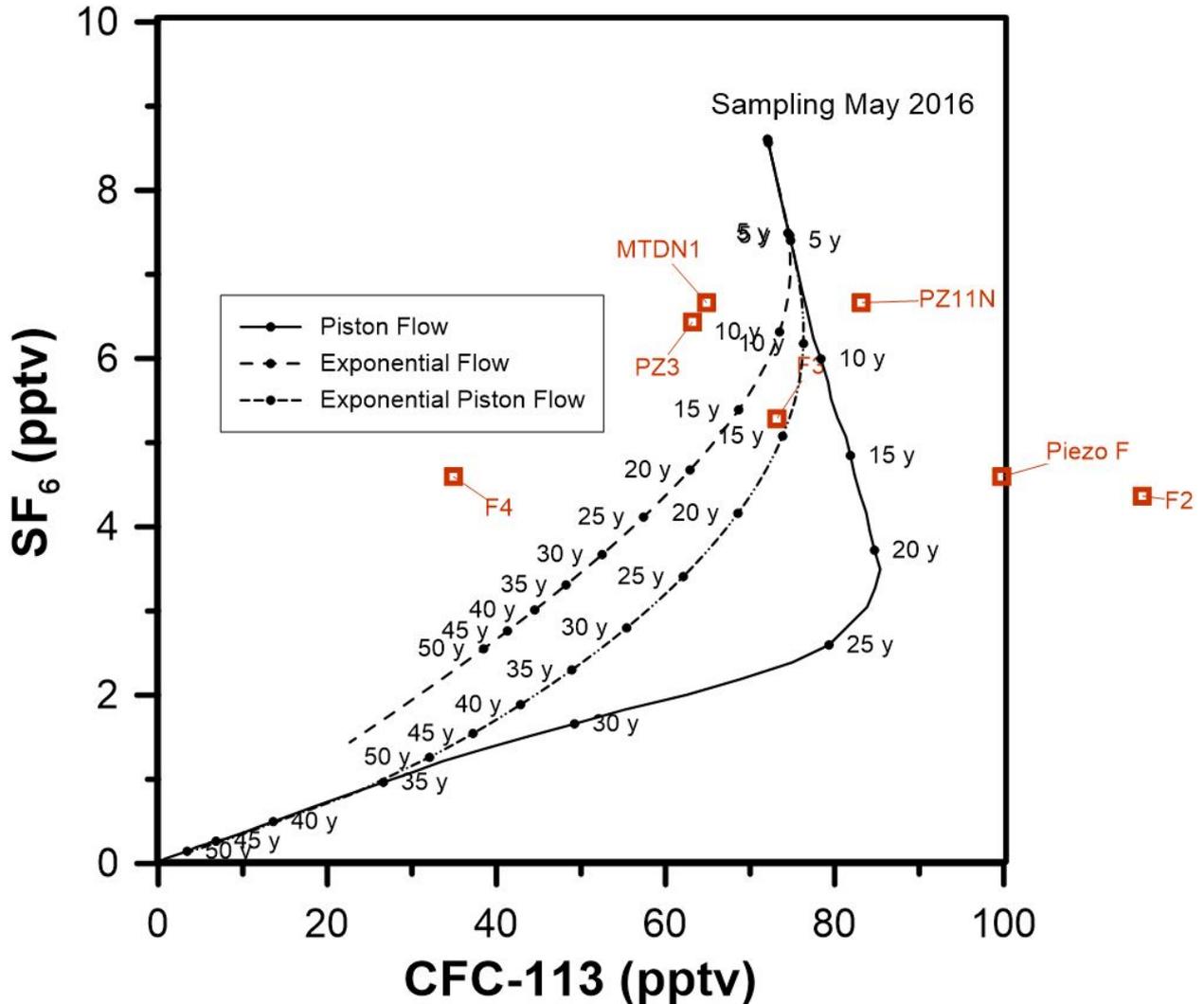


Figure 26 : Concentrations calculées du SF<sub>6</sub> et du CFC-113 (en parts par billion volumiques, 10<sup>-12</sup>) dans la phase gazeuse en équilibre avec les échantillons analysés.

Le premier constat concernant les concentrations en CFCs est celui d'une forte contamination locale de plusieurs points en CFC-12 et CFC-11. Les concentrations dans le piézomètre d'observation de la carrière de Becquelin-Coulon à Montodion atteignent et dépassent respectivement les 140 et 700 pmol/L (Tableau 7), ce qui correspond à 27400 et 35800 pptv. Ces concentrations sont donc 50 fois et plus de 130 fois plus élevées que les concentrations atmosphériques maximales pour le CFC-12 et le CFC-11. Les teneurs en CFC-113 et SF<sub>6</sub> par contre sont dans la gamme normale des valeurs atmosphériques. Les deux composés, CFC-12 et CFC-11 ayant été utilisés notamment comme agents réfrigérants (réfrigérateurs et climatisation), comme agents d'expansion et gaz propulseurs, **la source locale est à rechercher dans l'ancienne décharge**. Un seul ancien réfrigérateur peut contenir 600 à 1000 ml de CFC-12 alors que moins de 2 ml de CFC-12 ou CFC-11 suffisent pour contaminer un aquifère de 15 m d'épaisseur sur 10 km<sup>2</sup> à des valeurs dix fois supérieures des valeurs atmosphériques (Morris *et al.*, 2006).

En aval, nous trouvons dans les captages F4, F2 des concentrations en CFC-11 et CFC-12 très élevées. Elles dépassent les valeurs atmosphériques environ d'un facteur 70 pour le CFC-11 et environ 10 pour le CFC-12 alors que les valeurs en CFC-113 sont proches de la normale, comme pour le piézomètre de la décharge.

A un moindre degré, cette contamination est encore visible dans le captage F1 mais pas dans le captage F3. Ces valeurs ne posent pas de problème sanitaire, les concentrations des gaz dissous restant dans une gamme de quelques centaines de picogrammes par litre (inférieures à un ng/L) mais sont un **indicateur clair de l'influence de la décharge sur les captages**. Cette observation corrobore celles sur les isotopes et concentrations du bore, ainsi que sur les isotopes de l'azote qui suggèrent tous une **contribution significative d'eaux ayant transitée par la décharge aux captages F4 et F2**, et à un moindre degré pour F1, alors que les mêmes traceurs indiquent une absence d'une telle influence pour le captage F3.

Comme souligné dans le chapitre 3.1.3 résumant la méthodologie, les outils de « datation » par les concentrations en CFCs et en SF<sub>6</sub> permettent d'estimer le temps de résidence moyen (TRM) dans l'aquifère, selon des modèles types (flux piston, mélange exponentiel, mélange entre composante vieille et jeune) sous certaines conditions. D'abord, l'eau doit être isolée de l'atmosphère, ce qui limite la méthode aux eaux souterraines et exclut les eaux de surface. Ensuite, les apports en CFCs et SF<sub>6</sub> doivent être exclusivement d'origine atmosphérique globale, toute contamination industrielle locale ou ponctuelle interdisant une datation par le traceur concerné. Et finalement, toute (bio-)dégradation d'un traceur dans la nappe induit des pertes de ce traceur, et donc des erreurs sur la datation. La comparaison du comportement de plusieurs traceurs permet, en général, d'identifier facilement d'éventuelles contaminations ou pertes de traceurs.

Le seul traceur utilisable pour la datation pour l'ensemble des points d'Airon-Saint-Vaast est le SF<sub>6</sub>. Même si les concentrations sont nettement inférieures à celles mesurées aux captages F4 et F2, tous les points montrent des signes d'apports locaux de CFC-11, ce traceur ne peut donc pas nous renseigner sur le temps de résidence. Seuls quelques points sont exempts d'entrées locales pour le CFC-12 (Piézomètre F, F3, PZ2) ou pour le CFC-113 (F3, F4, PZ3, PZ11N, MTDN1). La fiabilité des datations dépendant du nombre de traceurs utilisables, elle reste malheureusement limitée pour le secteur étudié : seulement un point permet d'utiliser 3 traceurs (F3) et 6 points 2 traceurs (Piézomètre F, F4, PZ2, PZ3, PZ11N, MTDN1).

Le Tableau 8 résume les conclusions sur le temps de résidence ainsi que sur les limites de l'applicabilité de la méthode. Les traceurs exploitables et pris en compte dans le calcul des temps de résidence sont indiqués dans le tableau.

Le modèle le plus adapté semble le modèle exponentiel, correspondant à une recharge homogène sur toute la surface de l'AAC mais le modèle piston peut être pertinent dans le cas de flux plus directionnels (type conduite karstique).

Pour les captages, les temps de résidence varient entre 13 et 16 ans pour les forages F1 et F3, les temps de résidence sont plus élevés pour F2, entre 19 et 26 ans. Le seul modèle applicable au point F4 est celui d'un mélange entre une eau récente (recharge de l'année) et une eau ancienne (>50 ans). On pourrait aussi avoir des mélanges pour les forages F1 et F3, mais le fait d'un seul traceur utilisable (SF<sub>6</sub>) ne permet pas de clairement les détecter. Appliqué au forage F1, le modèle de mélange donne un résultat similaire au F4. La profondeur plus grande du F2, comparée à celles du F1 et du F4, peut expliquer le temps de résidence moyen plus grand. En somme, en matière de vulnérabilité des forages, il faudrait tenir compte de la présence d'une composante très jeune (un an ou moins), avérée pour le F4 et possible pour le F1 et F2. La composante ancienne, présente à environ 50%, devrait présenter une contamination moindre et correspondrait à une circulation plus profonde. Cette idée est corroborée par le fait que le point PZ1, qui capte uniquement la nappe très superficielle, directement en amont des forages F1, 2 et 4, contient 85% d'eau jeune.

Le cas de l'AAC de Caix (Kloppmann *et al.*, 2017) montre que l'épaisseur de la zone non saturée (ZNS) peut avoir un impact sur le temps de résidence. Dans un contexte tout à fait comparable aux zones d'alimentation d'Airon St. Vaast et de Caix, dans un aquifère crayeux sous couverture

paléogène et quaternaire dans le sud de l'Angleterre, Goody *et al.* (2006) ont estimé la durée du transfert des gaz vers la surface de la nappe. **Il en résulte, pour une gamme de 15 à 20 m de profondeur de la nappe (épaisseur de la ZNS), une durée de 20 à 25 ans.** Néanmoins, comme le démontrent Darling *et al.* (1998) pour la craie anglaise, des échanges de gaz libres peuvent être rapides entre la surface du sol et la surface de la nappe. En principe, l'« horloge » des gaz environnementaux est « remise à zéro » quand l'eau s'équilibre avec l'air contenant ces gaz et commence à « tourner » dès que l'eau est isolée de l'atmosphère. Ceci est le cas dans la nappe (en dessous du niveau piézométrique) mais cet isolement peut intervenir plus haut dans certains cas.

Le milieu poreux de la craie est tout à fait particulier, se caractérisant par une double porosité, celle liée à la fracturation et la porosité matricielle des blocs de craie entre les fractures. Dans le cas de Airon-Saint-Vaast, nous partons du principe qu'une partie significative des flux d'eaux et d'azote passent par la porosité matricielle. L'étude hydrodynamique sur le bassin versant de Caix, donc dans un contexte hydrogéologique similaire (Picot-Colbeaux *et al.*, 2017) a démontré (1) que cette porosité interstitielle est saturée, (2) que la porosité des fractures n'est hydrauliquement active que lors d'épisodes pluvieux exceptionnels, (3) que la couverture de limons est très peu perméable.

Les temps de résidence, calculés pour les puits du plateau, d'Airon St. Vaast et de Caix, reflètent donc

- (1) La moyenne des temps de transfert **dans la nappe** entre l'ensemble des points de recharge et le point de prélèvement,
- (2) Le temps de transfert **dans la zone non saturée**, au moins sur une partie de son épaisseur. En effet, nous ne connaissons pas la profondeur exacte de la fermeture du système par rapport aux gaz atmosphériques, qui « déclenche l'horloge » de la datation par les gaz.

Néanmoins, nous n'observons pas une relation claire du temps de résidence moyen avec l'épaisseur de la ZNS ou la profondeur atteinte (altitude du fond de l'ouvrage par rapport au NGF). La nature géologique de la ZNS et des couches sus-jacentes à la craie pourrait jouer un rôle ainsi que l'altération de la craie et l'existence de circuits karstiques.

Tableau 8 : Estimations des temps de résidence (TDRM en ans) par les CFCs et le SF<sub>6</sub> .

Echant.	CFC-11	CFC-12	CFC-113	SF <sub>6</sub>	TDRM (ans) (modèle exp)	TDRM (ans) (modèle piston flow)	TDRM (ans) (modèle combiné piston-exponentiel)	Fraction (age) eau jeune (modèle de mélange, exponential flow)	Profondeur atteinte en m NGF	Epaisseur ZNS en févr. 2018 (m)
F1				+	15	13	14	50% (1 an)	-35.1	10
F2				+	26	19	21		-50	10
F3	+		+	+		15	16		-49.8	20
F4			+	+				47% (0,1 ans)	-35	10
Piezo F	+			+		18			-31.9	40
PZ10N				+	12	10	11		0.9	13
PZ68N				+	31	21	24		-21.6	22
PZ5N				+	14	12	13		-13.8	16
PZ12				+	15	13	14		3.6	26
PZ2		+		+	18	15	16		-1.4	26
PZ9N				+	24	18	20		9.3	34
PZ3			+	+				85% (7 ans)	2.5	7
PZ1				+	17	14	15		-2.8	5
PZ11N			+	+		9	10		6.9	29
MTDN1			+	+				88% (6 ans)	-0.5	23

## 6. Conclusions et perspectives

### 6.1. CONCLUSIONS

Les conclusions sont structurées par rapport aux questions posées sur le fonctionnement de l'AAC d'Airon-Saint-Vaast en général et sur les captages en particulier.

#### ***Quel est le rôle de l'ancienne décharge de Montodion?***

Un faisceau de preuves indique un impact direct de l'ancienne décharge à Montodion :

- Les concentrations en bore et les compositions isotopiques de cet élément sont bien spécifiques pour le piézomètre en aval de la décharge avec ces teneurs plus élevées et des  $\delta^{11}\text{B}$  plus basses. Ces indices se retrouvent dans les captages (F1, 2, 4 mais pas F3) et permettent même d'établir un modèle de mélange indiquant un **apport significatif d'eau ayant transitée par l'ancienne carrière Becquelin-Coulon**.
- Les teneurs en nitrates sont très élevées, autour de 70 mg/L, en aval de la décharge (point MTDN1), mais aussi en amont (PZ11N). En revanche, les signatures isotopiques de l'azote de ces deux points sont significativement différentes indiquant des **sources de nitrates au sein de la décharge**. Les signatures des captages F1, 2 et 4 montreraient une contribution des nitrates issues de la décharge.
- Les teneurs en CFCs en aval de la décharge sont très spécifiques avec une forte anomalie en CFC-11 et CFC-12, probablement liée à des fluides réfrigérants (réfrigérateur). Des teneurs très élevées, comparées à celles attendues pour des apports exclusivement atmosphériques, se trouvent également dans les captages F1, 2, 4. Même si ces concentrations ne présentent pas en elles-mêmes un risque sanitaire, elles sont une autre indication claire de l'influence de l'ancienne carrière/décharge sur les captages, à l'exception de F3.
- Les taux d'eaux jeunes sont très élevés en aval de la décharge (environ 90%) et encore assez élevés dans les captages (environ 50% pour F4) indiquant des **circulations rapides** au sein et autour de la vallée sèche, permettant des apports directs et rapides de l'ancienne carrière aux captages.
- La carrière, ayant éliminé toute protection superficielle, limons et zone non saturée crayeuse, pourrait avoir favorisé les circulations rapides vers et dans la nappe, créant des **courts-circuits hydrauliques** entre la surface, le contenu de la décharge et la nappe. Des conduits karstiques pourraient favoriser la pollution issue de la carrière.
- Le captage F3, situé un peu à l'écart des trois autres captages, ne présente aucun indice d'une influence de la décharge. Il partage toutes ces caractéristiques avec les autres points d'observations des plateaux en dehors de la vallée sèche, y compris leurs teneurs élevées en nitrates.

#### ***Comment évoluent les teneurs en nitrates ?***

Alors que les teneurs semblent se stabiliser pour les captages à des niveaux encore inquiétants, entre 40 et 60 mg/L, les points en dehors de la vallée sèche montrent plutôt des concentrations plus élevées par rapport aux années 80 et 90. Une majorité des points de mesure sur les plateaux dépassent désormais les 50 mg/L. Cette tendance s'expliquerait en partie par un stockage dans

le sol de l'azote sous forme organique avant d'être nitrifié à nouveau et par des transferts lents dans la zone non saturée. En somme, le système sol-ZNS-nappe présente une inertie qui retarde toute réaction à des actions de remédiation sur l'AAC (voir discussion plus bas).

Certains secteurs dans la vallée sèche qui, dans le passé, présentaient les teneurs les plus élevées en nitrates, ont vu leurs concentrations baisser. Il faut néanmoins prendre en compte que ces points pourraient, du fait des circulations plus rapides (notamment PZ3), présenter des variations saisonnières importantes, non détectables avec une seule campagne de mesures.

### **Quelles sont les sources de contamination en nitrates des captages et à l'échelle de l'AAC?**

- Les isotopes de l'azote indiquent des sources différentes pour les plateaux et la vallée sèche en aval de l'ancienne décharge sans que l'on puisse clairement différencier entre sources organiques et engrais minéraux.
- Les isotopes du bore semblent plutôt indiquer des sources organiques prédominantes sur les plateaux alors que le point d'observation de la décharge ainsi que les points dans la vallée sèche tendent vers des valeurs caractéristiques de borates, contenus par exemple dans les engrais minéraux ou les lessives.

### **Quelle est le temps de réponse de l'AAC par rapport aux mesures prises ?**

Les datations des eaux souterraines font apparaître des temps de résidence moyens de l'ordre de 10 à 20 ans pour la vallée sèche et les plateaux. A l'instar du bassin de Caix (Kloppmann *et al.*, 2017), il faudrait prendre en compte la dynamique de trois compartiments :

- (1) le sol agricole où la transformation et fixation des apports azotés en N organique peuvent constituer un stock qui ne se libérera que très progressivement, ce qui peut engendrer des délais considérables (jusqu'à quelques décennies) entre un arrêt de l'application et la fin du lessivage vers les nappes (après minéralisation et nitrification) ;
- (2) la zone non saturée où le flux matriciel dans la porosité interstitielle de la craie est lent (ordre de grandeur : 1 m/a). Nous n'excluons pourtant pas des transferts rapides en cas d'évènements pluvieux exceptionnels (voir Picot-Colbeaux *et al.*, 2017) qui peuvent atteindre la nappe plus rapidement en faisant varier le niveau de la nappe. Ces variations de niveau peuvent libérer une partie de l'azote stocké dans la zone non saturée, mécanisme qui expliquerait la réaction simultanée des teneurs en nitrates et variations piézométriques pour certaines années ;
- (3) la nappe elle-même avec des transferts de l'ordre de la décennie.

Le temps de résilience du système complet (sol-ZNS-nappe) paraît donc très important. Pour ce qui concerne les captages, le temps de résidence moyen estimé se composerait d'apports plus lents par la recharge sur les plateaux et des transferts plus rapides au sein de la vallée sèche dans le périmètre direct des captages et en amont. L'exemple du captage F4 montre que la proportion des deux composantes est à peu près égale. L'ancienne carrière Becquelin-Coulon pourrait favoriser les circulations rapides vers la nappe, compte-tenu de l'enlèvement de toute couverture protectrice (limons de plateau) et d'une perturbation importante de la ZNS.

## 6.2. PERSPECTIVES ET RECOMMANDATIONS

Comme nous disposons d'indications claires de l'influence de l'ancienne décharge sur les captages, un **renforcement des efforts d'investigation et de remédiation sur l'aire de l'ancienne carrière Becquelin-Coulon** et la zone entre carrière et captages semble justifié.

Nous recommandons, dans un premier temps, d'investiguer un **cortège large de polluants** potentiels dans le nouveau piézomètre d'observation en aval de la décharge. L'utilisation de techniques de dépistage non spécifiques (« non-target analysis »), par LC-MS TOF, permettrait d'analyser simultanément un grand nombre de composés sans les cibler a priori et de comparer ces résultats avec des analyses similaires sur les captages. Cette « cartographie » de polluants devrait ensuite orienter des recherches plus ciblées sur des composés individuels ou des familles de substances. Compte-tenu des indications sur les substances qui auraient pu être disposées dans cette décharge, on devrait notamment focaliser cette recherche sur des pesticides.

Il nous semble probable qu'une partie des circulations arrivant aux captages soit rapide (notamment pour les puits F4 et F1). La **karstification de la craie**, notamment sous et autour de la vallée sèche, pourrait favoriser de telles **circulations rapides**. Une investigation combinant des observations géologiques (formes karstiques comme bétoires, dolines etc.), éventuellement géophysiques et hydrogéologiques permettrait de mieux comprendre les connexions entre ancienne carrière et captages. On pourrait notamment envisager des essais de traçage, en limitant les traceurs utilisés à ceux compatibles avec l'usage en eau potable (ex. KCl) entre la zone de l'ancienne carrière et les captages. Ceci donnerait accès au temps de transfert d'eau et de composés dissous vers les captages, permettant de mieux évaluer leur vulnérabilité par rapport aux pollutions ponctuelles en amont.

Pour savoir dans quels intervalles crépinés arrivent les eaux jeunes et les eaux à circulation lente, des **prélèvements à différentes profondeurs** dans les captages F2 et F4 seraient envisageables, à condition que cela soit techniquement possible et compatible avec leur fonctionnement. Leur analyse en SF<sub>6</sub> combinée aux CFCs et au tritium identifierait une éventuelle stratification des « âges » mais aussi la profondeur des arrivées rapides, potentiellement contaminées en CFCs par la décharge.

Nous recommandons également d'examiner, par caméra, l'état des captages, notamment du tubage et des crépines, car les anomalies en chrome et zinc observées sur l'ensemble des ouvrages F1-4 pourraient indiquer une **corrosion**.

Focaliser des mesures sur les pratiques agricoles sur un **périmètre restreint en amont des captages** devraient avoir un effet plus rapide, compte-tenu de la part importante d'eau jeune (<1an de temps de résidence) dans ces ouvrages, sans que nous puissions préjuger de l'ampleur et de l'échéance précise de cet effet. Ceci ne devrait pas empêcher des actions sur l'ensemble de l'AAC qui porteront leurs fruits à moyen ou long terme.

Un point particulièrement sensible est le **piézomètre PZ11N** en amont de Montodion qui a révélé les **concentrations les plus élevées en nitrates de l'AAC** (73,5 mg/L). Il semble important de savoir d'où viennent ces concentrations (pratiques agricoles en amont hydraulique, habitations...).

La **stratégie de protection/remédiation** pour le groupe de captages F1,2,4 devrait différer de celle adoptée **pour le captage F3**. Pour ce dernier, ce sont plutôt les mesures prises sur l'ensemble de l'AAC qui pourraient contribuer à une baisse des teneurs en nitrates, mais, comme nous venons de dire, plutôt à moyen terme. Les mesures sur la décharge et la zone de transit ne devraient pas avoir d'impact important sur la qualité du point F3.

Bien que non prévu à la convention, un suivi piézométrique a été initié sur l'AAC d'Airon-Saint-Vaast. Celui-ci mériterait d'être poursuivi afin de disposer d'une chronique piézométrique représentative de ce secteur. Au-delà de son intérêt dans une gestion quantitative de la ressource, une telle chronique permettrait également d'améliorer la compréhension du fonctionnement de cette ressource. A titre d'exemple, des travaux tels que la modélisation pluie-niveau, et la recherche de corrélation entre évolution des nitrates et évolution piézométrique, peuvent être menées plus sûrement lorsqu'une chronique piézométrique est disponible.

Compte-tenu de l'évolution observée des concentrations en nitrates sur l'ensemble de l'AAC, nous recommandons un suivi régulier (1-2 campagnes par an) sur les points investigués dans cette étude. Ces mesures permettraient d'évaluer l'efficacité des actions de remédiation sur l'ensemble du bassin. En parallèle, les variations à court terme (saisonniers), à l'instar de nos mesures sur les points BSS003VWHI/PZ68N et BSS003VXOK/PZ5N, devraient être suivies, de façon automatisée par des capteurs de nitrate, dans des ouvrages sélectionnés et dans un captage (de préférence F4 avec son importante composante à circulation rapide), dans un souci d'évaluer la vulnérabilité des captages par rapport aux apports saisonniers, notamment par ruissellement et infiltration dans la vallée.

## 7. Bibliographie

- Cardin C., Dufrenoy R. (2009) Nord - Pas de Calais / Nappe de la craie - Campagne et carte piézométrique « hautes et basses eaux » 2009. Rapport BRGM/RP-58542-FR, 50 pp.
- Chang C. C. Y., Langston J., Riggs M., Campbell D. H., Silva S. R., Kendall C. (1999) A method for nitrate collection for  $\delta^{15}\text{N}$  and  $\delta^{18}\text{O}$  analysis for water with low nitrate concentrations. *Canadian Journal of Fisheries and Aquatic Sciences*, **56**, 1856-1864.
- Crastes de Paulet F. (2015) Inventaire des ouvrages souterrains présents dans l'aire d'alimentation des captages d'Airon-St-Vaast (62). Rapport final. Report n° BRGM/RP-64879-FR, 29 pp.
- Darling W. G., Kinniburgh D. G., Goody D. C. Gas compositions and processes in the unsaturated zone of the chalk and triassic sandstone aquifers, England. *Isotope techniques in the study of environmental change : proceedings of an International Symposium on Isotope Techniques in the Study of Past and Current Environmental Changes in the Hydrosphere and the Atmosphere*, Vienna, 14-18 April 1997, **IAEA-SM-349/14**: IAEA, 275-283.
- Delcambre C., Jullien C., Mavel J. (2011) Opération de Reconquête de la Qualité de l'Eau, Diagnostic Territorial Multi Pressions et élaboration du programme d'action. Report n° A62910/A, ANTEA Group, 44 pp.
- Einsiedl F., Mayer B. (2006) Hydrodynamic and microbial processes controlling nitrate in a fissured-porous karst aquifer of the Franconian Alb, Southern Germany. *Environmental Science & Technology*, **40**, 6697-6702.
- Goody D. C., Darling W. G., Abesser C., Lapworth D. J. (2006) Using chlorofluorocarbons (CFCs) and sulphur hexafluoride (SF<sub>6</sub>) to characterise groundwater movement and residence time in a lowland Chalk catchment. *Journal of Hydrology*, **330**, 44-52.
- Kendall C., Elliott E. M., Wankel S. D. (2007) Tracing Anthropogenic Inputs of Nitrogen to Ecosystems. In: *Stable Isotopes in Ecology and Environmental Science 2nd ed.*, K. Lajtha, & R. H. Michener (Eds.): Blackwell Scientific Publications.
- Kloppmann W. (2003) Etude isotopique de la pollution azotée de la nappe d'Alsace entre Sierentz et Ottmarsheim. Report n° RP-52331-FR, BRGM 71 pp.
- Kloppmann W. (2015) Diagnostic isotopique d'une contamination en nitrates, Nuits-Saint-Georges. Report n° RP-65105-FR, BRGM, 19 pp.
- Kloppmann W., Paulet F. C. d., Parmentier M., Gourcy L. (2017) Projet ISOCAIX : Diagnostic isotopique et géochimique de la pollution azotée et datation des eaux des captages CAIX 1, Somme. Report n° Rapport final BRGM/RP-66637-FR, BRGM, Orléans, 59 pp.
- Kloppmann W., Urban S., Gourcy L. (2014) Etude isotopique de la pollution azotée des captages Kabis et St. Louis, Haut-Rhin. Report n° RP-62777-FR, BRGM, 57 pp.
- Komor S. C. (1997) Boron contents and isotopic compositions of hog manure, selected fertilizers, and water in Minnesota. *Journal of Environmental Quality*, **26**, 1212-1222.

- Lacherez S. (1997) Bassin versant d'Airon-St-Vaast. District de Berck-sur-Mer. Examen des conditions d'exploitation du champ captant d'Airon-St-Vaast. Etude de la zone non-saturée et de la nappe de la craie. SOREG Dossier R-97-0307.
- Leenhouts J. M., Bassett R. L., Maddock T. (1998) Utilization of intrinsic boron isotopes as co-migrating tracers for identifying potential nitrate contamination sources. *Ground Water*, **36**, 240-250.
- Louche B. (1996) Limites littorales de la nappe de la craie en Nord – Pas-de-Calais. Relations eaux souterraines – eaux superficielles – mer. Thèse de l'Université Lille1 / Publication de la SGN n°24, 276 p.
- Mariotti A. (1986) La dénitrification dans les eaux souterraines, principes et méthodes de son identification: Une revue. *Journal of Hydrology*, **88**, 1-23.
- Mavel J. (2010) Etude du bassin d'alimentation du champ captant d'Airon-Saint-Vaast - Phase 1 : Etude hydrogéologique. Report n° A 57229/A, ANTEA, 34 pp.
- Mengis M., Walther U., Bernasconi S. M., Wehrli B. (2001) Limitations of Using  $\delta^{18}O$  for the Source Identification of Nitrate in Agricultural Soils. *Environmental Science & Technology*, **35**, 1840-1844.
- Millot R., Petelet-Giraud E., Guerrot C., Negrel P. (2010a) Multi-isotopic composition ( $\delta^{17}O$ - $\delta^{11}B$ - $\delta^{18}O$ ) of rainwaters in France: Origin and spatio-temporal characterization. *Applied Geochemistry*, **25**, 1510-1524.
- Millot R., Petelet-Giraud E., Guerrot C., Négrel P. (2010b) Multi-isotopic composition ( $\delta^{7}Li$ - $\delta^{11}B$ - $\delta^{18}O$ ) of rainwaters in France: Origin and spatio-temporal characterization. *Applied Geochemistry*, **25**, 1510-1524.
- Morris B. L., Darling W. G., Cronin A. A., Rueedi J., Whitehead E. J., Goody D. C. (2006) Assessing the impact of modern recharge on a sandstone aquifer beneath a suburb of Doncaster, UK. *Hydrogeology Journal*, **14**, 979-997.
- Mossadik H. (1997) Les isotopes du bore, traceurs naturels dans les eaux: mise au point de l'analyse en spectrométrie de masse à source solide et application à différents environnements. Unpublished Ph.D. Thesis thesis, Univ. d'Orléans, France, Orléans, France
- Oster H., Sonntag C., Münnich K. O. (1996) Groundwater age dating with chlorofluorocarbons. *Water Resour. Res.*, **32**, 2989-3001.
- Pauwels H., Foucher J. C., Kloppmann W. (2000) Denitrification and mixing in a schist aquifer: influence on water chemistry and isotopes. *Chemical Geology*, **168**, 307-324.
- Picot-Colbeaux G., Surdyk N., Péru H., Devau N., Thiéry D., Parmentier M., Crastes de Paulet F., Touzelet S. (2017) Caractérisation et modélisation des transferts de nitrates sur le bassin versant de Caix (80). Rapport final. Report n° BRGM/RP-66376-FR, BRGM
- Préaux C., Caulier P. (1985) Ville de Berck-sur-mer (62) - champ captant d'Airon-Saint-Vaast - étude des moyens destinés à réduire la teneur en nitrates des eaux souterraines prélevées. Première partie - rapport de synthèse. Report n° BRGM/85-SGN-212-NPC, BRGM, 83 pp.

- Roux *et al.* (2006) *Aquifères & Eaux souterraines en France*. BRGM éditions, 2 tomes.
- Sebilo M., Mayer B., Nicolardot B., Pinay G., Mariotti A. (2013) Long-term fate of nitrate fertilizer in agricultural soils. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, **110**, 18185-18189.
- Silva S. R., Kendall C., Wilkinson D. H., Ziegler A. C., Chang C. C. Y., Avanzino R. J. (2000) A new method for collection of nitrate from fresh water and the analysis of nitrogen and oxygen isotope ratios. *Journal of Hydrology*, **228**, 22-36.
- Vengosh A. (1998) The isotopic composition of anthropogenic boron and its potential impact on the environment. *Biological Trace Element Research*, **66**, 145-151.
- Vengosh A., Barth S., Heumann K. G., Eisenhut S. (1999) Boron isotopic composition of freshwater lakes from central Europe and possible contamination sources. *Acta Hydrochimica Et Hydrobiologica*, **27**, 416-421.
- Widory D., Kloppmann W., Chery L., Bonnin J., Rochdi H., Guinamant J. L. (2004) Nitrate in groundwater: an isotopic multi-tracer approach. *Journal of Contaminant Hydrology*, **72**, 165-188.
- Widory D., Petelet-Giraud E., Brenot A., Bronders J., Tirez K., Boeckx P. (2013) Improving the management of nitrate pollution in water by the use of isotope monitoring: the delta N-15, delta O-18 and delta B-11 triptych. *Isotopes in Environmental and Health Studies*, **49**, 29-47.
- Widory D., Petelet-Giraud E., Negrel P., Ladouche B. (2005) Tracking the sources of nitrate in groundwater using coupled nitrogen and boron isotopes: A synthesis. *Environmental Science & Technology*, **39**, 539-548.



**Centre scientifique et technique**  
3, avenue Claude-Guillemin  
BP 36009  
45060 – Orléans Cedex 2 – France  
Tél. : 02 38 64 34 34 - [www.brgm.fr](http://www.brgm.fr)

**BRGM Hauts-de-France**  
Arteparc bâtiment A  
2 Rue des Peupliers  
59810 Lesquin - France  
Tél. : 03 20 19 15 40