

Document public



Présence de sélénium dans les eaux souterraines des champs captants de LMCU et Noréade du sud de Lille

Note de synthèse à l'intention des gestionnaires

BRGM/RP-63289-FR

Janvier 2014

L. Cary, M. Parmentier



Géosciences pour une Terre durable

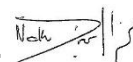
brgm

Étude réalisée dans le cadre des opérations de Recherche du BRGM

Ce document a été vérifié par : F. Garrido (RU D3E/BGE) date : 14/02/2014

Approbateur :

Nom : Dörfliger N. Fonction : Directrice D3E Date : 24/02/2014 Signature :



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 : sélénium, eaux souterraines, hydrogéochimie, craie, champs captants Lille Sud, Lille, Les Ansereuilles, Emmerin, Wavrin, Salomé

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

Cary L., Parmentier M. (2014) – Présence de sélénium dans les eaux souterraines des champs captants de LMCU et Noréade du sud de Lille. Note de synthèse à l'intention des gestionnaires. Rapport BRGM/RP-63289-FR, 28 p., 9 fig.

© BRGM, 2014, ce document ne peut être reproduit en totalité ou en partie sans l'autorisation expresse du BRGM.

Synthèse

Cette note de synthèse à l'intention des élus et des gestionnaires est un résumé du rapport final du projet Thermosel (Cary and Parmentier, 2013).

Dans les champs captants du sud de Lille, le sélénium est présent dans les eaux souterraines à des concentrations pouvant dépasser la norme de potabilité française (10 µg/L). Lille Métropole Communauté urbaine (LMCU), Noréade, l'Agence de l'eau Artois-Picardie, l'Université de Lille et le BRGM ont financé un projet de recherche et développement intitulé Thermosel, d'une durée de 36 mois, initié en décembre 2010 dont les objectifs étaient de (1) définir avec précision la ou les origines du sélénium dans les captages, (2) mettre en évidence les processus et mécanismes à l'origine de ces fortes teneurs, (3) proposer des modes de gestion des captages AEP afin de minimiser les problèmes liés aux fortes concentrations en sélénium dans les eaux souterraines. Ce projet inclut une thèse de doctorat à l'Université de Lille 1 menée par Hind Benabderraziq, en collaboration avec le BRGM.

Le résultat majeur du projet est la mise en évidence de l'origine naturelle du sélénium dans les champs captants du sud de Lille.

Une campagne de prélèvement des eaux durant l'année 2011 dans les quatre champs captants (Emmerin, Houplin-Ancoisne, Les Ansereuilles et Salomé) a permis de mettre en évidence une variabilité spatiale des teneurs en sélénium dans les eaux souterraines et d'acquérir les données nécessaires à l'analyse de l'origine du Se. Un suivi mensuel de la qualité de l'eau dans quatre forages a ensuite été réalisé durant l'année 2012 et le début de l'année 2013 afin d'étudier la variabilité temporelle des teneurs en sélénium. Les eaux de la partie nord-est des Ansereuilles montrent parmi les teneurs en sélénium les plus importantes (25-30 µg/L).

Parallèlement, une étude de la composition chimique des roches a été menée à l'échelle régionale par prélèvement d'échantillons de formations géologiques, essentiellement dans la carrière de Templeuve, mais aussi à l'échelle très locale par la réalisation de sondages carottés au droit des quatre forages sélectionnés pour le suivi de la chimie des eaux souterraines.

Les données du projet montrent que le sélénium présent dans les eaux souterraines exploitées est essentiellement d'origine naturelle.

Le sélénium ne se trouve pas dans la craie mais a été décelé en revanche dans les formations géologiques régionales proches des champs captants. De surcroît, très localisés dans la partie nord-est des Ansereuilles, des dépôts argileux situés entre 5 et 15 m de profondeur ont montré des teneurs en sélénium non négligeables. Déposées sur la formation de la craie, ces argiles sont probablement datées du Tertiaire. La formation yprésienne, enrichie en sélénium, se trouve au sud et à l'est du bassin parisien, et pourrait être également à l'origine de teneurs importantes de sélénium dans les eaux souterraines. Les forages montrant des teneurs plus faibles en sélénium traversent des formations superficielles quaternaires relativement riches en sélénium, comme à Salomé ou à Emmerin.

Bien que l'élément sélénium soit délicat à analyser et qu'une variation de 3 µg/L pour une concentration moyenne dans les eaux souterraines de 8 µg/L ne soit pas significative, il existe des variations saisonnières importantes des teneurs en sélénium dans les forages étudiés, avec parfois des variations du simple au double entre les hautes eaux et les basses eaux (exemple des Ansereuilles). Les résultats mettent en évidence que la composition des eaux souterraines varie de façon rapide et dynamique sous l'influence des contraintes naturelles

(recharge de la nappe) et d'exploitation (arrêt-marche des forages, interconnexions des forages, etc.)

L'exploitation entraîne une variation du niveau dynamique de la nappe de la craie qui génère une alternance de phases de dénoyage et d'ennoyage des formations sus-jacentes à la Craie. Pendant l'ennoyage en haut niveau piézométrique, l'oxydation, par l'oxygène ou les nitrates présents dans la nappe ou transférés à travers le sol, des phases solides contenant du sélénium immobile entraîne sa solubilisation. Dans un contexte plus régional, les eaux s'infiltrant à travers le sol et les formations tertiaires et quaternaires qui contiennent des teneurs en sélénium localement plus importantes pourraient contribuer au stock de sélénium dans les eaux souterraines après leur infiltration.

L'étude de la chimie des eaux souterraines a permis également de montrer les différents mélanges de trois types d'eau qui sont réalisés en raison des pompages :

- un pôle représentant les eaux de nappe provenant de la zone de recharge en amont située à Emmerin et Houplin-Ancoisne, contaminée en nitrates ;
- un pôle provenant de la nappe de la craie en conditions captives sous couverture tertiaire ;
- et un pôle d'eaux riches en sélénium provenant d'un forage traversant les dépôts argileux.

Pendant la durée de l'étude, les eaux de surface de la Deûle et de ses affluents n'ont pas montré de teneurs importantes en sélénium (inférieures à 4,7 µg/L).

Les résultats du projet Thermosel mettent en évidence une très forte réactivité du système aux variations piézométriques engendrées par les pompages. Ceci implique une gestion fine de l'exploitation, forage par forage, avec une surveillance des niveaux statiques et dynamiques. En contrôlant les débits et les périodes de pompage, la zone de battement de la nappe pourrait être cantonnée dans la formation de la craie et ainsi ne plus atteindre les argiles riches en sélénium. Les puits les plus riches en sélénium étant bien identifiés, il s'agirait également d'éviter au maximum les mélanges entre les puits contaminés et les autres en essayant de réguler les débits de pompage. Si l'abandon des forages les plus riches en sélénium, qui a déjà été fait pour le forage H11 à Houplin-Ancoisne ou le forage A13 Aux Ansereuilles par exemple, n'est pas envisageable, une stratégie serait de localiser précisément de nouveaux forages en dehors de l'extension spatiale des dépôts argileux. En l'état actuel de nos connaissances, une origine anthropique du sélénium dans les eaux souterraines du site étudié n'est pas à exclure, mais elle serait probablement mineure.

Sommaire

1. Introduction	7
2. Connaissances sur la chimie du sélénium	9
2.1. ESPECES DU SELENIUM DANS LES EAUX ET LES ROCHES.....	9
2.2. OCCURRENCES DU SELENIUM DANS LES SYSTEMES NATURELS	9
2.3. PRESENCE DE SELENIUM DANS LE BASSIN PARISIEN.....	10
2.4. METHODOLOGIE DU PROJET.....	11
3. Cadre géologique et hydrogéologique régional et local	12
3.1. CONTEXTE GEOLOGIQUE DE L'ETUDE.....	12
3.2. COUPE GEOLOGIQUE DE SYNTHESE	14
4. Etude géochimique des roches et des eaux	15
4.1. ANALYSE CHIMIQUE DES ROCHES REGIONALES ET A PROXIMITE DES FORAGES	15
4.1.1. Prélèvements de matériaux rocheux en carrière et au droit de forages.....	15
4.1.2. Résultats.....	15
4.2. CHIMIE DES EAUX SOUTERRAINES DANS LES CHAMPS CAPTANTS DU SUD DE LILLE	16
4.3. MELANGES MAJEURS D'EAUX SOUTERRAINES SUR LE SITE D'ETUDE.....	18
4.4. DATATION DES EAUX PAR LES CFC ET LES SF6	19
4.5. RELATIONS ENTRE LE CONTEXTE GEOLOGIQUE, LES PROCESSUS HYDROGEOCHIMIQUES ET LE SELENIUM	20
4.6. SYNTHESE DES RELATIONS ENTRE LES FORMATIONS CAPTEES ET LE NIVEAU DYNAMIQUE DANS LES FORAGES	21
5. Propositions de gestion de l'AEP pour minimiser les teneurs en sélénium dans les eaux souterraines	23
5.1. CONTROLE DE LA PIEZOMETRIE.....	23
5.2. LOCALISATION DES FORAGES	24
6. Conclusions	25
6.1. PERSPECTIVES	26
7. Bibliographie	28

Liste des figures

- Figure 1 : Concentrations maximales (données en µg/L) en sélénium dans les points d'eau souterraine du Sud et de l'Est du bassin parisien supérieures à une limite de quantification (données extraites d'ADES) sur la période 1990-2013 pour les eaux de tous les réseaux de surveillance sauf celui des installations classées..... 8
- Figure 2 : Résumé des formations tertiaires de la bordure est du bassin de Paris (en rouge les formations riches en matière organique, argiles, pyrite, en violet les formations moins concentrées), d'après Gourcy et al. (2011). 11
- Figure 3 : Carte géologique du site d'étude (1/50 000) au sud de Lille, positionnement des champs captants et des forages d'intérêt..... 13
- Figure 4 : Coupe géologique de synthèse basée sur les logs des forages dans la BSS (Cary et al., in prep). La coupe AB est située sur la carte géologique de la Figure 3. Les argiles présentes au droit des forages A11 à A15 (indiquées par un ?) sont datées du Quaternaire dans la base de données du sous-sol (www.infoterre.fr) mais sont plus vraisemblablement des argiles plus anciennes du Tertiaire protégées de l'érosion par le jeu des deux failles qui l'entourent, dont la faille de Seclin. La partie supérieure de ces argiles est très probablement quaternaire. 14
- Figure 5 : Données issues des campagnes spatiales et de suivi de la qualité de l'eau montrant a) les teneurs en sélénium vs teneurs en chlorures et b) les teneurs en nitrates vs les teneurs en chlorures dans les eaux souterraines du site d'étude et dans la Deûle. 17
- Figure 6 : Rapports Ca/Sr en fonction de Mg/Sr (mol/mol) dans les eaux souterraines et les solides échantillonnés sur le site d'étude. Les erreurs sont dans les points. Source (Cary et al., in prep). Le diagramme met en évidence les trois grands pôles de mélange des eaux, à l'échelle régionale : le pôle craie, le pôle tertiaire – quaternaire silicaté et le pôle des eaux captives du type du forage A26. 19
- Figure 7 : Evolution dans le temps des teneurs en sélénium dans les eaux du A13 et relation avec le niveau piézométrique de la nappe de la craie et la géologie (données des exploitants et du projet). 20
- Figure 8 : Evolution des teneurs en sélénium, nitrates et du pourcentage d'eau jeune en fonction du temps pendant la période d'étude 2012-2013. 21
- Figure 9 : Schémas conceptuels figurant les hautes eaux et les basses eaux et expliquant la mobilisation du sélénium dans les deux grands cas de figure rencontrés sur le site des champs captants du sud de Lille. Le premier cas représente les conditions du forage A13, où les dépôts argileux sus-jacents à la craie sont alternativement ennoyés et dennoyés. Le second cas représente ce qui pourrait se passer à Salomé ou à Emmerin, où le sélénium est présent de manière diffuse dans les formations superficielles traversées par l'eau de pluie enrichie en nitrates lors de son infiltration. 22

1. Introduction

Dans les champs captants du sud de Lille, le sélénium est présent dans les eaux souterraines à des concentrations pouvant dépasser la norme de potabilité française (10 µg/L). Ce cas n'est pas isolé puisque, depuis une vingtaine d'années, le Conseil Supérieur d'Hygiène Publique de France a été saisi par les ARS (Agences Régionales de Santé) de plusieurs cas de contamination de captages publics par le sélénium. Diverses régions montrent un excédent de sélénium dans les eaux souterraines par rapport aux normes actuelles de potabilité (10 µg/L, Figure 1). Le dépassement des normes de potabilité nécessite alors une demande de dérogation ; un dépassement fréquent conduit à l'arrêt de l'utilisation des forages concernés.

En France, de fortes concentrations en sélénium se retrouvent de manière généralisée sur une vingtaine de départements (Brenot et al., 2007), dont le département du Nord. Les causes possibles de la présence de sélénium sont multiples, et compte-tenu de l'emploi de cet élément dans l'industrie et en agriculture, plusieurs éventualités peuvent être envisagées : une source hospitalière, une origine industrielle, une conséquence de l'épandage de boues de stations d'épuration, une origine agricole par l'utilisation d'engrais sélénisés ou une origine naturelle.

Ainsi, Lille Métropole Communauté urbaine (LMCU), Noréade, l'Agence de l'eau Artois-Picardie, l'Université de Lille et le BRGM ont initié un projet de recherche avec les objectifs suivants :

- définir avec précision la ou les origines du sélénium dans les captages,
- mettre en évidence les processus et mécanismes à l'origine de ces fortes teneurs,
- proposer des modes de gestion des captages AEP afin de minimiser les problèmes liés aux fortes concentrations en sélénium dans les eaux souterraines.

Dans les eaux des aquifères du bassin de Paris, des études préliminaires ont été réalisées pour tenter de déterminer l'origine des fortes concentrations observées (Chabart et al., 2006; Damien, 2006; Gourcy, 2011; Robaux, 2004; Vernoux et al., 1998). Ces études indiquent que le sélénium mesuré dans les eaux souterraines est majoritairement d'origine naturelle.

Les sites touchés par de fortes et croissantes teneurs en sélénium dans les eaux souterraines sont l'Essonne, la Seine-et-Marne, et plus récemment le Loiret, l'Eure-et-Loir et la Marne. Les exploitants des champs captants du sud de Lille enregistrent de façon similaire une accentuation des teneurs en sélénium dans les eaux souterraines ; certains forages procurent une eau dont les teneurs en sélénium dépassent de façon permanente la norme de 10 µg/L. Ceci pose un problème de gestion de la ressource en eau, du fait des actions à mettre en place par les exploitants lorsque les normes de potabilité sont dépassées et vis-à-vis de la directive cadre sur l'eau qui requiert un bon état des masses d'eau en 2015 (ou l'obligation de non détérioration de la ressource) se basant sur la détermination de valeurs seuils pour les éléments toxiques et indésirables (comme le sélénium).

Le projet de recherche a pour objectifs :

- de distinguer le fond géochimique naturel (niveaux riches en matières organiques) et les apports liés aux activités anthropiques (activité minière, dépôts industriels, engrais...) dans les forages du Nord-Pas de Calais ;
- de mettre en évidence les formations géologiques et les minéraux riches en sélénium responsables des concentrations élevées dans les eaux souterraines en lien plus particulièrement avec la matière organique des formations géologiques locales ;
- de progresser dans la compréhension des conditions de déséquilibre thermodynamique conduisant aux fortes teneurs observées en sélénium ;

- de comprendre les variations de concentration en sélénium dans les eaux en cernant les parties réactives des aquifères riches en sélénium ;
- d'intégrer les informations obtenues afin de proposer des modes de gestion des captages pour l'alimentation en eau potable (AEP) afin de minimiser les problèmes liés aux fortes concentrations en sélénium dans les eaux.

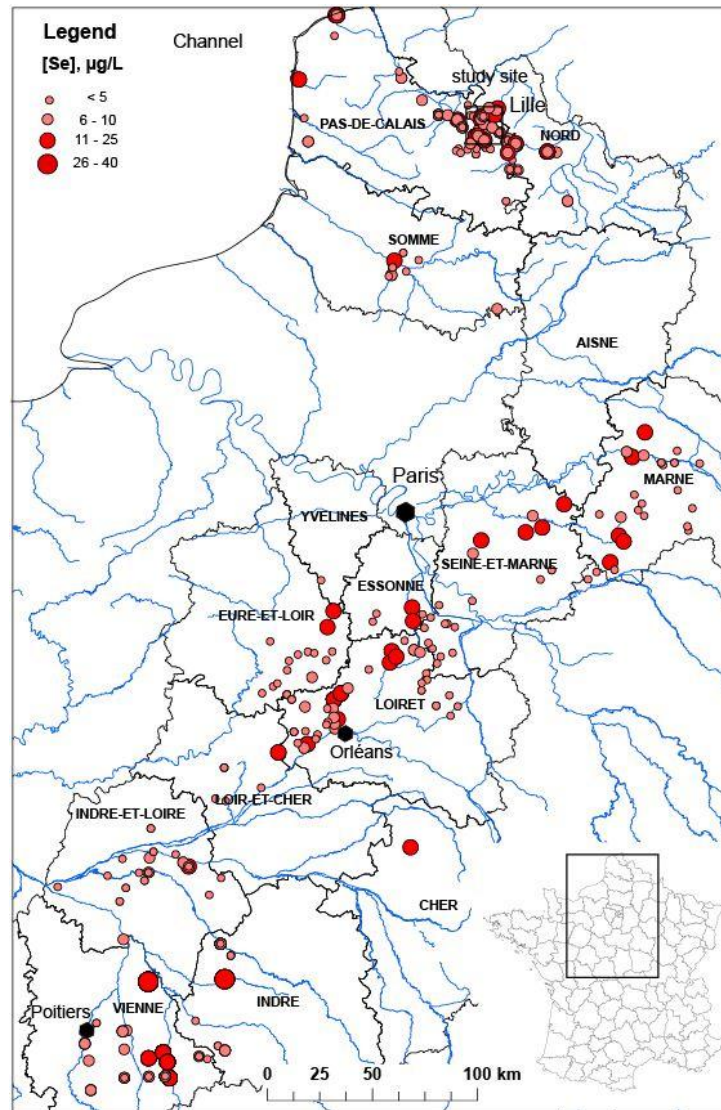


Figure 1 : Concentrations maximales (données en $\mu\text{g/L}$) en sélénium dans les points d'eau souterraine du Sud et de l'Est du bassin parisien supérieures à une limite de quantification (données extraites d'ADES) sur la période 1990-2013 pour les eaux de tous les réseaux de surveillance sauf celui des installations classées.

2. Connaissances sur la chimie du sélénium

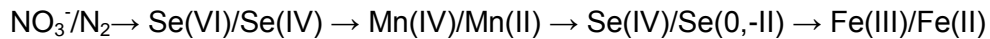
2.1. ESPECES DU SELENIUM DANS LES EAUX ET LES ROCHES

Le sélénium peut exister dans l'environnement sous quatre états d'oxydations différents : séléniate Se(VI), sélénite Se(IV), sélénium élémentaire Se(0) et séléniure Se(-II).

La forme dominante sous condition oxydante est le séléniate (SeO_4^{2-}) qui est une forme similaire aux sulfates (SO_4^{2-}). Lorsque les conditions deviennent plus réductrices, les sélérites apparaissent en solution. Pour ces deux formes, le sélénium est soluble en solution.

Le sélénium élémentaire (Se^0) est insoluble et domine dans des conditions très réductrices. Les séléniures peuvent exister sous diverses formes organiques solubles, précipités de séléniures métalliques insolubles (FeSe, PbSe, CuSe) ainsi que sous formes de composés volatils.

La solubilité et la mobilité du sélénium dans les eaux naturelles sont donc contraintes par la spéciation du sélénium déterminée par le potentiel d'oxydoréduction du milieu considéré et le pH. A partir des études réalisées, la séquence de réduction suivante est proposée lors d'une transition oxic/anoxique d'un sol ou d'un sédiment (Darcheville et al., 2008) :



Cette succession permet de définir les associations possibles dans les eaux. Par exemple, la présence de nitrates dans les eaux pourra être associée à la présence de séléniates, tandis que la présence de manganèse en solution sous forme soluble *i.e.* Mn(II) sera associée à la présence de sélénite. La présence de fer en solution sous forme soluble (Fe^{2+}) sera indicateur de la présence potentielle du sélénium à l'état réduit Se(0,-II) *i.e.* insoluble.

Les études ont également mis en évidence que, d'un point de vue cinétique, les réactions d'oxydation sont plus lentes que celles de la réduction, et que les microorganismes catalysent l'ensemble des réactions mises en jeu et notamment lors de la réduction de Se(VI) et Se(IV) (Séby et al., 2001). La transformation du sélénium dans la nature est ainsi majoritairement d'origine microbiologique.

La présence de nitrate (NO_3^-) dans les eaux, dans les sols et les sédiments, retarde la réduction des séléniates (Neal, 1995). Dans l'environnement, la réduction du séléniate ou du sélénite peut aussi entrer en compétition avec celles des nitrates, des sulfates, du fer et de la méthanogénèse (Bailey et al., 2012; Gates et al., 2009; Lenz and Lens, 2009). Les nitrates lessivés et arrivant à la nappe entraînent la dissolution du sélénium, par oxydation, des formations géologiques et du sol (Bailey et al., 2012).

Le changement d'état redox entraîne ainsi l'immobilisation du sélénium en conditions réductrices et le relargage du Se en conditions oxydées.

2.2. OCCURRENCES DU SELENIUM DANS LES SYSTEMES NATURELS

Dans les roches, le sélénium peut être incorporé aux sulfures de fer (chalcopyrite et pyrite) dans des conditions réductrices. Le sélénium peut également être rencontré sous forme élémentaire (native). Il a également une forte affinité avec la matière organique (sous forme solide et aqueuse). Dans les charbons et les horizons riches en matière organique les concentrations en sélénium sont comprises entre 1 et 20 mg/kg (Plant et al. 2005). On rencontre également du

sélénium dans les formations argileuses. Dans les sols et les sédiments, la présence de sélénium est fortement corrélée à la présence de sélénium dans les roches mères.

Dans les sols, le sélénium peut être présent jusqu'à 50% sous forme organique. Sa biodisponibilité y est contrôlée par des facteurs incluant le pH et les conditions d'oxydo-réduction, la spéciation, la texture du sol, la minéralogie du sol, la teneur en matière organique et la présence d'ions compétiteurs. Malgré des concentrations parfois élevées dans les sols (> 1 mg/kg), la quantité de sélénium soluble est généralement basse (< 0,1 mg/kg). En France, des sols du Nord peuvent montrer des teneurs en sélénium de l'ordre de 0,1 à 1,4 mg/kg (Darcheville et al., 2008). Le sélénium peut être ajouté dans les sols via les engrais enrichis en sélénium, mais aussi en traces dans les fertilisants phosphatés et des fongicides, ainsi que dans les boues de stations d'épuration (environ 1 mg/kg de sélénium) ou dans le fumier épandus (Plant et al., 2005). La teneur de sélénium appliquée par les engrais varie en fonction de la situation géographique et est maximale dans le bassin parisien et en Bretagne ainsi que dans la région Artois-Picardie (ADEME, 2007).

Les activités industrielles comme la combustion de charbon, le raffinage du cuivre et la fabrication des semi-conducteurs contribuent également à l'augmentation en sélénium dans l'environnement (Darcheville, 2008).

La concentration en sélénium dans les eaux naturelles est très basse, souvent inférieure à 1 µg/L. Ainsi le sélénium pose rarement un problème de santé publique. Cependant dans des régions séléniées, des concentrations atteignant 275 µg/L en Chine, 1 000 µg/L dans le Montana et jusqu'à 2000 µg/L dans certains lacs américains ont pu être observées (Plant et al., 2005).

2.3. PRESENCE DE SELENIUM DANS LE BASSIN PARISIEN

Les études antérieures indiquent que, sur le bassin de Paris, le sélénium est majoritairement d'origine naturelle. Les formations qui seraient les plus riches en phases porteuses de sélénium sont également les plus riches en matière organique, en argiles ou en pyrite. Le sélénium se retrouve principalement dans les sables et marnes du Thanétien, les argiles de l'Yprésien, les sables du Cuisien, les marnes du Lutétien, les marnes infra et supra-gypseuses du Ludien et dans les sables de Fontainebleau. Ces formations sont indiquées en rouge sur la Figure 2 qui résume les formations lithologiques du Crétacé supérieur (craie) à l'Oligocène (calcaire de Beauce) présentes dans le bassin de Paris et concernées par le problème des teneurs en sélénium supérieures à la limite de potabilité de 10 µg/L.

		séries	Etages		
Tertiaire	oligocène		Chattien/ Aquitanien	calcaire de Beauce, molasse cal. d'Etampes	
			Stampien	sables de Fontainebleau marnes à huitre calcaire de Brie Marnes vertes	
	éocène		Ludien	marnes supragypseuses calcaire de Champigny marnes infragypseuses	calcaire de Champigny sens large
			Marinesien	calcaire de St Ouen	
			Auversien	sables de Beauchamp sables d'Auvers	
			Lutétien	marnes , caillasse calcaire grossier	
			Cuisien	argile de Laon sables de Cuise	
	paléocène		Sparnacien	argiles plastiques, lignite	Yprésien
			Thanétien	sables, marnes	
	crét.	séno-turonien cénomanién		craie	

Figure 2 : Résumé des formations tertiaires de la bordure est du bassin de Paris (en rouge les formations riches en matière organique, argiles, pyrite, en violet les formations moins concentrées), d'après Gourcy et al. (2011).

2.4. METHODOLOGIE DU PROJET

Pour atteindre son objectif, le projet s'est attaché à étudier les processus physiques et géochimiques qui permettent la mobilisation du sélénium en utilisant des méthodes qui permettront :

- la connaissance des associations minérales et organiques avec le sélénium par analyses minéralogiques et chimiques sur les phases minérales constitutives de la roche ;
- la connaissance des conditions physiques et chimiques du milieu, des interactions entre différentes masses d'eau afin de comprendre les facteurs qui expliquent en partie les variations de concentrations en sélénium dans les eaux. Deux campagnes (hautes eaux et basses eaux) de prélèvements et d'analyses chimiques, isotopiques et de gaz dissous permettront d'enrichir la banque de données utile à l'établissement de corrélation entre paramètres influençant la solubilité et la mobilité du Se dans les eaux ;
- la maîtrise de la présence des formes oxydées (sélénite et séléniate) dans les eaux et de la variabilité temporelle de la concentration en sélénium. Une fois en solution, la mobilité du sélénium dépend principalement des états d'oxydation et des formes sous lesquels il se trouve. Une analyse des formes principales du sélénium dans les eaux souterraines au cours d'un cycle hydrologique, des autres éléments chimiques et isotopiques, des paramètres hydrodynamiques permettra de comprendre les processus responsables de la variabilité de cet élément dans les eaux souterraines et de surface.

3. Cadre géologique et hydrogéologique régional et local

3.1. CONTEXTE GEOLOGIQUE DE L'ETUDE

Les formations présentes sur le site d'étude se succèdent depuis la craie crétacée jusqu'aux loess quaternaires.

Selon la notice de la carte géologique (1969) et les différents rapports de modélisation de la craie (Caous, 2003; Picot, 2010), la description des formations est la suivante, des plus anciennes aux plus jeunes :

Crétacé

La transgression marine crétacée débute au Cénomaniens et au Turonien inférieur en direction de l'Est sur le secteur d'étude. La série crétacée est représentée par le Sénonien et le Turonien supérieur et moyen.

L'ensemble de la formation de la craie repose sur les Dièves, nom local des marnes argileuses et plastiques gris-verdâtre du Turonien inférieur et des marnes bleu-grises du Turonien moyen. La craie est blanche et fine avec des passées de craie grise ou de craie blanche à silex, de craie phosphatée et de craie grise assez dure avec des nodules de phosphate de chaux pouvant évoluer vers une craie grise.

Tertiaire Paléogène

Les formations tertiaires sont constituées des dépôts argileux des Argiles des Flandres, de l'Yprésien, des sables d'Ostricourt et de l'Argile de Louvil du Landénien.

Thanétien ou localement **Landénien**. La série comprend deux faciès principaux : à la base, l'élément argileux est dominant (Argile de Louvil) tandis que la partie supérieure (Sables d'Ostricourt) est constituée de sables verts.

Yprésien ou localement **Sparnacien**. Les **Argiles d'Orchies** (nom local des Argiles des Flandres) de 10 à 15 m d'épaisseur sont des argiles plastiques noires avec petits lits sableux vers la base, parfois bleues avec des cristaux de gypse. Au sommet, on note la présence de niveaux indurés.

Quaternaire

Dans la région du sud de Lille, le Quaternaire a fait l'objet de nombreuses études par l'INRAP (Institut National de recherches Archéologiques Préventives) en raison d'une conservation excellente des profils.

Limons. Les limons recouvrent pratiquement l'ensemble des formations tertiaires et secondaires, masquant le plus souvent ces dernières à l'observation directe. Leur épaisseur est variable.

Formation recouvrant l'Yprésien. Cette formation sableuse a été distinguée des limons classiques qui la surmontent sous une faible épaisseur. Elle constitue un ensemble

lithologiquement bien défini disposé régulièrement sur l'Argile d'Orchies. Ce sont des sables fins, verts, glauconieux avec, à la base, un niveau de galets éclatés.

Alluvions récentes. Selon la notice de la carte géologique de Carvin au 1/50 000 (1969), ces alluvions sont constituées d'argiles grises ou jaunâtres, de sables et de sables argileux dans lesquels s'intercalent des passées de tourbe et des lits de graviers. L'épaisseur des alluvions est variable.

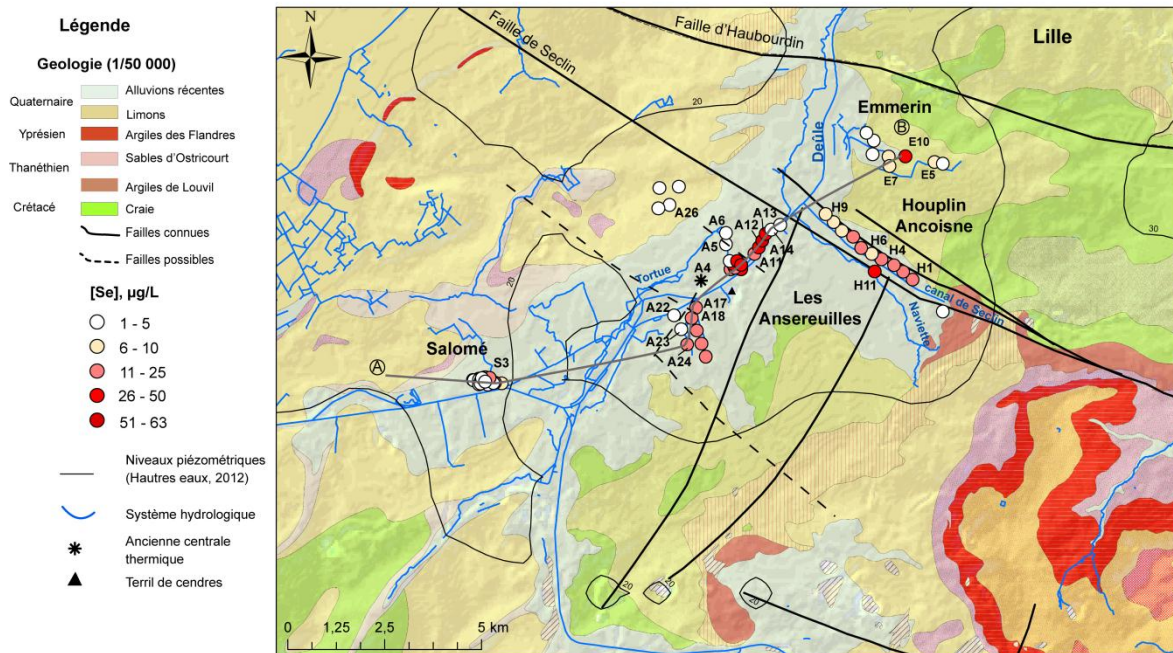


Figure 3 : Carte géologique du site d'étude (1/50 000) au sud de Lille, positionnement des champs captants et des forages d'intérêt.

3.2. COUPE GEOLOGIQUE DE SYNTHESE

A l'aide des données disponibles dans la Banque de données du sous-sol, une coupe géologique synthétique a été réalisée. Cette coupe permet de montrer (Figure 4) :

- l'importance de la faille de Seclin et la réduction importante d'épaisseur de la craie à Houplin-Ancoisne ;
- les dépôts argileux au droit des forages A10, A11, A12, A13, A14 et A15, provenant probablement des formations tertiaires, protégées de l'érosion par le jeu des failles à proximité, puis érodées à leur sommet par la Deûle ayant déposé ses alluvions au Quaternaire.

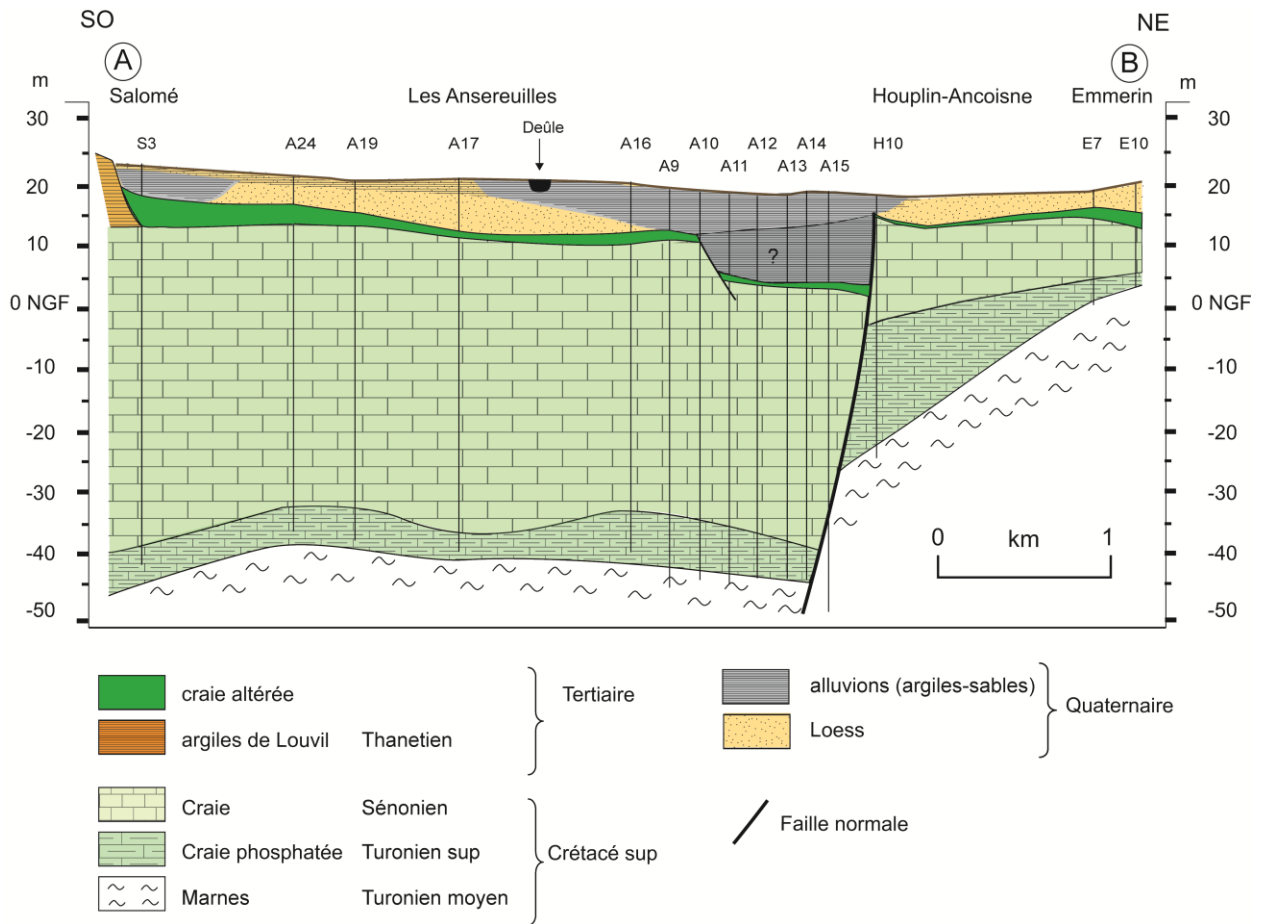


Figure 4 : Coupe géologique de synthèse basée sur les logs des forages dans la BSS (Cary et al., in prep). La coupe AB est située sur la carte géologique de la Figure 3. Les argiles présentes au droit des forages A11 à A15 (indiquées par un ?) sont datées du Quaternaire dans la base de données du sous-sol (www.infoterre.fr) mais sont plus vraisemblablement des argiles plus anciennes du Tertiaire protégées de l'érosion par le jeu des deux failles qui l'entourent, dont la faille de Seclin. La partie supérieure de ces argiles est très probablement quaternaire.

4. Etude géochimique des roches et des eaux

L'objet de cette partie est de connaître la composition des formations géologiques, à l'échelle régionale et locale, en particulier leurs teneurs en sélénium.

4.1. ANALYSE CHIMIQUE DES ROCHES REGIONALES ET A PROXIMITE DES FORAGES

4.1.1. Prélèvements de matériaux rocheux en carrière et au droit de forages

L'objet de ces prélèvements est de caractériser chimiquement les formations secondaires (craie séno-turonienne), tertiaires et les limons quaternaires et en particulier de connaître leurs concentrations en sélénium.

Des échantillons de solides ont été prélevés dans deux contextes différents :

- dans les carrières d'Emmerin et de Templeuve ;
- lors des sondages réalisés à proximités des forages.

Dans la carrière de Templeuve, on observe, de haut en bas, les formations suivantes :

- Limons (Quaternaire),
- Argiles d'Orchies (Tertiaire, Yprésien, Eocène inférieur),
- Sables d'Ostricourt (Tertiaire, Landénien local ou Thanétien, Paléocène supérieur).

La carrière de Templeuve a permis de prélever la craie blanche et la craie grise à silex.

Plus localement, à proximité des forages H4 et H11 d'Houplin-Ancoisne, du A13 des Ansereuilles et du S3 de Salomé, des sondages ont été réalisés pour caractériser les dépôts sus-jacents à la craie et mieux comprendre leur variabilité.

Pour chaque échantillon de roche ou cuttings de forage, une analyse chimique complète a été réalisée. L'analyse chimique de roches est effectuée après attaque à l'acide du matériel solide. Les éléments majeurs, mineurs et traces ont été analysés.

4.1.2. Résultats

Le sélénium est présent dans les formations tertiaires et quaternaires de la carrière de Templeuve, depuis les niveaux intermédiaire et supérieur des sables d'Ostricourt du Landénien (respectivement 1,37 et 3,57 mg/kg), dans les argiles yprésiennes (4,87 mg/kg) et dans les limons quaternaires (4,1 mg/kg). En revanche, les teneurs en Se dans la craie de la carrière d'Emmerin sont inférieures à la limite de quantification. Ces valeurs sont comparables à celles que l'on peut trouver dans des formations du bassin parisien. Par exemple, les échantillons des marnes infra-ludiennes d'Itteville (Seine-et-Marne) et des marnes vertes et bleues et argiles vertes de la Forêt-Sainte-Croix (Essonnes) présentent des concentrations en sélénium respectivement de 2,3 mg/kg, 1,5 mg/kg et 1,4 mg/kg (Gourcy, 2011). Le calcaire de Champigny, par exemple, comme la craie de Templeuve, montre une concentration en sélénium inférieure à 1 mg/kg.

A l'échelle locale des champs captants, la partie basale des dépôts argileux présents au droit du profil du forage A13 (13 m d'épaisseur), reposant sur les marnettes, montre, entre 11,8 et 13,3 m de profondeur, plus de 4,5 mg/kg de sélénium. Le sélénium se répartit à parts égales dans chacune des fractions suivantes : soluble-échangeable, lié aux matières organiques, sous forme de sélénium élémentaire et lié aux carbonates (en l'absence de mesure du sélénium résiduel).

Les formations au droit du forage H4 contiennent également du sélénium (maximum de 1,2 mg/kg) adsorbé sur les matières organiques ou sur les carbonates, et sous forme élémentaire. Peu de sélénium a été mesuré dans le solide au droit des puits H11 et S3 (entre 0,4 et 0,5 mg/kg de Se extrait).

Les marnettes, faciès d'érosion de la craie, ne semblent pas montrer d'accumulation préférentielle d'éléments en comparaison avec les teneurs des dépôts sus-jacents, hormis pour le profil H11.

4.2. CHIMIE DES EAUX SOUTERRAINES DANS LES CHAMPS CAPTANTS DU SUD DE LILLE

Afin de mieux comprendre les variations spatio-temporelles de teneurs en sélénium dans les eaux souterraines, une première campagne spatiale a permis de décrire les eaux souterraines du site d'étude. Ensuite, les eaux de quatre forages sélectionnés pompant la nappe de la craie ont fait l'objet d'un suivi mensuel des paramètres chimiques et physico-chimiques. Le programme analytique inclut les éléments majeurs et traces dissous, le COT, Se(IV) et Se(VI), les isotopes stables de la molécule d'eau et la datation par analyse des CFC et SF6.

Le pH des eaux souterraines est compris entre 6,7 (A4, juin 2011) et 7,4 (H4 bis, juillet 2012). Les pH mesurés sont des valeurs classiques pour des aquifères de type sédimentaire à dominante carbonatée. Les eaux de rivières présentent normalement un pH plus élevé compris entre 7,6 (Tortue en décembre 2012) et 8,4 (Deûle en avril 2012).

Les valeurs du potentiel redox (données en mV NHE) permettent d'estimer les conditions d'oxydo-réduction aux points de mesure. Le système est très oxydant ($E_h > 400$ mV) pour les eaux souterraines des forages S8, H6, H9, A3, S11, E10, E5 et toutes les eaux de surface. Les conditions sont moins oxydantes ($100 < E_h < 400$ mV) pour tous les autres points d'eau souterraine, les eaux du forage A26 étant relativement les plus réductives ($E_h = 177$ mV).

Il est usuel de comparer les teneurs en éléments à celles des chlorures utilisés comme élément de référence. En l'absence de dépôts évaporitiques dans les niveaux lithologiques drainés, les eaux souterraines et les eaux de surface intègrent uniquement des chlorures provenant de l'eau de pluie qui les alimente. Les teneurs en chlorures sont, comme attendu, très faibles dans les eaux souterraines étudiées.

Pour tous les points de prélèvement, les éléments Ca, Mg, K et SO_4 sont enrichis par rapport à la droite théorique de dilution de l'eau de mer. Le calcium et le magnésium sont abondants dans les formations géologiques du bassin parisien puisqu'ils constituent la majeure partie des éléments mesurés dans la craie. Le magnésium, le sodium et le strontium sont particulièrement plus concentrés dans les eaux circulant dans la craie en conditions captives (A25-A26-A27-A28). Ces teneurs attendues résultent d'un processus d'altération chimique dont l'origine est l'interaction entre les minéraux constituant la roche et l'eau souterraine qui circule dans les

fissures et micropores de la roche, favorisée par un temps plus long dans le cas d'un aquifère captif.

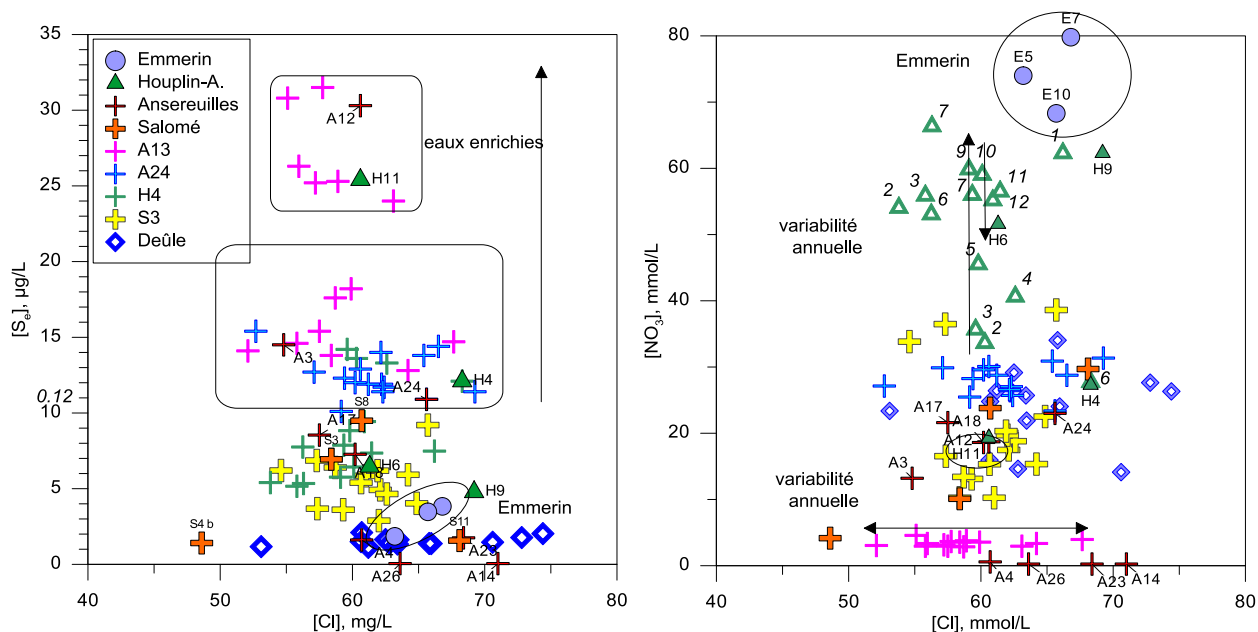


Figure 5 : Données issues des campagnes spatiales et de suivi de la qualité de l'eau montrant a) les teneurs en sélénium vs teneurs en chlorures et b) les teneurs en nitrates vs les teneurs en chlorures dans les eaux souterraines du site d'étude et dans la Deûle.

La Figure 5 montre que le sélénium et les nitrates (NO_3^-) ne sont pas corrélés aux teneurs en chlorures (Cl^-) en général. Les concentrations en sélénium montrent une grande variabilité spatiale depuis les plus faibles taux mesurés à Emmerin jusqu'aux taux les plus élevés et variables dans les eaux du A13.

Les concentrations en nitrates dans les eaux prélevées sont très variables, inférieures à la limite de quantification (0,5 mg/L) pour les eaux sous captivité du A26, et pour les forages A4, A23 et A14. Les teneurs maximales sont mesurées dans les eaux d'Emmerin et d'Houplin-Ancoisne (50 à 88 mg/L). Etant donné le contexte agricole, les nitrates proviennent probablement des engrais et des apports de station d'épuration. La présence d'une station d'épuration proche du forage A24 et A23 induit en particulier une contribution de nitrates et de chlorures d'origine organique, bien que les enrichissements en NO_3^- et Cl^- ne se fassent pas en proportion semblable. L'absence ou les très faibles teneurs en nitrates dans ce contexte où des eaux peuvent atteindre de très fortes concentrations résulte d'un processus naturel d'atténuation des nitrates par dénitrification. La présence des couvertures tertiaires ou des dépôts alluvionnaires argileux induit des conditions réductrices favorables à la dénitrification, qui est un processus biologique ou chimique qui transforme les ions nitrates en diazote gazeux (N_2), lorsque la séquence réactionnelle est complète.

Afin de mieux comprendre l'origine du sélénium, une première étude des origines et des mélanges des eaux souterraines a été réalisée en étudiant les rapports des concentrations Ca/Sr et Mg/Sr , ainsi que les rapports isotopiques du strontium.

4.3. MELANGES MAJEURS D'EAUX SOUTERRAINES SUR LE SITE D'ETUDE

L'étude approfondie des mélanges de masses d'eau à l'échelle régionale et à l'échelle locale des champs captants du sud de Lille, à l'aide des rapports Ca/Sr, Mg/Sr et des isotopes du strontium a permis de mettre en évidence trois grands pôles de mélanges des eaux souterraines.

Les données des eaux souterraines et des eaux de surface acquises entre juin 2011 et mars 2013 indiquent une évolution de la chimie des eaux des 4 champs captants autour de 3 pôles bien marqués. Des variations mensuelles importantes ont été enregistrées pour les rapports molaires Ca/Sr et Mg/Sr dans les forages A13 et A24 alors qu'elles étaient mineures pour H4 et S3. Ceci indique un changement de la chimie de l'eau des quatre puits au cours de la période de suivi.

La composition de la nappe de la craie dans le champ captant d'Emmerin est proche des données habituelles pour la craie du bassin de Paris avec des rapports Ca/Sr élevés (1500-1620 mol/mol) et des rapports Mg/Sr faibles (18 mol/mol).

La mesure des rapports des concentrations dans les solides tels que les limons quaternaires, les Sables d'Ostricourt, les argiles yprésiennes, la craie locale et les échantillons prélevés lors des sondages au droit des forages A13, H4, H11 et S3 permet de mettre en évidence les trois grands pôles de mélange des eaux, à l'échelle régionale (Figure 6):

- la nappe de la craie en conditions libres, représentée par la craie échantillonnée dans la carrière d'Emmerin et les échantillons de la craie provenant de la base des sondages H11, H4 et S3,
- la nappe de la craie en conditions captives telle que dans le forage A26 ;
- le pôle silicaté de ce système représenté par les limons quaternaires et les Sables Ostricourt, échantillonnés dans la carrière de Templeuve, avec des valeurs de Mg/Sr élevées et des rapports en Ca/Sr faibles.

A l'échelle plus locale des champs captants, trois types d'eau se mélangent (Figure 6):

- la nappe de la craie en conditions libres du type Emmerin-Houplin-Ancoisne de composition chimique similaire à celle observée pour les eaux de la craie du bassin de Paris ;
- la nappe de la craie en conditions captives telle que dans le forage A26 qui représenterait les eaux influencées par les formations tertiaires (Sables, grès, argiles) formant une couverture présente surtout dans la partie nord de la zone (commune de Wavrin), eaux riches en B, Na, Sr, Li, SiO₂ ;
- un pôle distinct d'eaux riches en sélénium représenté par les eaux des forages A12 et A17.

Les taux de sélénium dans les eaux en captivité sous les formations tertiaires (inférieurs à la limite de quantification pour le forage A26) sont très faibles, alors que le sélénium est présent dans les loess quaternaires sus-jacents. Ceci est probablement lié au fait que les conditions réductrices dans la nappe de la craie entraînent la réduction du sélénium et son oxydation sous forme solide.

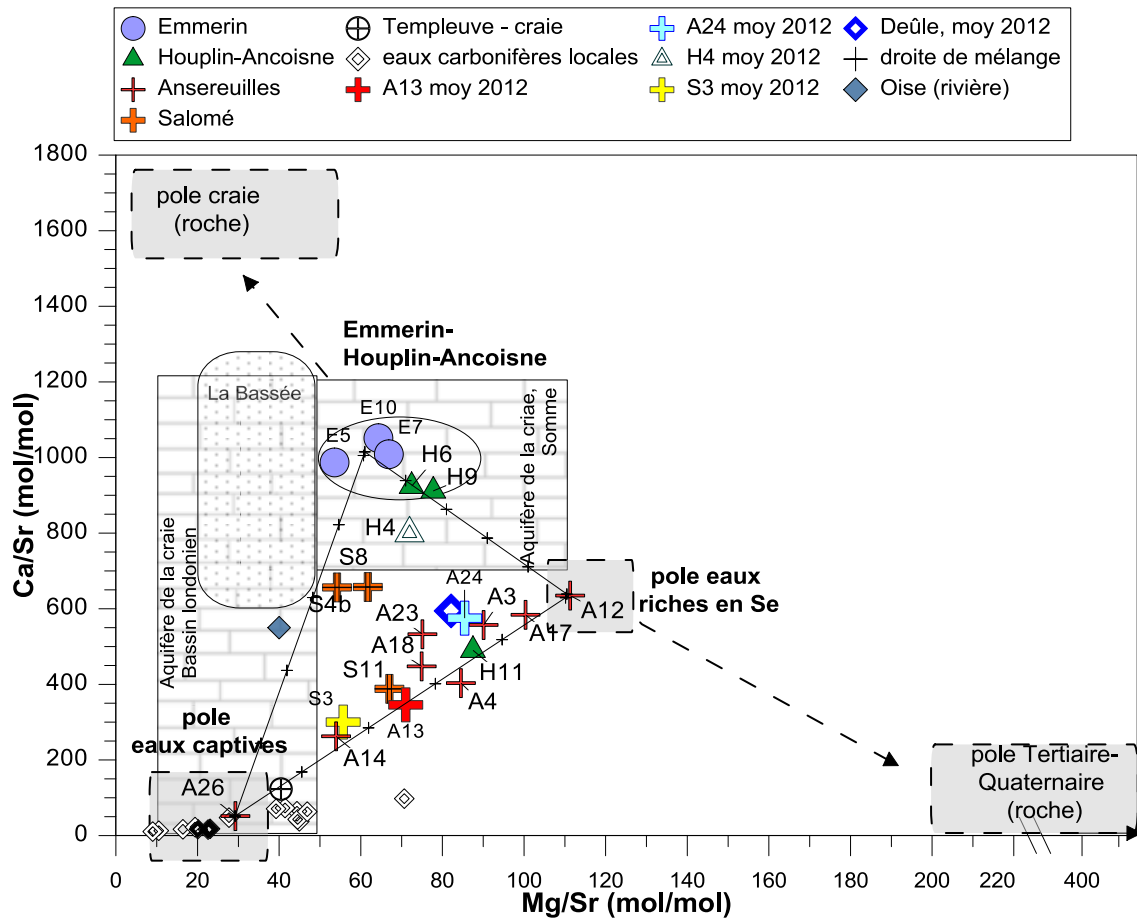


Figure 6 : Rapports Ca/Sr en fonction de Mg/Sr (mol/mol) dans les eaux souterraines et les solides échantillonnés sur le site d'étude. Les erreurs sont dans les points. Source (Cary et al., in prep). Le diagramme met en évidence les trois grands pôles de mélange des eaux, à l'échelle régionale : le pôle craie, le pôle tertiaire – quaternaire silicaté et le pôle des eaux captives du type du forage A26.

4.4. DATATION DES EAUX PAR LES CFC ET LES SF6

La datation permet d'estimer le temps écoulé entre le moment où l'eau s'est infiltrée dans le sol à partir des précipitations et le moment où elle est captée au niveau d'une source ou d'un forage. Une méthode innovante basée sur l'utilisation de certains gaz produits industriellement au XX^{ème} siècle, les fréons, a été employée. Les teneurs en gaz CFC et SF6 des eaux souterraines permettent ainsi de calculer la contribution en eau jeune.

Les eaux étant parfois extrêmement contaminées en CFC avec des teneurs supérieures à celles de l'air, seules les teneurs en SF6 ont été utilisées.

L'âge et les teneurs en sélénium ne sont pas corrélés à l'échelle globale des quatre champs captants. Les eaux souterraines d'Emmerin et d'Houplin-Ancoisne montrent une contribution d'eau jeune majoritaire (année moyenne de recharge postérieure à 2000), en cohérence avec leur position en zone de recharge. Les eaux du forage A26 sous couverture tertiaire sont les plus anciennes du site d'étude, avec environ 10 % d'eaux jeunes (année moyenne de recharge 1975). Les eaux du A12, du A13, du A17, du A3 et du A4 montrent des contributions intermédiaires d'eaux jeunes dans le contexte, entre 40 et 55 % (année moyenne de recharge entre 1990 et 2000), avec une grande variabilité des teneurs en Se (de la LQ à 0,4 µmol/L). Il

existe donc des mélanges de masses d'eau d'âges différents en fonction du temps, sous l'influence des pompages et du cycle hydrodynamique de la nappe.

4.5. RELATIONS ENTRE LE CONTEXTE GEOLOGIQUE, LES PROCESSUS HYDROGEOCHIMIQUES ET LE SELENIUM

La relation fine entre le contexte géologique et les teneurs en sélénium a été étudiée dans chaque forage suivi mensuellement afin de mettre en évidence le rôle de l'ennoyage des formations argileuses quaternaires riches en sélénium dans le contrôle des teneurs en sélénium dans les eaux.

Seuls les résultats obtenus dans le forage A13 dans Ansereuilles seront présentés car ils montrent une variabilité temporelle notable. La Figure 7 montre l'évolution dans le temps des teneurs en sélénium dans les eaux du forage A13 et la relation avec le niveau piézométrique de la nappe de la craie et la géologie. Depuis 2005 où les mesures des teneurs en sélénium sont plus fiables, le niveau piézométrique a oscillé autour de 6 m de profondeur, au niveau de la limite entre la craie et les dépôts quaternaires.

profil A13

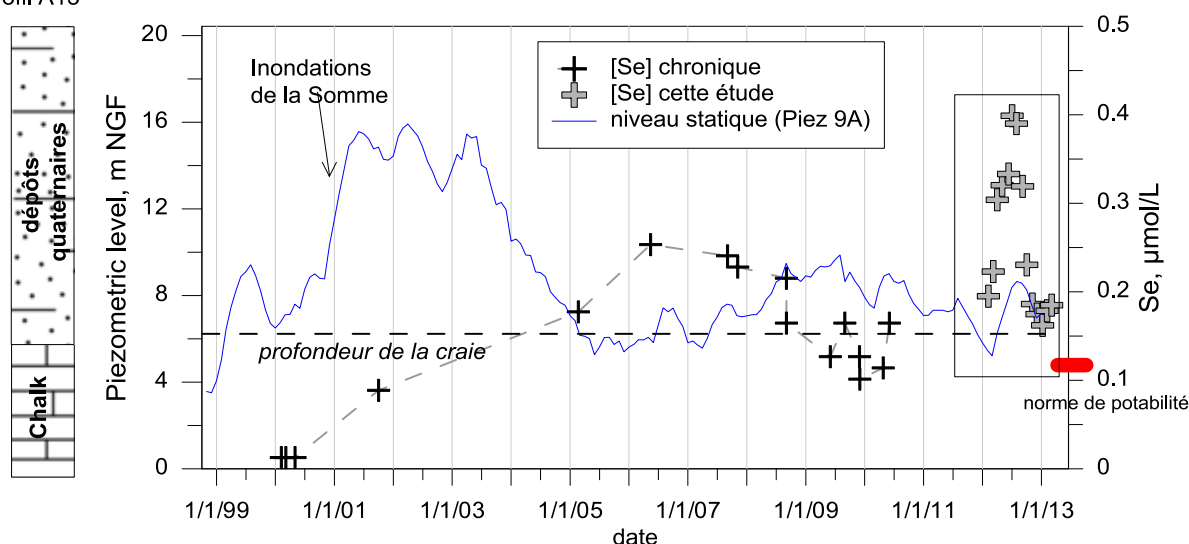


Figure 7 : Evolution dans le temps des teneurs en sélénium dans les eaux du A13 et relation avec le niveau piézométrique de la nappe de la craie et la géologie (données des exploitants et du projet).

De façon plus détaillée sur la période 2011-2013 de l'étude, les teneurs en sélénium du forage A13 sont corrélées avec l'augmentation du niveau piézométrique (Figure 8). Elles sont également corrélées avec les teneurs en nitrates jusqu'à novembre 2012 puis anti-corrélées pendant l'hiver. Les apports en nitrates sont importants pendant la période printanière et estivale. L'année 2012 ayant été particulièrement pluvieuse au printemps et en été, une recharge estivale des nappes a dû se produire et être à l'origine du haut niveau piézométrique en été et du décalage dans la corrélation entre le sélénium (origine locale) et les nitrates venant de la recharge à partir d'octobre-novembre 2012. Les bas niveaux piézométriques sont corrélés avec de plus fortes proportions d'eau jeune et inversement, les eaux pendant le haut niveau piézométrique sont plus âgées (Figure 8). Cela semble signifier que, lors de l'ennoyement des argiles en haut niveau piézométrique et de la mobilisation du sélénium dans les eaux, une fraction d'eau ancienne soit libérée. En revanche, la qualité des eaux du H4 montre une grande

variabilité, et la contribution d'eau jeune varie entre 60 et 100% sans pouvoir être reliée à l'hydrodynamique. Ceci s'explique probablement par le fait que les dépôts sus-jacents à la craie étaient envoyés de façon constante lots de l'étude.

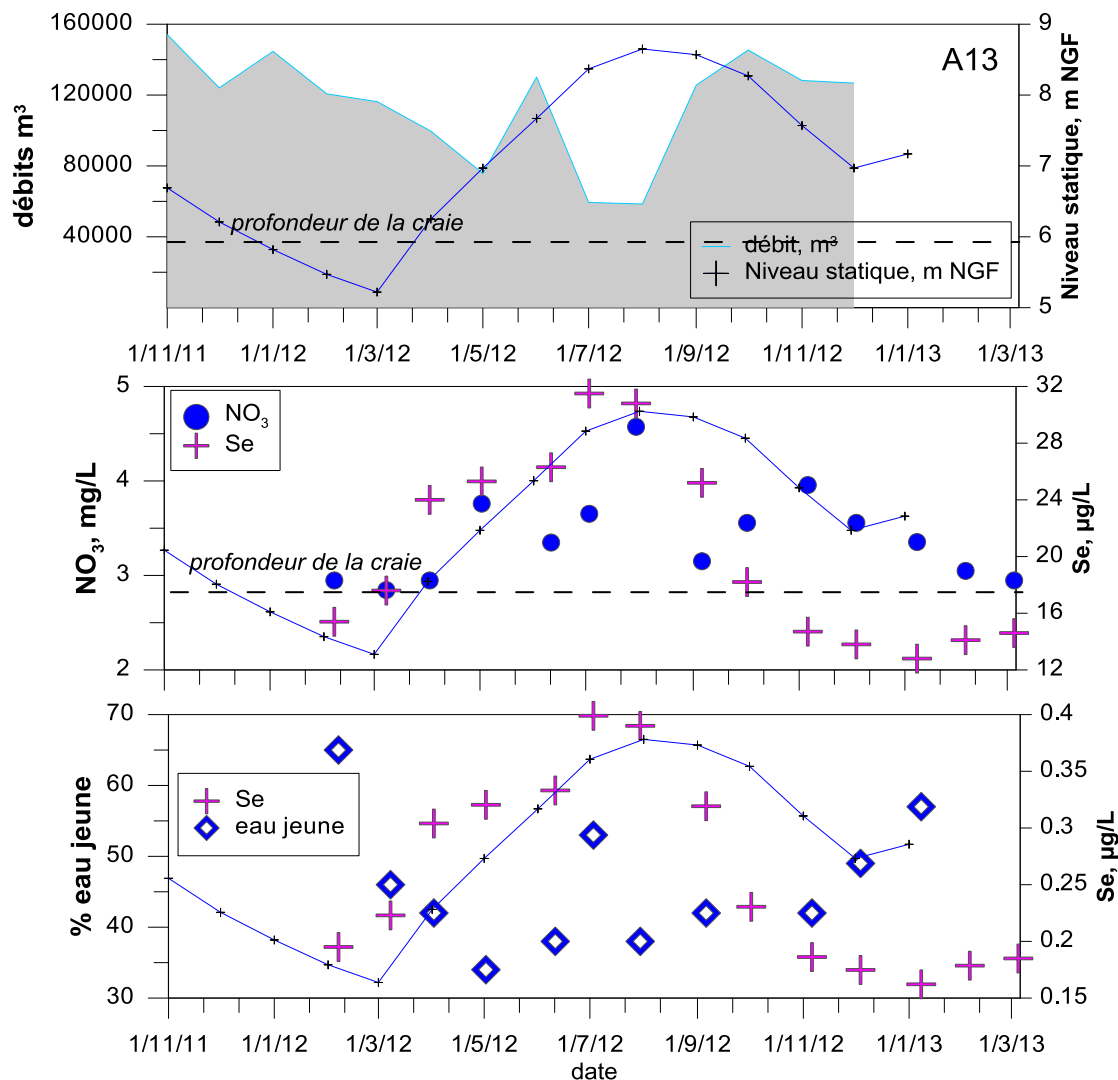


Figure 8 : Evolution des teneurs en sélénium, nitrates et du pourcentage d'eau jeune en fonction du temps pendant la période d'étude 2012-2013.

4.6. SYNTHÈSE DES RELATIONS ENTRE LES FORMATIONS CAPTEES ET LE NIVEAU DYNAMIQUE DANS LES FORAGES

Dans le site d'étude, deux dynamiques influent sur la présence du sélénium dans les eaux souterraines et sont illustrées sur la Figure 9 :

- une dynamique annuelle liée à la recharge naturelle de la nappe influençant le déplacement du niveau piézométrique dans la zone de battement de la nappe où s'accumule le sélénium, ainsi que les écoulements le long des failles et l'infiltration de la recharge depuis la surface ;

- une dynamique rapide liée à l'exploitation, engendrant des variations brusques du niveau dynamique et la saturation du profil à proximité du puits, et des transferts latéraux en raison des gradients hydrauliques, interconnexions entre les forages.

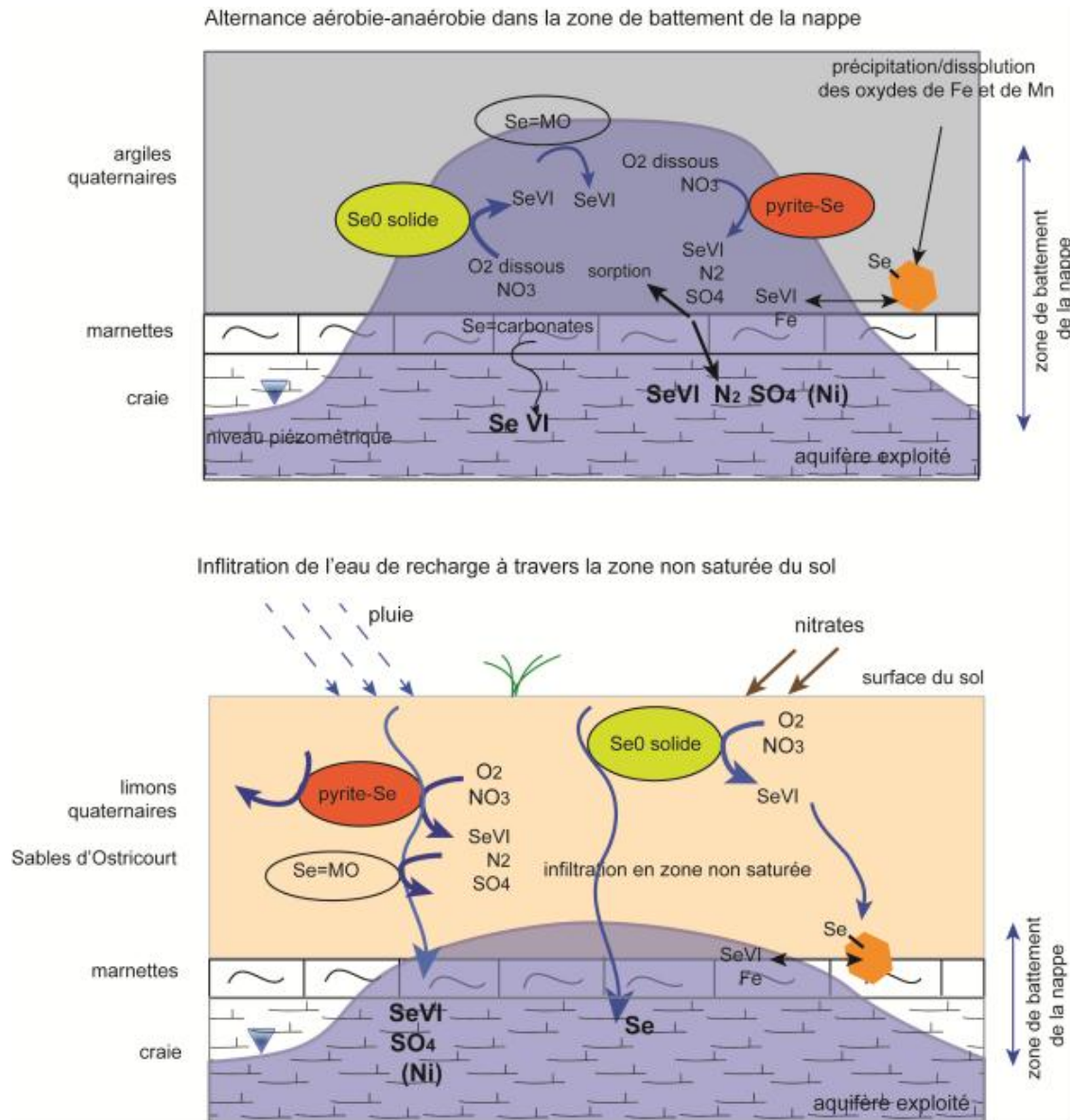


Figure 9 : Schémas conceptuels figurant les hautes eaux et les basses eaux et expliquant la mobilisation du sélénium dans les deux grands cas de figure rencontrés sur le site des champs captants du sud de Lille. Le premier cas représente les conditions du forage A13, où les dépôts argileux sus-jacents à la craie sont alternativement ennoyés et dennoyés. Le second cas représente ce qui pourrait se passer à Salomé ou à Emmerin, où le sélénium est présent de manière diffuse dans les formations superficielles traversées par l'eau de pluie enrichie en nitrates lors de son infiltration.

5. Propositions de gestion de l'AEP pour minimiser les teneurs en sélénium dans les eaux souterraines

Les résultats du projet Thermosel montrent la corrélation très fine entre la présence des dépôts argileux riches en sélénium dans la zone de battement de la nappe et les teneurs en sélénium, ce qui permet d'affirmer que le sélénium est essentiellement d'origine naturelle. Les résultats du projet mettent également en évidence une très forte réactivité du système aux modifications engendrées par les variations piézométriques. En particulier, une baisse du niveau piézométrique maintenu dans la formation de la craie induit une diminution des teneurs en sélénium, tel que cela a été observé dans les puits A13 et H4. Pendant la période de basses eaux, les teneurs en sélénium atteignent ainsi leurs valeurs les plus basses. D'autres sources de sélénium pourraient contribuer aux teneurs en sélénium dans les eaux souterraines, mais en l'état actuel de nos connaissances, les effets seraient probablement mineurs et locaux et restent à étudier.

Cette grande réactivité du système est donc fondamentale à prendre en compte pour l'exploitation des forages. Des propositions de gestion de l'AEP sont maintenant discutées en prenant en compte leurs effets sur d'autres éléments inorganiques qui ont été analysés lors de cette étude, en particulier le nickel.

5.1. CONTROLE DE LA PIEZOMETRIE

Dans le puits H4 d'Houplin-Ancoisne où la base des formations quaternaires est ennoyée, les teneurs en sélénium évoluent autour d'une moyenne qui correspond peu ou prou à la norme de potabilité. Dans le forage A13, une faible diminution piézométrique avec un niveau de nappe inférieur à 6 m NGF entraîne systématiquement des teneurs en sélénium minimales entre 12 et 16 µg/L.

En contrôlant les débits de pompage et les périodes de pompage, il faudrait maintenir le niveau piézométrique dans la craie et laisser les argiles quaternaires riches en Se en conditions non saturées. La grande réactivité du système implique une gestion fine de l'exploitation, forage par forage, avec une surveillance des niveaux statiques et dynamiques. Les puits les plus riches en sélénium étant identifiés, il s'agirait également d'éviter au maximum les mélanges entre les puits contaminés et les autres en essayant de réguler les débits de pompage. Ceci pourrait impliquer des stockages d'eau pompée.

Les résultats des analyses du solide ont montré que les argiles quaternaires contiennent des teneurs non négligeables en nickel, en cobalt et en arsenic. Les eaux des forages A12 et A13 des Ansereuilles, mais aussi S3 de Salomé, dépassent la limite de potabilité en nickel. Dans les eaux du forage A13, nickel et sélénium sont bien corrélés en fonction du temps. Ainsi, les processus de solubilisation du nickel et du sélénium pourraient être similaires. C'est le cas par exemple de la dissolution oxydative de la pyrite qui peut contenir du sélénium et du nickel (adsorber à sa surface ou co-précipiter). En conséquence, le contrôle et le maintien du niveau piézométrique de la nappe dans la formation crayeuse pourrait également contribuer à diminuer les teneurs en nickel dans les eaux souterraines et en particulier du forage A13.

Une proposition opposée serait de laisser remonter le niveau piézométrique dans les argiles de façon permanente et de laisser s'installer des conditions réductrices. Ceci implique de diminuer les débits de pompages et est une option difficilement envisageable. Dans le cas où le Nickel

comme le sélénium ont pour origine la dissolution oxydative de la pyrite, l'installation des conditions réductrices pourrait en conséquence limiter la solubilisation du nickel dans le forage A13. En conclusion, il serait nécessaire de pouvoir contrôler l'exploitation de chaque forages de façon indépendante afin d'optimiser les niveaux piézométriques et les débits de pompage.

5.2. LOCALISATION DES FORAGES

Nous avons vu combien la contamination en sélénium est liée à la présence des dépôts argileux riches en sélénium au droit des forages ; les champs captants, en particulier les Ansereuilles et Houplin-Ancoisne, montrent une variabilité spatiale importante. En particulier, les différences entre les puits A13-A12 et A14 sont flagrantes. En conséquence, l'abandon des forages les plus riches en sélénium, qui a déjà été fait pour le forage A12 et le forage H11 par exemple, est une option.

Il serait ensuite important de localiser précisément l'extension de cette dépression favorisée par le jeu de la faille de Seclin contenant des dépôts argileux riches en sélénium et de forer les nouveaux puits de préférence hors de leur emprise. Ceci nécessite de réinterpréter les profils lithologiques des bases de données (infoterre) en les affinant par sondage ou par géophysique.

6. Conclusions

Afin de mieux comprendre les variations spatio-temporelles des teneurs en sélénium dans les eaux souterraines des champs captants du sud de Lille, la qualité des eaux a fait l'objet d'une description spatiale à l'échelle des quatre champs captant puis d'un suivi mensuel dans quatre forages pompant la nappe de la craie à Houplin-Ancoisne, aux Ansereuilles et à Salomé. Une étude géochimique des roches régionales et des formations présentes sur les champs captants a également été menée.

Les données du projet montrent que le sélénium des eaux souterraines des champs captants, qui peut atteindre des teneurs supérieures à 30 µg/L, du sud de Lille est essentiellement d'origine naturelle. Les échantillons de la craie locale ne montrent pas de sélénium, présent en revanche dans les formations géologiques tertiaires et quaternaires. Les sables d'Ostricourt, formation sus-jacente du Landénien (Paléocène inférieur), les argiles yprésiennes et les limons quaternaires qui surmontent l'ensemble présentent des teneurs en sélénium notables. Plus localement au droit des forages A13 aux Ansereuilles notamment, d'épais dépôts argileux ont révélé contenir une quantité importante de sélénium. Ils ont été attribués au Tertiaire et ont été conservés par le jeu de la faille de Seclin. Les eaux de ces forages traversant ces argiles montrent parmi les plus fortes teneurs en sélénium du site (jusqu'à 63 µg/L). Les forages montrant des teneurs plus faibles en sélénium traversent des formations superficielles quaternaires peu riches en sélénium, comme à Salomé ou à Emmerin.

Une étude approfondie des mélanges de masses d'eau à l'échelle régionale et à l'échelle locale des champs captants du sud de Lille, à l'aide des rapports Ca/Sr, Mg/Sr et des isotopes du strontium a permis de mettre en évidence trois grands pôles de mélanges des eaux souterraines :

- un pôle silicaté tertiaire riche en sélénium (sables/argiles) et pauvre en strontium ;
- un pôle provenant de la nappe de la craie en condition libre riche en strontium ;
- un pôle provenant de la nappe de la craie en condition captive sous couverture tertiaire à fortes teneurs en strontium.

A l'échelle du site d'étude, trois types d'eaux se mélangent : (1) un pôle représentant les eaux de nappe provenant de la zone de recharge en amont située à Emmerin et Houplin-Ancoisne ; (2) un pôle provenant de la nappe de la craie en conditions captives sous couverture tertiaire (du type du puits A26 des Ansereuilles), et (3) un pôle d'eau riche en sélénium du type des eaux du forage A12 des Ansereuilles.

Les datations avec les SF6 ont montré que les eaux les plus jeunes se retrouvent dans les captages d'Emmerin et d'Houplin-Ancoisne, zone de recharge de la nappe de la craie tandis que les eaux les plus anciennes proviennent des forages traversant la couverture tertiaire (A26) au nord des Ansereuilles conformément à la géologie du site.

Sur l'ensemble du secteur d'étude et pendant la durée de l'étude, les eaux de surface n'ont pas montré de teneurs importantes en sélénium (inférieures à 4,7 µg/L).

Bien que l'élément sélénium soit délicat à analyser et qu'une variation de 3 µg/L pour une concentration moyenne de 8 µg/L ne soit pas significative, il existe des variations saisonnières importantes des teneurs en sélénium notamment dans le A13 et le H4 où les teneurs varient du simple au double entre les hautes eaux et les basses eaux. Ces résultats mettent en évidence

une très forte réactivité du système aux modifications engendrées par les variations piézométriques.

Deux dynamiques influent donc sur la présence du sélénium dans les eaux souterraines en favorisant l'entrée d'oxygène sous forme d'oxygène dissous ou de nitrates pouvant oxyder les phases solides du sélénium dans la zone non saturée et dans la zone de battement de la nappe :

- une dynamique annuelle liée à la recharge naturelle de la nappe influençant le déplacement du niveau piézométrique dans la zone de battement de la nappe, ainsi que les écoulements le long des failles ;
- une dynamique rapide liée à l'exploitation, engendrant des variations brusques du niveau dynamique et la saturation du profil à proximité du puits, et des transferts latéraux en raison des gradients hydrauliques et des interconnexions entre les forages.

Ce cas d'oxydation de niveaux réducteurs causés par les variations piézométriques dues à l'exploitation a déjà été mis en évidence dans le bassin Seine-Normandie pour les niveaux de l'Yprésien en particulier.

Dans les eaux souterraines, la dénitrification par oxydation de la pyrite et la solubilisation des phases séléniées sont les processus majeurs contrôlant les teneurs en sélénium, sulfates et nitrates. L'analyse des isotopes des sulfates confirme le rôle prépondérant de l'oxydation de la pyrite et des mélanges des masses d'eaux. Dans le contexte régional, les eaux circulant dans les niveaux yprésiens et quaternaires pourraient également contribuer au stock de sélénium dans les eaux souterraines après leur infiltration. Des mélanges sont également possibles avec les masses d'eau enrichies en sélénium à la faveur des grands accidents tectoniques affectant la craie et les formations tertiaires.

Les données acquises dans ce projet démontrent donc l'origine naturelle du sélénium dans les eaux souterraines. En l'état actuel de nos connaissances, une origine anthropique du sélénium dans les eaux souterraines du site étudié n'est pas à exclure, mais elle sera très probablement mineure. En particulier, les travaux de thèse d'Hind Benabderraziq (Rapport d'avancement D15 et manuscrit de thèse) ont montré que les sédiments de la Deûle et de ses affluents pouvaient contenir du sélénium. Les données du projet ne permettent cependant pas d'étudier les mécanismes de transfert du sélénium dans la zone de transition entre les eaux de surface et les eaux souterraines.

6.1. PERSPECTIVES

Dans un premier temps, il serait judicieux de réaliser sur le terrain des tests de pompages avec un contrôle continu de la spéciation incluant la partie organique du sélénium. Ceci permettrait : (1) de valider la relation avancée dans cette étude entre le niveau piézométrique dynamique et la mobilisation du sélénium, et (2) si l'hypothèse précédente est validée, de définir, pour le forage testé, des conditions d'exploitations pour lesquelles la mobilisation du Sélénium est minimale.

D'autres objectifs seraient :

- de mieux identifier la distribution spatiale et l'âge des dépôts argileux riches en sélénium dans les champs captants, en réinterprétant les logs de la base de données du sous-sol et par géophysique (résistivité électrique);
- de comprendre le rôle des nitrates dans la mobilisation du sélénium, en lien avec la minéralogie et la microbiologie ; les nitrates sont effectivement des accélérateurs potentiels de la mobilisation du sélénium ;

- de proposer et d'évaluer, en collaboration avec les exploitants, des actions de dépollution dans les forages où les teneurs en sélénium sont fortes, par exemple par sorption du sélénium sur une phase solide ;
- d'améliorer la compréhension du fonctionnement hydrogéologique local et en particulier de mieux identifier les contributions des nappes sus-jacentes à la nappe de la craie ; en effet, les nappes tertiaires et quaternaires sont potentiellement riches en sélénium et les échanges nappe-rivière peuvent potentiellement transférer du sélénium des sédiments de la Deûle vers les eaux souterraines.

7. Bibliographie

1969. Notice de la carte géologique au 1/50 000 de Carvin, in: BRGM (Ed.).
- ADEME, 2007. Bilan des flux de contaminants entrant sur les sols agricoles de France métropolitaine. Bilan qualitatif de la contamination par les éléments tracés métalliques et les composés tracés organiques et application quantitative pour les éléments tracés métalliques. SOGREAH. 329 p.
- Bailey, R.T., Hunter, W.J., Gates, T.K., 2012. The Influence of Nitrate on Selenium in Irrigated Agricultural Groundwater Systems. *Journal of Environmental Quality* 41, 783-792.
- Brenot, A., Gourcy, L., Allier, D., 2007. Identification des zones à risques de fond géochimique élevé en éléments traces dans les cours d'eau et les eaux souterraines. Bassin Seine-Normandie, Rapport BRGM/RP-55346-FR.
- Caous, J.Y., 2003. Impact de l'activité industrielle sur la qualité de la nappe de la craie (champs captants du Sud de Lille - 59). Etat initial des connaissances géologiques et hydrogéologiques. Projet BRGM POLD05. BRGM, RP-52180-FR.
- Cary, L., Benabderraziq, H., Elkhatabi, J., Gourcy, L., Parmentier, M., Picot, J., Khaska, M., Laurent, A., Négrel, P., in prep. Tracking selenium behaviour in chalk aquifer (northern France): Sr isotopes constraints
- Cary, L., Parmentier, M., 2013. Présence de sélénium dans les eaux du bassin Artois-Picardie : Contexte et origine pour une gestion adaptée de la ressource en eau des champs captants de LMCU et Noréade. BRGM/RP-62967-FR. Étude réalisée dans le cadre du projet Thermosel.
- Chabart, M., Gourcy, L., Braibant, G., et al., 2006. Origine des anomalies en sélénium dans les captages d'AEP du département de la Marne. Première approche., Rapport BRGM RP-54939-FR.
- Damien, K.A., 2006. Occurrence du sélénium, fluor, baryum et arsenic dans les aquifères du bassin parisien et leur répartition en Ile-de-France et Centre. Rapport de fin d'étude de Master 2 de recherche, Université Paris-11., Université Paris-11.
- Darcheville, O., Février, L., Haichar, F.Z., Berge, O., Martin-Garin, A., Renault, P., 2008. Aqueous, solid and gaseous partitioning of selenium in an oxic sandy soil under different microbiological states. *Journal of Environmental Radioactivity* 99, 981-992.
- Gates, T.K., Cody, B.M., Donnelly, J.P., Herting, A.W., Bailey, R.T., Price, J.M., 2009. Assessing Selenium Contamination in the Irrigated Stream-Aquifer System of the Arkansas River, Colorado. *Journal of Environmental Quality* 38, 2344-2356.
- Gourcy, L., 2011. Synthèse opérationnelle de l'étude de l'origine du sélénium et compréhension des processus dans les eaux souterraines du bassin Seine-Normandie. BRGM, RP-60061-FR.
- Lenz, M., Lens, P.N.L., 2009. The essential toxin: The changing perception of selenium in environmental sciences. *Science of The Total Environment* 407, 3620-3633.
- Neal, R.H., 1995. Selenium, Heavy metals in soils, B. J. Alloway Eds, pp. 260-283.
- Picot, J., 2010. Modélisation géologique de la craie céno-turonienne en région Nord-Pas-de-Calais. Rapport final, in: BRGM/RP-58910-FR (Ed.), p. 75.
- Plant, J.A., Kinniburgh, D.G., Smedley, P.L., Fordyce, F.M., Klinck, B.A., 2005. Arsenic and selenium. *Treatise on Geochemistry*, Vol 9: Environmental Geochemistry, 17-66.
- Robaux, V., 2004. Evaluation de la présence de sélénium dans les eaux d'alimentation de captages de l'Essonne : caractérisation, évolution. Ecole Nationale de la Santé Publique, Rennes, 27 p.
- Séby, F., Potin-Gautier, M., Giffaut, E., Borge, G., Donard, O.F.X., 2001. A critical review of thermodynamic data for selenium species at 25°C. *Chemical Geology* 171, 173-194.
- Vernoux, J.F., Barbier, J., Chery, L., 1998. Les anomalies en sélénium dans les captages d'Ile-de-France (Essonne, Seine-et-Marne), rapport BRGM/RP-40114-FR, 46 p.



Géosciences pour une Terre durable

brgm

Centre scientifique et technique

Direction D3E

3, avenue Claude-Guillemain

BP 36009 – 45060 Orléans Cedex 2 – France – Tél. : 02 38 64 34 34