



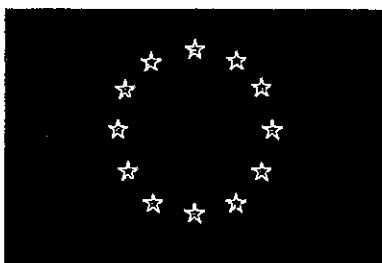
DOCUMENT PUBLIC

Projet « Villages des Fleuves » de Guyane

*Synthèse des résultats obtenus dans le cadre de
l'ensemble du projet
Publications scientifiques acceptées et soumises*

juin 2001
RP- 51047-FR





DOCUMENT PUBLIC

Projet « Villages des Fleuves » de Guyane

*Synthèse des résultats obtenus dans le cadre de
l'ensemble du projet
Publications scientifiques acceptées et soumises*

P. Lachassagne, Ph. Weng

juin 2001
RP- 51047-FR



Mots clés : eau souterraine, alluvions, socle, géologie, radon, géophysique, hydrogéologie, hydrogéochimie, Villages des Fleuves, Oyapok, Maroni, Guyane, France

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

Lachassagne P., Weng Ph. (2001) – Projet « Village des Fleuves » de Guyane. Synthèse des résultats obtenus dans le cadre de l'ensemble du projet. Publications scientifiques acceptées et soumises. Rapport BRGM/RP-50871-FR, 44 p., 8 fig., 2 tabl., 2 ann.

© BRGM, 2001, ce document ne peut être reproduit en totalité ou en partie sans l'autorisation expresse du BRGM.

Sommaire

SOMMAIRE	3
LISTE DES FIGURES.....	5
LISTE DES TABLEAUX	7
LISTE DES ANNEXES	9
1. INTRODUCTION	11
1.1. La Guyane.....	11
1.2. Présentation des projets de recherche "eau" du PDR 1994 - 1999	12
1.3. Présentation du projet de recherche "villages des fleuves"	12
2. MÉTHODOLOGIE	15
3. CONNAISSANCES ACQUISES DANS LE CADRE DU PROJET. DONNÉES ET MÉTHODES	17
3.1. Typologie des différentes ressources en eau souterraine valorisables dans le contexte des villages des fleuves.....	17
3.2. Méthodologies et Techniques pour l'implantation des forages d'eau au sein des roches de socle	19
3.2.1. Géologie – Fracturation - Contraintes.....	20
3.2.2. Techniques de terrain pour l'implantation de forages	26
3.3. Hydrogéochimie.....	33
3.4. Eléments socio-économiques	38
3.5. Publications scientifiques.....	39
4. SYNTHÈSE – PERSPECTIVES	41
4.1. Principaux résultats acquis dans le cadre du CPER 1994-1999	41
4.2. Perspectives dans le cadre du CPER 2000-2006.....	41
4.2.1. Caractérisation des différentes phases d'altération et des propriétés hydrogéologiques de leur zone fissurée altérée respective.....	42
4.2.2. Caractérisation, au moyen de l'outil géochimique et multi-isotopique, du fonctionnement des aquifères en conditions d'exploitation par pompage	42
5. RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....	43

Liste des figures

<i>Fig. 1 - Typologie des aquifères existant dans le contexte des villages des fleuves</i>	<i>16</i>
<i>Fig. 2– Principe de la variabilité des propriétés des fractures en fonction de leur orientation par rapport aux contraintes actuelles</i>	<i>21</i>
<i>Fig. 3 – Localisation des stations de mesures et observations de la fracturation sur affleurements</i>	<i>23</i>
<i>Fig. 4 – A gauche : courbes, en mètres, de la déformation du substratum du cône de l'Amazonie et de ses environs. A droite : relation du bourrelet périphérique avec le réseau hydrographique (en rouge, cône de l'Amazonie ; en bleu, Maroni et Oyapock).</i>	<i>25</i>
<i>Fig. 5 – Etat des contraintes en Guyane, compte tenu de la présence du bourrelet associé au cône de l'Amazonie.....</i>	<i>26</i>
<i>Fig. 6 – Exemple d'une anomalie radon. Site de Grand Santi</i>	<i>28</i>
<i>Fig. 7 – Explication de l'origine des anomalies radon.....</i>	<i>30</i>
<i>Fig. 8 – Localisation des sites où ont été réalisés des prélèvements pour analyses géochimiques et isotopiques.....</i>	<i>34</i>

Liste des tableaux

<i>Tab. 1 - Typologie des différents types de ressource en eau souterraine valorisables dans le contexte des villages des fleuves. Alluvions.....</i>	<i>17</i>
<i>Tab. 2 – Typologie des différents types de ressource en eau souterraine valorisables dans le contexte des villages des fleuves. Socle</i>	<i>18</i>

Liste des annexes

Annexe 1 : Publications scientifiques produites dans le cadre du projet (acceptées ou soumises) ; pièces jointes à la fin du rapport.

1. Introduction

1.1. LA GUYANE

Seul département d'outre mer continental, frontalier avec le Brésil à l'Est et au Sud et le Surinam à l'Ouest, la Guyane est située au Nord-Est de l'Amérique du Sud, entre les 2^{ème} et 6^{ème} degrés de latitude Nord et entre les 51^{ème} et 55^{ème} degrés de longitude Ouest. Avec une superficie de 90.000 km², c'est le plus grand et l'un des moins peuplés des départements français (150.000 habitants environ).

La Guyane est soumise à un climat de type tropical humide, caractérisé par un régime thermique de faible amplitude et un contraste pluviométrique bien marqué entre saison sèche (de fin juillet à fin novembre) et saison des pluies. La pluviométrie moyenne annuelle varie entre 2000 et 4000 mm à l'échelle du département.

Cette région appartient au vaste ensemble géologique du Bouclier Guyanais. La majorité des terrains qui constituent son sous-sol, formé de roches cristallines pour l'essentiel, s'est mise en place et structurée au Protérozoïque inférieur (entre 2,5 et 1,9 milliards d'années). L'ouverture de l'Atlantique constitue le dernier événement tectonique majeur ayant affecté la Guyane, il y a 250 millions d'années environ. Le long du littoral, le substratum cristallin est recouvert, sur une bande de quelques kilomètres de large seulement, de sédiments récents, peu épais, à dominante argileuse. Le Bouclier Guyanais est soumis, depuis plusieurs dizaines de millions d'années au moins, à un climat fortement hydrolysant qui a favorisé le développement d'une épaisse couverture d'altération de type latéritique.

La forêt primaire occupe l'essentiel du territoire de la Guyane. Les voies de communication routières étant exclusivement limitées à la bande côtière, les transports aériens et surtout fluviaux constituent les seuls moyens de pénétration à l'intérieur des terres.

Les principales zones de peuplement et de développement actuel de ce département d'Outre Mer sont situées pour l'essentiel sur la frange côtière d'une part, sur une bande de 10 à 40 km de large, et, d'autre part, le long des deux principaux fleuves frontaliers : Maroni à l'Ouest et Oyapok à l'Est. Ces deux secteurs constituent les principales zones de demande importante en eau pour l'Alimentation en Eau Potable (A.E.P.).

L'Île de Cayenne, sur laquelle sont implantées Cayenne, chef lieu du département, et sa périphérie, rassemble plus de la moitié de la population, soit environ 80.000 habitants (estimation 1995). L'A.E.P. de cette agglomération est assurée uniquement par des eaux de surface, qui proviennent pour l'essentiel d'une seule prise d'eau en fleuve. Situé à plus de 40 km des lieux de consommation, ce captage représente à lui seul près des trois quarts de la production d'eau du département.

La population des fleuves, environ 40.000 habitants en 1999, est en forte croissance (augmentation de près de 50% en moins de 10 ans). Néanmoins, 95% des villages ne sont pas alimentés par un réseau d'A.E.P. et utilisent de ce fait la ressource en eau que constitue le fleuve, ce qui génère des problèmes de santé publique, faute de l'existence de dispositifs de traitement adaptés.

Ainsi, d'un point de vue plus général, l'A.E.P. de la Guyane est assurée à 98 % par des captages d'eau de surface.

Les problèmes de santé publique et de qualité des eaux captées, de sécurité et de coût d'approvisionnement (tant en investissement qu'en fonctionnement, en particulier pour le traitement de l'eau produite), mais également de croissance de la demande, de ressource disponible en saison sèche, etc. constituent autant d'arguments en faveur d'une diversification des sources d'approvisionnement en eau du département.

1.2. PRESENTATION DES PROJETS DE RECHERCHE "EAU" DU PDR 1994 - 1999

Jusqu'à ces dernières années, les ressources en eau souterraine de la Guyane étaient mal connues. Il était même souvent posé comme **postulat**, par les maîtres d'ouvrage, l'**absence de ressource en eau souterraine en Guyane**, hors frange littorale.

Situées dans un contexte hydrogéologique difficile, compte tenu des technologies qui étaient disponibles jusqu'à cette époque, les eaux souterraines n'avaient en effet fait l'objet que de travaux de prospection ponctuels, rarement couronnés de succès. Pour mener à bien cet objectif de diversification des approvisionnements, il apparaissait donc nécessaire d'améliorer leur connaissance fondamentale, avant de passer aux phases opérationnelles « aval » de mise en valeur de cette ressource.

Le présent programme de recherche, qui s'intègre dans le cadre du Plan de Développement Régional associé au contrat de plan Etat - Région et au Docup (FEDER) 1994 - 1999, a été conçu avec cet objectif. Ces travaux de recherche sont cofinancés par l'Union Européenne, la Région Guyane ainsi que par les Ministères de l'Industrie et de la Recherche, dans le cadre de la dotation de Recherche du BRGM.

Le programme de recherche "eaux souterraines" est découpé en deux projets qui concernent respectivement, d'une part les ressources en eau souterraine de l'Île de Cayenne (Convention 95/2720 du Docup Guyane 1994 - 1999) et de la bordure littorale (plus particulièrement focalisé sur la région d'Iracoubo) et, d'autre part, celles des « **Villages des Fleuves** » (convention 95/2722). Les résultats obtenus à l'issue de ce deuxième projet, sont présentés au sein du présent rapport de synthèse.

Les travaux de recherche mis en oeuvre dans le cadre des deux projets "Île de Cayenne" et "Villages des fleuves" concernent le même objet hydrogéologique : le socle cristallin du bouclier guyanais. Ils ont donc fait l'objet d'efforts de recherche menés en parallèle. Sur le plan technique, ils ont été réalisés simultanément, en adaptant les programmes de recherche à leurs spécificités respectives.

1.3. PRESENTATION DU PROJET DE RECHERCHE "VILLAGES DES FLEUVES"

Le contexte des vallées fluviales de Guyane présente de nombreuses spécificités :

- **risque sanitaire** associé à la principale ressource en eau actuellement utilisée : le fleuve,

- **dispersion de la population.** A titre d'exemple, 59% de la population des rives du Maroni réside au sein de 186 villages, dont 170 sont dépourvus d'Alimentation en Eau Potable,
- **croissance démographique et tendance à la sédentarisation** des populations,
- **isolement** : le seul moyen de transport abordable économiquement, en particulier pour des pondéreux, est le fret fluvial, limité à des pirogues de faible tirant d'eau, compte tenu des contraintes de navigation (sauts). Ceci induit des contraintes fortes sur les infrastructures, tant en terme d'investissement que de coûts de fonctionnement. Ainsi, du seul fait des contraintes et coûts de transport, il semble difficilement envisageable de proposer la généralisation de stations de traitement des eaux du fleuve, qui nécessitent des volumes significatifs d'additifs (floculants, coagulants, etc.), en général peu coûteux, mais pondéreux,
- etc..

A cet égard, et même dans un contexte d'aquifère de socle (roches plutoniques : granites, et métamorphiques : schistes, etc.) où les ressources en eau souterraine sont limitées en volume (en comparaison de celles des roches sédimentaires, karstiques, voire volcaniques), les eaux souterraines présentent un intérêt certain pour l'alimentation des populations :

- qualité (absence de matières en suspension en particulier), donc process de traitement limités pour atteindre les normes sanitaires en vigueur (une simple chloration peut être suffisante),
- disponibilité à proximité immédiate des lieux de consommation,
- etc..

Compte tenu de la taille unitaire relativement réduite des communautés vivant en bordure des fleuves, les ressources à mettre en évidence pour chaque village correspondent à l'équivalent d'un ou de plusieurs ouvrages de captage susceptibles de produire chacun de quelques à une dizaine de mètres cubes d'eau par heure. Les contraintes particulières liées à l'isolement des communautés des fleuves (infrastructures de transport limitées, énergie disponible coûteuse, etc.) doivent être prises en considération afin de développer des méthodologies de prospection, de captage et d'exploitation (y compris traitement) de la ressource adaptées.

Le projet s'intègre ainsi au sein de l'**Axe 3 du DOCUP** : « Gestion-protection de l'environnement, Gestion de la ressource en eau » : « sites isolés » et « recherche d'eau souterraine » pour « limiter les investissements sur les filières de traitement ».

Le **principal objectif** du projet de recherche consistait donc à acquérir une compréhension suffisante de l'hydrogéologie des formations du bouclier guyanais pour :

- définir s'il existe, dans le contexte des villages des fleuves, des ressources en eau souterraines économiquement exploitables compte tenu des contraintes mentionnées plus haut,
- en proposer une typologie, tant en fonction des besoins (débits à fournir) que du contexte hydrogéologique,
- proposer des méthodologies de prospection, de mise en valeur, d'exploitation, de gestion et de protection de la ressource adaptées, qui pourront ensuite être mises en œuvre de manière opérationnelle.

Même si sa démonstration nécessite temporairement la mise en oeuvre de travaux relativement fondamentaux, la finalité de la recherche est donc très appliquée. *A contrario*, l'objectif du projet n'était pas d'alimenter en eau l'ensemble des villages des fleuves. En tout état de cause, les moyens alloués au projet de recherche n'y auraient pas suffi.

Néanmoins, des synergies ont été développées avec des projets opérationnels d'alimentation en eau potable (Camopi, Grand-Santi, Maripasoula, Loka, etc.), à la demande des collectivités locales concernées, ce qui a permis d'assurer, tout en répondant à la « demande sociale », d'une part un premier transfert des produits de la recherche vers le domaine de l'application et, d'autre part, d'acquérir des données complémentaires, permettant de compléter et d'enrichir les travaux de recherche.

2. Méthodologie

Dans le contexte des villages des fleuves, la structure géologique du sous-sol conditionne la présence potentielle de **quatre principaux types de milieux géologiques susceptibles de renfermer des ressources en eau souterraine** (Figure 1) :

- les **formations alluviales**, associées :
 - au **fleuve** : les alluvions actuelles et anciennes,
 - à ses affluents : les alluvions des **criques**,
- les **roches de socle**, qui montrent, à proximité de la surface (premiers 20 à 50 m de profondeur) une frange altérée et qui sont saines en profondeur. L'interface entre la zone altérée (**altérites**) et le substratum rocheux présente fréquemment un faciès plus sableux (**altérites sableuses**). La partie supérieure du substratum rocheux est en général fissurée (**horizon fissuré-altéré**), sur plusieurs dizaines de mètres d'épaisseur. Sur le plan hydrogéologique, deux types d'objectifs peuvent donc être recherchés (Figure 1) :
 - l'ensemble que constituent les **altérites sableuses et l'horizon fissuré altéré**,
 - les **zones fracturées du substratum rocheux**.

Dans le cadre du projet, les travaux de recherche ont donc été orientés vers la caractérisation hydrogéologique de ces différents types de milieux.

D'une manière générale, les travaux de recherche ont consisté à acquérir des connaissances sur la structure et les modalités de fonctionnement de ces aquifères afin de **mettre au point des méthodologies adaptées à leur développement** (reconnaissance de la fracturation, méthode radon, géochimie, etc.). Ces travaux ont également conduit à l'**acquisition de données** (photo-interprétation, mesures de fracturation sur le terrain, connaissance de la qualité des eaux de surface et souterraines, etc.) qui permettront, lors des campagnes de prospection hydrogéologique opérationnelles à venir, par exemple, de réaliser des économies d'échelle, de disposer de référentiels permettant de mieux interpréter les nouvelles données qui seront acquises, etc..

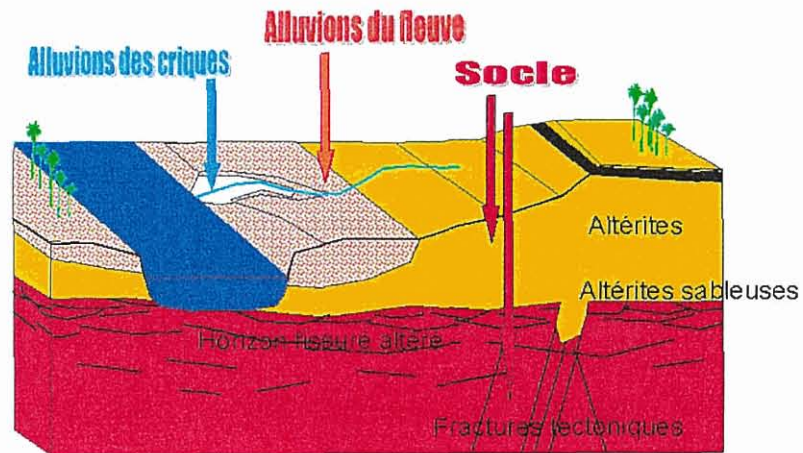


Fig. 1 - Typologie des aquifères existant dans le contexte des villages des fleuves

3. Connaissances acquises dans le cadre du projet. Données et méthodes

3.1. TYPOLOGIE DES DIFFERENTES RESSOURCES EN EAU SOUTERRAINE VALORISABLES DANS LE CONTEXTE DES VILLAGES DES FLEUVES

Les résultats obtenus dans le cadre du projet permettent de proposer une typologie des différents types de ressource en eau souterraine identifiés dans le contexte des villages des fleuves (Tableaux 1 et 2).

Alluvions		
Débit exploitable par forage – Population potentiellement desservie par forage	Points forts	Points faibles
Alluvions des criques < 1 m ³ /h < 50 habitants	- coût de forage limité (forage artisanal, coût réduit tant en réalisation qu'en amené – repli)	- distance au village (une crique n'est pas toujours disponible à proximité immédiate du village) - qualité des eaux souterraines (Fe, Mn, matière organique) - forte vulnérabilité : aux pollutions anthropiques et en période de crue du fleuve - ressource pouvant être limitée en période de basses eaux
Alluvions du fleuve < 1 m ³ /h < 50 habitants	- idem	- rareté des structures géologiques favorables (le fleuve est en général encaissé au sein de ses alluvions, ce qui fait que celles-ci sont rarement saturées en eau) - vulnérabilité modérée à forte (pollutions, inondations)
Critères de prospection hydrogéologique	- perméabilité des alluvions - épaisseur mouillée (en étiage) - vulnérabilité	

Tab. 1 - Typologie des différents types de ressource en eau souterraine valorisables dans le contexte des villages des fleuves. Alluvions

Les **formations alluviales** peuvent donc constituer une ressource pour les petits villages. Dans quelques cas exceptionnels (Camopi par exemple, avec 5 m³/h [Lachassagne *et al.*, 1995; Rampnoux and Laporte, 1996; Rampnoux *et al.*, 1996b]), des débits plus significatifs peuvent néanmoins être obtenus.

Cependant, cette ressource en eau des formations alluviales, proche de la surface, n'est pas pour autant plus facile à capter que des ressources « profondes ». Le succès (quantitatif et qualitatif) des ouvrages de captage est en effet conditionné à :

- une implantation rigoureuse, sur des structures hydrogéologiques favorables (formations perméables, non dénoyées en étiage), qu'il n'est pas forcément évident de trouver à proximité de chaque village. Une bonne implantation requiert des caractérisations fines, par photo-interprétation, reconnaissances géologiques de terrain, méthodes géophysiques et par sondages de reconnaissance par exemple,
- une exécution soignée et un équipement adéquat du forage d'exploitation afin de limiter au maximum sa vulnérabilité (vis à vis des pollutions superficielles et des eaux de surface, en période d'inondation en particulier) et de s'assurer qu'il fournisse une eau de qualité (absence de fines en particulier).

Socle		
Débit exploitable par forage – Population potentiellement desservie par forage	Points forts	Points faibles
Horizon fissuré altéré 2 – 4 m ³ /h 50 - 500 habitants	- faible vulnérabilité - proximité des lieux de consommation	- logistique de forage légère à mi-lourde (trilame, carottage) - possibilité de teneurs élevées en métaux (Fe, Mn, etc.)
Fractures 4 - > 8 m ³ /h > 500 habitants	- très faible vulnérabilité - proximité des lieux de consommation - qualité (minéralisation des eaux plus importante que celle du fleuve) - technique de forage efficace	- coût du forage (logistique lourde : marteau fond de trou) - possibilité de teneurs élevées en métaux (Fe, Mn, etc.)
Critères de prospection hydrogéologique	- nécessité d'une prospection hydrogéologique adaptée afin de limiter le taux d'échec des forages de reconnaissance, donc le coût du projet	

Tab. 2 – Typologie des différents types de ressource en eau souterraine valorisables dans le contexte des villages des fleuves. Socle

Le **socle** constitue une ressource qui, en cas de succès, peut être adaptée à des agglomérations de plus grande taille. Des débits « importants » peuvent même y être captés. Ont ainsi été obtenus, dans le cadre de projets opérationnels de recherche d'eau souterraine :

- deux forages à respectivement 8 et 9 m³/h (débit exploitable à long terme) à Grand Santi (migmatites) [Rampnoux and Lachassagne, 1996; Rampnoux and Laporte, 1997; Rampnoux *et al.*, 1997],
- deux forages à Loka (formations métamorphiques du Paramaca), dont l'un présente un débit exploitable de 15 m³/h [Gandolfi, 1998; Rampnoux *et al.*, 1996a],
- un forage présentant un débit au soufflage de 24 m³/h à Papaïchton, à confirmer par des pompages d'essai.

« Statistiquement », les roches métamorphiques de Guyane (métavolcanites, migmatites, etc.) semblent montrer des débits plus importants que les roches plutoniques (granites). Il s'agit d'une règle générale connue par ailleurs dans le monde.

Au sein du socle, le **risque d'échec** n'est cependant jamais nul. Il convient donc de toujours prévoir un nombre total de forages (de reconnaissance) plus important que le nombre de forages qui seront finalement équipés pour l'exploitation.

Par ailleurs, seule la réalisation de **pompages d'essai** dans les règles de l'art, et en particulier de longue durée (ou de simulations d'exploitation) est à même de permettre de définir le débit exploitable à long terme d'un forage. Il existe de très nombreux cas de forages présentant des débits importants à la foration (parfois plus de 20 m³/h), dont l'exploitabilité réelle est beaucoup plus faible en définitive (quelques m³/h seulement).

3.2. METHODOLOGIES ET TECHNIQUES POUR L'IMPLANTATION DES FORAGES D'EAU AU SEIN DES ROCHES DE SOCLE

Une **méthodologie complète, comprenant trois principales phases**, depuis l'échelle régionale jusqu'à celle du forage, peut être proposée pour l'implantation des forages d'eau, en roches de socle, dans le contexte des villages des fleuves. Comme souvent en hydrogéologie, cette méthodologie correspond à une approche cohérente de « changement d'échelle » qui met en œuvre des méthodes de plus en plus précises, mais également de plus en plus coûteuses (en terme de coût rapporté à la surface traitée), pour sélectionner des sites de prospection de taille décroissante au fur et à mesure de l'avancement d'un projet de recherche d'eau souterraine. Elle repose sur la synthèse de l'expérience acquise dans le cadre du projet. Cette approche comprend les principales étapes suivantes :

1. **sélection de sites de prospection, à l'échelle régionale.** Une méthodologie de **cartographie des potentialités en eau souterraine** a été développée dans le cadre d'autres projets de recherche du BRGM [Lachassagne *et al.*, 2001]. Cette méthodologie, basée sur la combinaison de critères purement hydrogéologiques (lithologie des formations composant le socle, épaisseur des altérites, qui assurent le stockage des eaux souterraines, densité de la fracturation tectonique, pentes, etc.), permet de **délimiter des zones de prospection favorables** (pour l'implantation de forages d'eau), **de quelques kilomètres carrés**, au sein de secteurs de plusieurs centaines voire milliers de kilomètres carrés. Dans le contexte des villages des fleuves, il n'apparaît pas indispensable de mettre en œuvre ce type de méthode. En

effet, ce sont principalement des critères de type socio-économique (proximité des lieux de consommation, les villages) qui vont conditionner la délimitation des sites devant faire l'objet de prospections hydrogéologiques de terrain ;

2. **sélection de sites de prospection**, à l'échelle de chaque village du fleuve. A la phase citée ci-dessus, il est donc préconisé de substituer, dans le contexte des villages des fleuves, une phase de reconnaissance des structures cassantes de type « fractures », qui permettra d'orienter préférentiellement les prospections hydrogéologiques vers les secteurs présentant potentiellement une densité la plus importante possible de fractures aux orientations favorables. Compte tenu des données acquises dans le cadre du projet (interprétation des images satellites et référentiel de mesures de terrain ; cf. §3.3.), cette phase pourra être menée depuis le bureau, sur les photographies aériennes de l'IGN (1/50.000 à 1/8.000, avec une préférence pour des échelles intermédiaires 1/20.000 – 1/30.000), sans nécessité absolue, à ce stade, de reconnaissance de terrain.

A cette analyse de la fracturation devra bien entendu être couplée une caractérisation de la vulnérabilité des différentes zones de prospection de terrain ainsi identifiées, vis à vis des pollutions d'origine anthropique actuelles ou à venir (perspectives de développement prévues dans le cadre de la carte communale ou du POS).

Dans le cadre de cette phase, les perspectives offertes par les nouvelles techniques de cartographie des différents faciès d'altération des roches de socle (cf. §4.2.1.) pourraient également être valorisés pour la recherche de zones favorables tant du point de vue quantitatif (localisation des zones présentant un horizon fissuré – altéré bien développé) que du point de vue qualitatif (vulnérabilité des aquifères) ;

3. **prospection radon**, à l'échelle des zones favorables ainsi délimitées de quelques kilomètres carrés. Les mesures de radon (cf. §3.2.2.1.) permettent de limiter les secteurs à prospector ultérieurement à des zones (anomalies radon) dont la taille n'excède pas quelques centaines de mètres de long et quelques dizaines de mètres de large. Cette étape permet de prospector rapidement et aisément (sans mise en œuvre de dispositif lourd, de layonnage, etc.) des secteurs relativement vastes ;
4. **prospection géophysique**, selon la méthodologie proposée en §3.3.2.2., pour implanter les forages avec une précision de quelques mètres (5 à 10 m).

3.2.1. Géologie – Fracturation - Contraintes

La connaissance de la structure géologique des aquifères (extension/épaisseur des aquifères, type de perméabilité – d'interstices, de fractures, de fissures, etc. -, propriétés des fractures – orientation, ouverture, etc. -, etc.) est de première importance. Dans le contexte des villages des fleuves, cette connaissance concerne le socle de manière évidente (réseaux de fractures, etc.), mais aussi les formations alluviales dont la géométrie et la nature dépendent des conditions géologiques (par exemple accumulation

Le projet « Villages des Fleuves » a permis de faire progresser l'état des connaissances en Guyane, selon trois principales orientations :

- l'**identification des réseaux de fractures** : de l'échelle cartographique (images satellite ou aériennes) à celle du terrain (observations sur affleurements) : orientations, type de fractures, etc... *L'histoire géologique de la Guyane est très ancienne (plus de 2500 millions d'années). La région a donc été affectée par de nombreuses phases tectoniques qui ont conduit à la création d'un dense réseau de fractures [Blès et al., 1999],*
- la **connaissance de l'histoire géologique récente (Quaternaire) de la Guyane**, dans le cadre d'un doctorat financé par le BRGM [Palvadeau, 1999] et d'un travail de synthèse mené dans le cadre du projet [Blès et al., 1999]. *Cette histoire récente ainsi que la structure géologique régionale actuelle, conditionnent les états de contraintes au sein du sous-sol de la Guyane (orientation des contraintes en compression, en extension, etc.).*
- la **caractérisation des propriétés des fractures** : tendance à l'ouverture, à la fermeture, etc. qui peut conditionner leurs propriétés hydrogéologiques (perméabilité des fractures). *Les fractures, même anciennes, pourront voir leurs propriétés varier en fonction de leur orientation relative par rapport à celle des contraintes actuelles (Figure 2).*

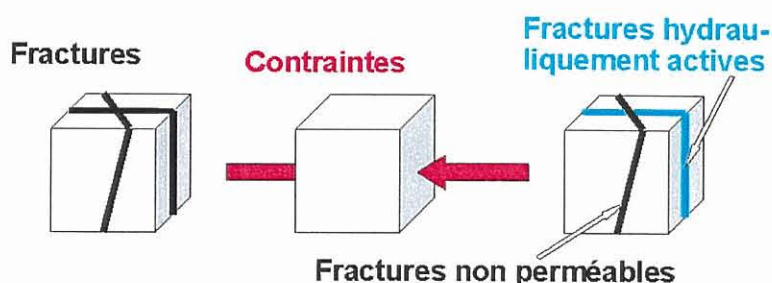


Fig. 2– Principe de la variabilité des propriétés des fractures en fonction de leur orientation par rapport aux contraintes actuelles

3.2.1.1. Identification des réseaux de fractures

Les réseaux de fractures ont été caractérisés à différentes échelles ([Lachassagne *et al.*, 1996], par exemple), celles :

- de la carte géologique (1/500.000 à 1/100.000°),
- des données aéromagnétiques (1/500.000°),
- des images radar ERS1 (1/250.000°),
- des photographies aériennes de l'IGN (1/50.000 à 1/20.000°),
- de l'affleurement, sur le terrain.

- de l’affleurement, sur le terrain.

Les données obtenues aux **petites** (carte géologique, images satellites, aéromagnétisme) et aux **grandes échelles** (observations sur affleurements) constituent un **référentiel à disposition des géologues et hydrogéologues** :

- aux **petites échelles**, les images satellite ont été interprétées sur la quasi intégralité de l’Oyapok, [Lachassagne *et al.*, 1996] et du Maroni [Lachassagne *et al.*, 1997]. Par ailleurs, les informations recueillies dans le cadre du lever aéromagnétique et spectrométrique sont disponibles à l’échelle de l’ensemble de la Guyane,
- aux **grandes échelles**, des observations sur affleurements ont été effectuées sur l’ensemble du cours habité du Maroni et de ses principaux affluents (Figure 3, [Lachassagne *et al.*, 1997]). Ces données permettent, pour l’ensemble du Maroni, la sélection de sites de prospection de terrain, sans nécessité, à ce stade, de reconnaissance de terrain (cf. §3.2.). Elles permettront donc des économies significatives lors des futures campagnes opérationnelles de recherche d’eau souterraine.

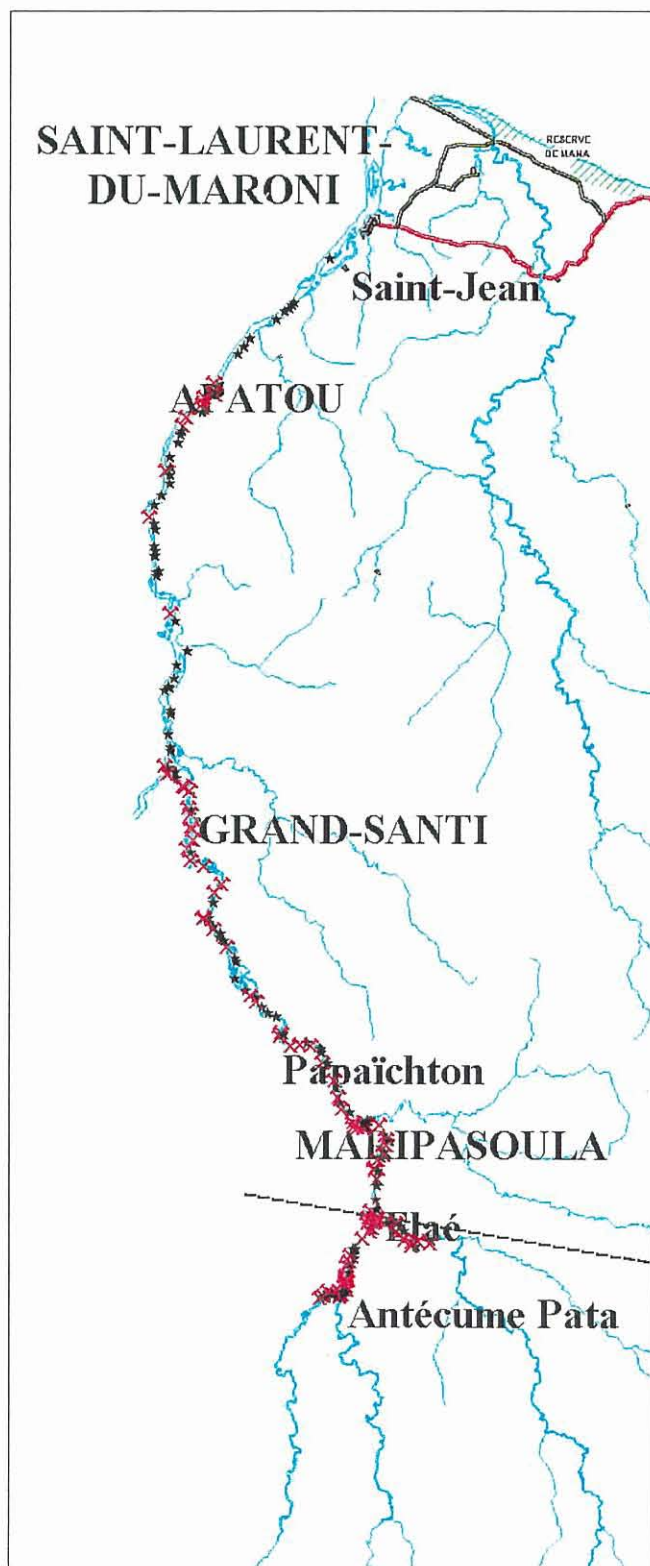


Fig. 3 – Localisation des stations de mesures et observations de la fracturation sur affleurements

Aux **échelles intermédiaires**, il est préconisé d'utiliser les photographies aériennes (1/50.000 à 1/20.000^e de préférence) et de mener la photointerprétation sur des zones couvrant un rayon de 5 km environ autour des grands linéaments mis en évidence aux petites échelles.

Sur les photographies aériennes, les **linéaments les plus favorables** sont les suivants (dans un ordre d'intérêt décroissant) :

- 1) **éléments rectilignes** apparaissant **en creux** et **éléments rectilignes du réseau de drainage**, qui représentent, pour l'essentiel, des structures de type « faille »,
- 2) éléments rectilignes **en relief**, qui correspondent en général à des dykes de dolérites,
- 3) les **alignements de végétation** peuvent correspondre aussi bien à des failles qu'à des traces d'activité humaine.

Enfin, les éléments rectilignes dus à des ruptures de pente constituent des **artefacts**. Ils marquent fréquemment la limite des formations géologiques.

3.2.1.2. Histoire géologique récente de la Guyane et contraintes actuelles.

Hiérarchisation de la fracturation

A l'échelle de la *marge passive*, la Guyane est soumise à un régime de contraintes de **type compressif, orienté NE-SW**. Sur cette base, parmi les réseaux de fractures identifiés, les structures suivantes sont les plus favorables (par ordre décroissant) :

- **failles Nord-Sud**, qui doivent avoir tendance à jouer en décrochement dextre,
- **failles ENE-WSW à EW**, qui doivent jouer en décrochement sénestre.

A l'échelle des *environs immédiats de la Guyane*, d'autres processus doivent être pris en considération. L'accumulation de sédiments au débouché de l'Amazone entraîne en effet un ploiement du socle sous-jacent (enfouissement de plus de 2000 mètres) qui se traduit par des réajustements verticaux atteignant plusieurs dizaines de mètres en périphérie (Figure 4). Ainsi, la Guyane est très probablement affectée par ces réajustements, ce qui peut expliquer :

- d'une part, la géométrie du réseau hydrographique (positionnement des lignes de partage des eaux),
- et d'autre part, la « surrection » de la Guyane qui se traduit, par exemple, par un enfouissement des fleuves au sein de leurs alluvions et, par conséquent, peut expliquer *la faiblesse de la ressource en eau souterraine de ces formations*.

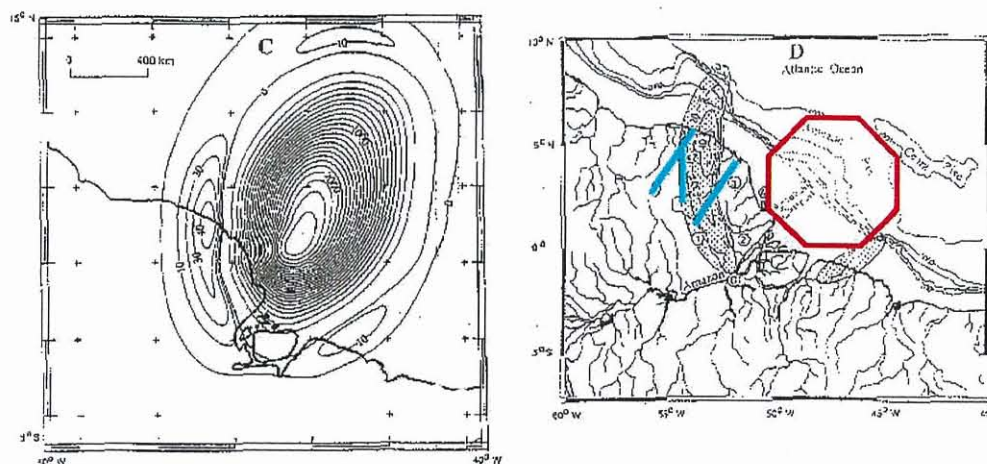


Fig. 4 – A gauche : courbes, en mètres, de la déformation du substratum du cône de l'Amazone et de ses environs. A droite : relation du bourrelet périphérique avec le réseau hydrographique (en rouge, cône de l'Amazone ; en bleu, Maroni et Oyapock).

Ceci conduit à **préciser le schéma des contraintes tectoniques actuelles** en Guyane (Figure 5) :

- la partie centrale de la Guyane subit un bombement ; dans ce secteur, les fractures N-S doivent présenter une tendance à l'ouverture,
- à l'opposé, la périphérie de cette zone bombée doit comporter une compression E-W ; les fractures E-W doivent donc y présenter une tendance à l'ouverture.

Par ailleurs, à l'échelle locale, les reliefs dont la taille relative dépasse 100 m de dénivelé génèrent eux aussi des contraintes dans leur environnement. Les fractures perpendiculaires à ces reliefs sont en général ouvertes.

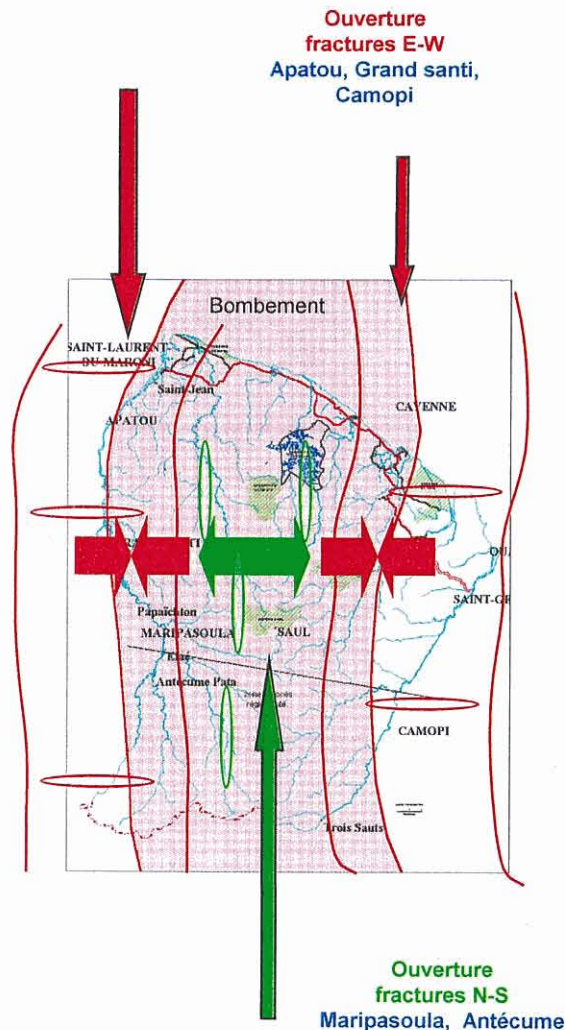


Fig. 5 – Etat des contraintes en Guyane, compte tenu de la présence du bourrelet associé au cône de l'Amazone

3.2.2. Techniques de terrain pour l'implantation de forages

3.2.2.1. Méthode radon

La méthode radon a été mise en œuvre pour la première fois en Guyane dans le cadre des projets du Contrat de Plan Etat Région, dont le projet Villages des Fleuves.

L'utilisation des mesures de la teneur naturelle en radon au sein des sols, ou émanométrie radon, pour l'implantation des forages d'eau au sein des aquifères à perméabilité de fractures a été développée au cours des 15 dernières années [David, 1992; Guérin, 1991; Pointet, 1989]. Cette méthodologie, mise au point à l'origine pour la prospection de l'uranium, a été appliquée dans un premier temps en France métropolitaine, initialement pour la prospection des eaux thermales et minérales, puis pour les « eaux froides ».

L'approche mise au point et utilisée de manière opérationnelle au BRGM consiste à prélever des échantillons des gaz du sol selon un maillage régulier. Le prélèvement est réalisé à une profondeur d'environ 50 cm, au moyen d'un tube métallique (« canne de prélèvement ») enfoncé manuellement dans le sol. L'échantillon, prélevé au moyen d'une pompe à vide manuelle, est récolté au sein d'une fiole scintillante (tapissée de sulfure de zinc dopé à l'argent qui transforme le rayonnement alpha en photon). La concentration en radon des échantillons prélevés est mesurée à la fin de chaque journée de terrain, au moyen d'un photomultiplicateur. Une mesure de concentration se résume à un comptage des particules alpha d'un certain volume de gaz du sol. Ramenée à un volume unitaire, elle s'exprime en Bq/m^3 (ou pCi/l ; $1 \text{ pCi/l} = 37 \text{ Bq/m}^3$).

Les prélèvements sont réalisés selon un maillage carré, de 75 à 100 m de côté, qui couvre, de la manière la plus exhaustive possible, la zone à prospector. Le maillage doit être aussi régulier que possible afin de permettre des interpolations non biaisées et, par voie de conséquence, le dessin de cartes fiables des teneurs en radon au sein du sol, en particulier du point de vue de l'orientation des structures anormales ainsi mises en évidence. Le contenu des fioles est analysé à la fin de chaque journée de prélèvement. Cela permet d'établir, chaque jour de prospection, une cartographie préliminaire des teneurs en radon. Sur la base de celle-ci, le maillage de prélèvement peut être densifié, les jours suivants, au droit des anomalies mises en évidence. Des stations de référence, choisies aussi bien au sein de zones anormales que dans des secteurs sans signal significatif, sont échantillonnées quotidiennement afin de s'assurer de la stabilité temporelle du signal radon. Après interpolation et dessin d'isovaleurs, des cartes d'anomalies radon sont produites (Figure 6). Afin d'orienter la cartographie et l'interprétation, trois catégories de teneurs en radon sont fréquemment individualisées :

- les stations dont les teneurs appartiennent au décile supérieur (les 10% des valeurs les plus fortes) sont considérées comme anormales. Elles forment les anomalies radon,
- la moyenne des 90 autres pour-cent permet de distinguer les stations où les teneurs sont :
 - supérieures à cette moyenne, qui forment la zone indéterminée,
 - inférieures, qui constituent des zones de bruit de fond.

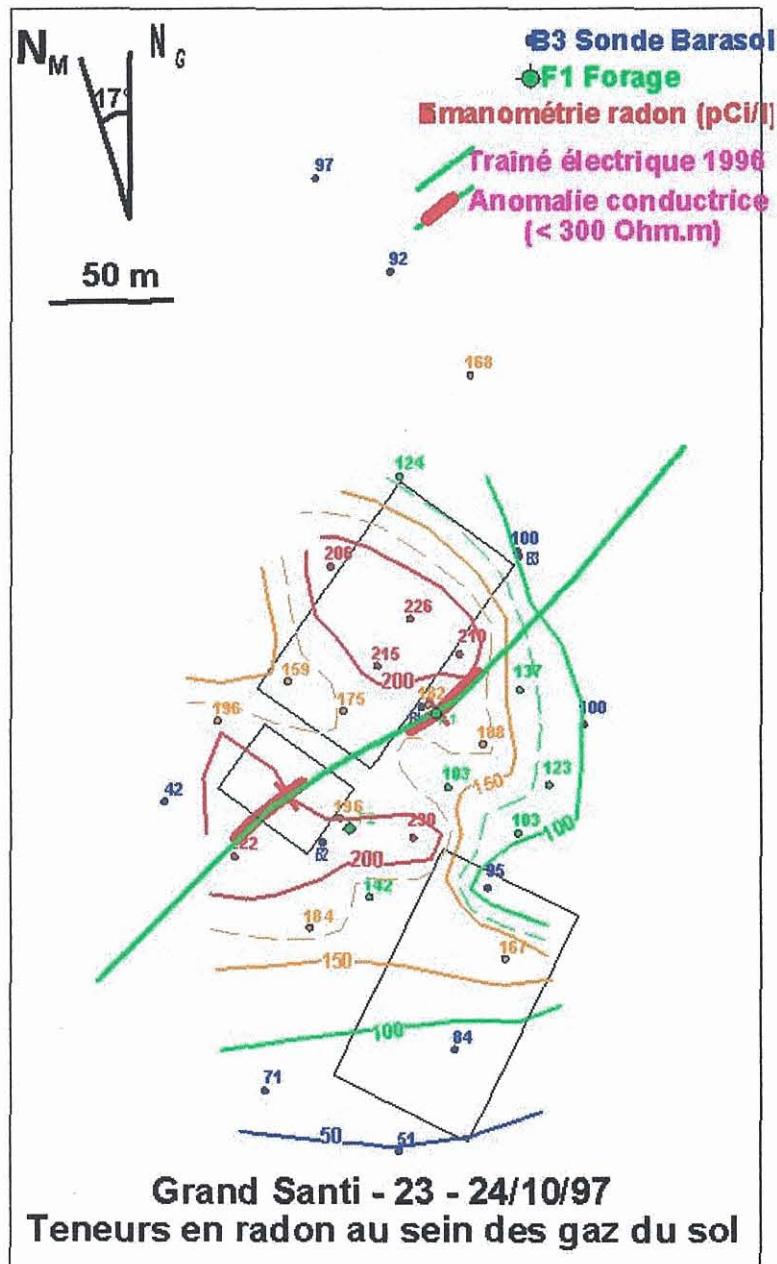


Fig. 6 – Exemple d’une anomalie radon. Site de Grand Santi

Les résultats favorables obtenus en Guyane au cours des prospections hydrogéologiques expérimentales ont conduit à s’interroger sur l’origine des anomalies « radon » dans un contexte tel que celui de la Guyane où le substratum rocheux fracturé est recouvert par une couverture peu perméable d’altérites de plusieurs dizaines de mètres d’épaisseur. En effet, comment expliquer la présence, au sein du sol (à quelques dizaines de centimètres de profondeur), de radon d’origine profonde marquant l’aplomb de fractures du substratum, situées, elles, plusieurs dizaines de mètres plus bas, au sein de la partie non altérée de ce substratum ? Les profils d’altération, constitués majoritairement

d'argiles, sont fréquemment épais de plusieurs dizaines de mètres. Il semble peu envisageable que le radon puisse s'y déplacer verticalement à des vitesses suffisantes pour arriver en surface, au droit de ces fractures, avant d'avoir totalement disparu. Par ailleurs, l'hypothèse selon laquelle les structures perméables de type fractures pourraient être préservées au sein des profils d'altération ne tient pas, tant à l'observation des affleurements (qui montrent une grande homogénéité et l'absence de structures héritées, au moins au sein des allotérites qui constituent la partie supérieure des profils), que du fait même des processus de genèse de ces profils qui entraînent un fauchage apparent des structures.

Des mesures ont donc été mises en œuvre sur le site de Grand Santi. Des sondes ont été mises en place au sein du sol afin de mesurer en continu (au droit d'anomalies radon et en dehors de celles-ci) les teneurs en radon au sein du sol, la température, la pression atmosphérique, les précipitations, etc., sur une longue période (près d'une année, avec un pas d'échantillonnage inférieur à l'heure). L'interprétation de ces données, a permis d'**expliquer l'origine des anomalies radon dans un tel contexte et de valider leur intérêt du point de vue hydrogéologique** [Lachassagne and Pinault, 2001] en Annexe 1). L'interprétation conjointe des chroniques de radon et de pression atmosphérique, au moyen de techniques de traitement du signal, permet en effet de discerner les processus de diffusion de ceux associés au transport par advection.

On peut ainsi montrer que (Figure 7) :

- d'une manière générale, les teneurs en radon au sein du sol sont régies par les **processus de diffusion** (partie gauche de la figure). Le radon qui y est présent est produit localement et se propage vers l'atmosphère du fait de la plus faible concentration qui règne au sein de celle-ci. Si les mesures de radon sont effectuées à une profondeur constante sous la surface du sol, elles intersectent toutes la même isovaleur de teneur en radon (celles-ci étant parallèles à la surface du sol) et montrent donc des valeurs similaires les unes aux autres. Les éventuelles variations latérales observées sont liées à des changements de la composition minéralogique du sol (plus ou moins grande richesse en éléments parents du radon) ou de sa structure (perméabilité), etc.. Elles sont progressives et, en général, d'une amplitude modérée,
- à l'aplomb des fractures perméables du substratum existent des flux continus de gaz d'origine profonde (CO₂, hélium, méthane, azote, radon, etc.), qui remontent vers la surface sous l'effet d'un gradient de pression (**advection**). Au sein de la couverture d'altération, la perméabilité des altérites est trop faible pour que le radon d'origine profonde se propage jusqu'en surface avant d'avoir complètement disparu du fait de sa décroissance radioactive. Par contre, les autres gaz qui l'accompagnent, non radioactifs, atteignent la surface (cf. partie droite de la figure). Ce flux advectif, même très faible, y déforme les isovaleurs du profil de diffusion du *radon du sol*, en repoussant celles-ci vers le haut. Des prélèvements réalisés à une profondeur constante permettent ainsi de mettre en évidence une « **anomalie radon** ». En fait, celle-ci ne traduit pas la présence de radon d'origine profonde, mais seulement une zone marquée par des processus d'advection. **Le radon mesuré provient donc du sol (au sens pédologique) et joue uniquement un rôle de traceur des autres gaz qui, eux, sont d'origine profonde.** La recherche des anomalies radon consiste donc à révéler, de manière indirecte au moyen du radon, élément beaucoup plus facile à

mesurer que les autres gaz, même à de très faibles teneurs, des zones où se produisent ces processus d'advection. Il est donc très important, lors d'une prospection radon, de bien veiller, entre autres, à réaliser les prélèvements à une profondeur « constante » sous la surface du sol.

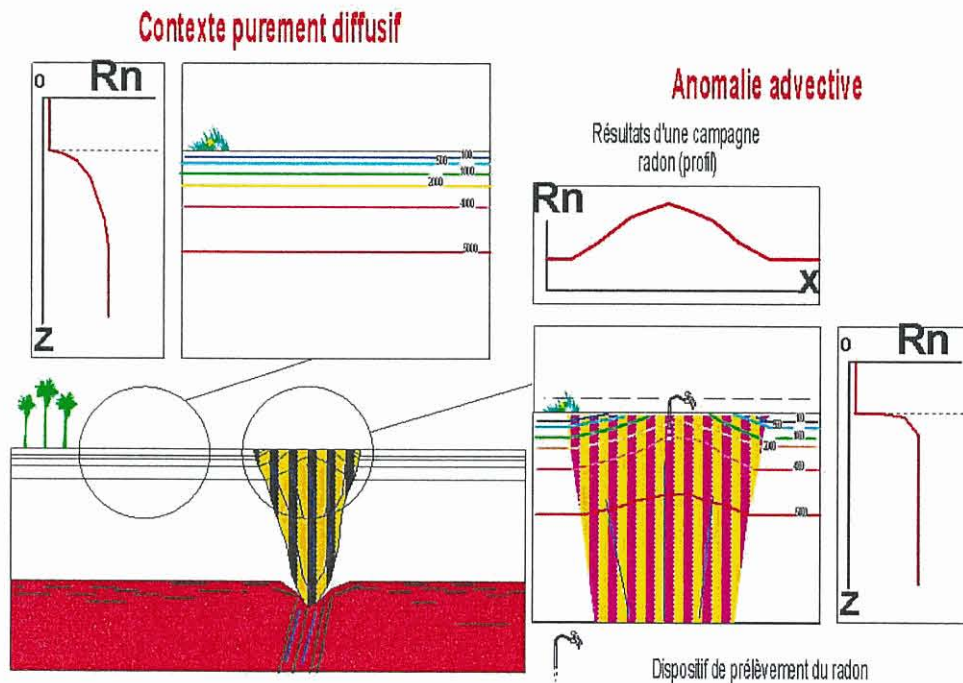


Fig. 7 – Explication de l'origine des anomalies radon

Ces résultats permettent de valider l'utilisation de la méthode radon en hydrogéologie, même (et peut être surtout) dans un contexte de sous-sol peu perméable, ce qui est très fréquemment le cas en contexte de socle. Accessoirement, cette expérimentation confirme la présence de flux de gaz d'origine profonde, même au sein des zones stables, non marquées par du thermalisme ou du volcanisme.

La méthode radon est très bien adaptée aux prospections de terrain, même en site isolé, ce qui est un atout dans le contexte des villages des fleuves :

- le matériel d'échantillonnage est léger et peu encombrant ; il peut facilement être transporté avec un technicien et ses bagages, en voiture, avion taxi, pirogue,...,
- les prélèvements peuvent être réalisés par un technicien expérimenté et un manoeuvre, ce dernier pouvant être recruté sur le lieu de prospection. Selon les conditions de terrain, 20 à 40 échantillons peuvent ainsi être collectés et analysés quotidiennement. Ceci conduit à une durée moyenne de prospection de 4 à 5 jours par village,

- le prélèvement des échantillons ne requiert pas de layonnage préalable puisqu'il suffit de permettre le passage des deux prospecteurs ; il n'y a en effet pas de nécessité, comme en géophysique par exemple, de tirer des lignes.

Néanmoins, la mise en œuvre de cette méthode présente **certaines limites** :

- elle requiert l'existence de sols d'une épaisseur suffisante (au moins 50 cm) ; ceci est très fréquemment le cas en Guyane,
- les prélèvements peuvent être difficiles, voire impossibles, dans le cas de sols peu perméables ou proches de la saturation en eau (les deux allant souvent de paire). Les mesures sont donc rarement réalisables au sein des zones humides,
- la présence de minéralisations uranifères en subsurface peut créer des artefacts. Néanmoins, il est en général assez aisé, avec un peu d'expérience, de les distinguer des anomalies d'origine advective. Les premières présentent en général une forte intensité, une plus faible taille, et une structuration moins évidente,
- l'échantillonnage peut être perturbé par les variations climatiques : fluctuations de la pression atmosphérique, mais aussi et surtout variations brutales de la teneur en eau des sols, sous l'effet des pluies. Il est donc recommandé de réaliser les prélèvements en dehors des périodes de fortes précipitations, donc de préférence en saison sèche.

3.2.2.2. Géophysique

Les travaux de prospection géophysique mis en œuvre dans le cadre du projet ont montré l'intérêt des méthodes électriques pour l'implantation des forages d'eau dans le contexte des villages des fleuves.

Différentes méthodes complémentaires, électriques ou électromagnétiques, sont classiquement appliquées pour l'implantation des forages :

- la *méthode du rectangle électrique* permet de cartographier, pour une profondeur d'investigation choisie en fonction de la longueur du dispositif mis en œuvre, les variations de résistivité apparente, en plan (X, Y, à une profondeur donnée, Z). La *méthode du profil électrique* permet de disposer du même type d'information, mais seulement le long d'un profil (X, à une profondeur donnée Z),
- la *méthode électromagnétique EM34* fournit des informations similaires, pour une profondeur d'investigation limitée (quelques dizaines de mètres tout au plus). Le dispositif de mesure est plus rapide à mettre en œuvre que celui de la méthode du rectangle électrique,
- la *méthode du sondage électrique Schlumberger* permet, sur la base de certaines hypothèses (tabularité en particulier, c'est à dire que l'on considère que le sous-sol est constitué de couches horizontales), de disposer d'une information sur la nature géoélectrique des terrains à la verticale du point où est réalisé le sondage électrique (Z),
- les *panneaux de résistivité électrique* permettent de disposer d'une image de la résistivité électrique des terrain selon une coupe verticale (X, Z).

Dans le cadre du projet villages des fleuves, ce sont principalement des sondages électriques ainsi que des profils ou la méthode rectangle qui ont été mis en œuvre.

D'un point de vue méthodologique, il apparaît que :

- la **méthode du sondage électrique Schlumberger** est applicable en général dans le contexte des villages des fleuves, les hypothèses de tabularité étant en général vérifiées. Elle peut permettre de dimensionner la longueur d'un dispositif rectangle afin que sa profondeur d'investigation permette de repérer, au sein du substratum sain résistant, les zones plus conductrices que peuvent constituer des fractures. Dans le cas où ces hypothèses de tabularité ne seraient pas respectées (du fait de la forte densité et de l'enracinement de fractures argilisées par exemples), des panneaux électriques pourraient apporter le même type d'information, avec un beaucoup plus faible risque d'artefact,
- la **méthode du rectangle électrique** convient bien si la surface à investiguer est en accord avec la profondeur d'investigation (les deux dépendant de la longueur du dispositif). Elle n'est donc plus adaptée si la zone à investiguer est grande par rapport à la dimension du rectangle. La détermination précise de la profondeur d'investigation des cartes rectangle est néanmoins difficile (elle varie d'un point à un autre de la carte),
- la **méthode électromagnétique EM34** se positionne, du point de vue des surfaces qu'il est possible de couvrir, à une échelle intermédiaire entre la prospection radon et les approches électriques. Elle permet ainsi, à coût égal, de prospector des zones plus vastes que la méthode rectangle avec, bien entendu, une moindre précision et une plus faible profondeur d'investigation potentielle. L'EM34 est bien adapté pour déterminer l'intérêt ou non de réaliser des mesures électriques (lorsque la prospection radon, par exemple, ne donne pas de résultats déterminants) et, le cas échéant, pour choisir les sites où ces prospections électriques seront réalisées, ainsi que l'orientation du dispositif de mesure. Sa profondeur d'investigation réduite (quelques dizaines de mètres) limite son application,
- les **panneaux de résistivité électrique** sont plus lourds à réaliser que l'EM34. Ils permettent par contre de choisir la profondeur d'investigation (longueur du dispositif) de la méthode rectangle à mettre en œuvre ultérieurement ainsi et surtout que de préciser la profondeur des cibles à atteindre en forage. Cette information est particulièrement importante sur des structures apparemment inclinées en cartographie rectangle.

En résumé, on privilégiera donc, pour une implantation précise des forages de reconnaissance (5 à 10 m), les méthodes ci-dessous, dans l'ordre suivant de mise en œuvre :

1. l'EM34, facultatif, afin de préciser, si nécessaire, les informations tirées de la campagne de prospection radon,
2. plusieurs sondages électriques ou quelques panneaux de résistivité électrique, afin de déterminer la profondeur d'investigation optimale du dispositif rectangle,

3. le *rectangle électrique*, afin de disposer d'une vision cartographique des anomalies de résistivité,
4. à nouveau quelques *panneaux de résistivité*, le long d'un profil particulièrement intéressant où l'on prévoit d'implanter le forage (recoupant les anomalies les plus significatives) pour préciser, dans la troisième dimension, la structure géoélectrique du sous-sol. Les panneaux seront particulièrement intéressants, à ce stade, sur des structures fracturées inclinées.

3.3. HYDROGEOCHIMIE

Le projet villages des fleuves a été mis à profit pour constituer un **référentiel hydrogéochimique et isotopique** caractérisant les signatures des différents compartiments du cycle de l'eau en Guyane (Figure 8) :

- eaux de pluie,
- eaux de surface (fleuves et criques),
- eaux souterraines superficielles (alluvions, altérites)
- eaux souterraines profondes (socle fracturé), etc.,

ainsi que les variations spatiales de ces signatures, en fonction des différents types de roches qui composent le sous-sol de la Guyane. Les premières interprétations de ces données ont permis de préciser le fonctionnement des aquifères et leurs relations avec les eaux de surface, en conditions non influencées (hors de toute exploitation par pompage).

Les mesures suivantes ont été réalisées :

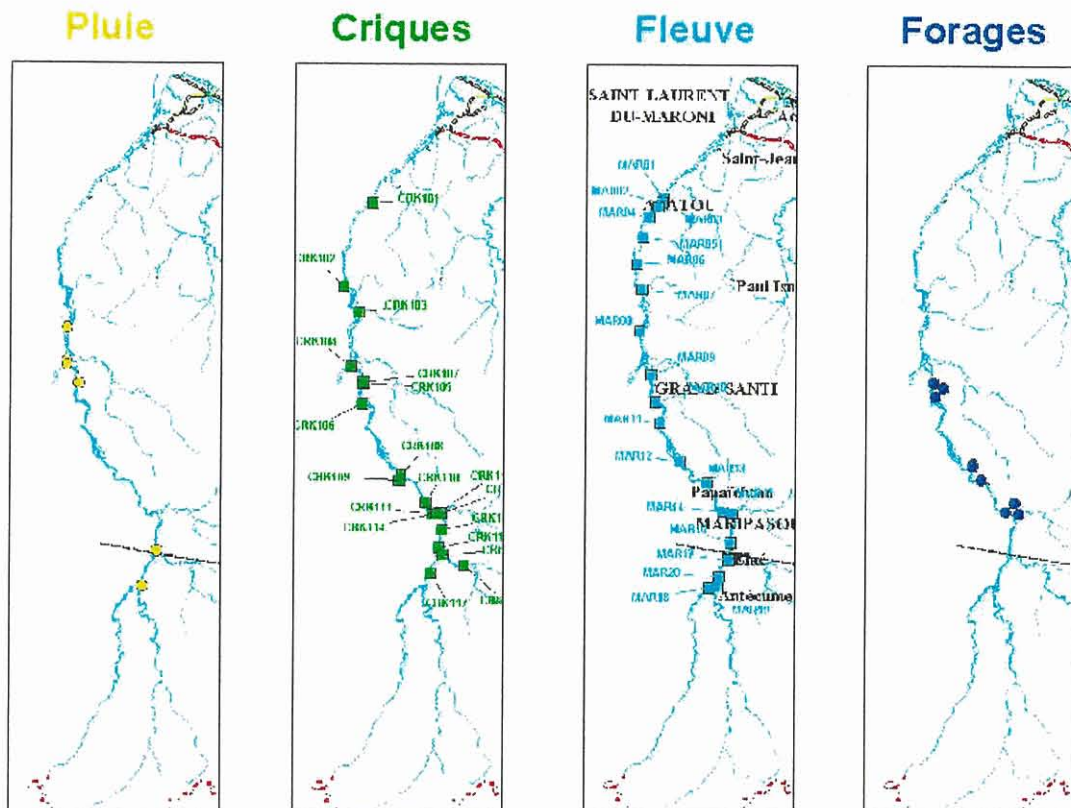
- sur le terrain :
 - température, conductivité électrique, pH, Eh, Matières en suspension,
 - équilibre calco-carbonique (HCO_3),
- au laboratoire :
 - éléments majeurs :
 - cations : Ca, Na, Mg, K, etc.,
 - anions : Cl, SO_4 , NO_3 , Sr, etc.
 - ce sont des indicateurs des apports atmosphériques, des interactions eau/roche, des pollutions anthropiques, etc..*
 - isotopes :
 - du strontium ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$), *indicateur des interactions eau-roche et de la nature des formations aquifères,*
 - de la molécule d'eau (^2H , ^{18}O), *indicateur des processus d'évaporation, de concentration, etc..*

Il a également permis de **préciser les modalités de fonctionnement des aquifères de socle en contexte des fleuves**. Les premiers résultats disponibles sur les eaux souterraines (forages de Grand Santi, mais aussi des rives de la rivière de Cayenne dans le secteur de Montsinnery) suggèrent ainsi [Négrel, 2000; Négrel and Lachassagne, 2001; Négrel and Pételet-Giraud, 2001] :

- **en condition d'écoulement naturel** (hors exploitation de forages) :
 - les eaux souterraines prélevées à quelques dizaines de mètres de distance du fleuve ne montrent aucune signature typique des eaux du fleuve. Les écoulements doivent donc se faire majoritairement des reliefs vers celui-ci,
 - elles montrent par ailleurs de fortes interactions eau-roche, qui les distinguent très nettement des eaux des criques ou même des altérites.

Ces éléments militent :

1. en faveur d'une faible vulnérabilité de cette ressource en eau souterraine vis à vis des pollutions superficielles, qu'elles proviennent de la surface du sol, des criques avoisinantes ou du fleuve,
 2. mais également d'une recharge naturelle limitée des aquifères, au moins en conditions d'écoulement non influencées,
- **en conditions influencées** (par l'exploitation de forages) : les premiers résultats obtenus ne montrent qu'une lente variation de la qualité des eaux souterraines, qui évolue, au moins dans un premier temps, plus dans le sens de la contribution d'eaux profondes que d'une recharge par les altérites. Ces premiers éléments, à confirmer par un suivi de longue durée sur plusieurs sites confirment la faible vulnérabilité de la ressource vis à vis des eaux de surface.



+ site de Camopi (forage, rivière et fleuve)

Fig. 8 – Localisation des sites où ont été réalisés des prélèvements pour analyses géochimiques et isotopiques

Plus en détail, la **première partie du travail** [Négre, 2000], mise en œuvre au début du programme de recherche, à l'époque où peu de points d'accès à l'eau souterraine étaient disponibles (absence quasi totale de forages), a concerné **le fleuve Maroni et ses affluents**, en période de basses eaux, pendant laquelle la signature des eaux souterraines est susceptible d'être la plus significative. Menée en octobre, cette étude est basée sur l'application des éléments majeurs (Cl, SO₄, NO₃, HCO₃, Ca, Na, Mg, K) et traces (Rb et Sr), les isotopes stables de l'eau (¹⁸O et ²H) et les isotopes du strontium (⁸⁷Sr/⁸⁶Sr).

Les objectifs de cette étude sont de (i) caractériser les apports atmosphériques sur le bassin versant pour confirmer les travaux menés près de la côte à Cayenne en 1995 [Négre *et al.*, 1997], (ii) caractériser à la fois les compositions chimiques et isotopiques du Maroni et de ses affluents pour produire un référentiel de la qualité des eaux superficielles, (iii) caractériser, au travers des petits tributaires, la composition chimique et isotopique des interactions eau-roche, et (iv) produire une première série d'informations chimiques et isotopiques sur les eaux souterraines.

Toutes les compositions chimiques des eaux de surface du bassin versant du Maroni sont en accord avec le champ "*precipitation dominance*" [Gibbs, 1970] comme avec celles données pour les rivières du Guyana Shield, de l'Orénoque et de l'Amazonie. Les eaux souterraines collectées dans les puits peu profonds ressemblent largement aux eaux de surface tandis que les eaux souterraines plus profondes, collectées par forages, reflètent une augmentation de l'interaction eau-roche.

Les isotopes stables de l'eau des rivières et eaux souterraines du bassin du Maroni ont été enrichis par évaporation et peuvent être utilisés le long du cours du fleuve et de ses affluents comme traceurs des mélanges d'eau.

Les corrections des apports de pluie, en utilisant le chlorure comme élément de référence, ont été calculées pour tous les éléments chimiques et le rapport ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr. A l'exception de Na, qui provient à part égale des apports de pluie et de l'altération des roches, et de K, soumis à une correction due à l'influence de la végétation, Ca, Mg, Sr (85-90%) et HCO₃ (100%) proviennent de l'altération des roches.

Dans un diagramme entre les rapports ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr en fonction de 1/Sr sont représentés les affluents ainsi que les points du cours majeur du Maroni et deux eaux souterraines. A partir des données des affluents, deux alignements linéaires peuvent être mis en évidence qui décrivent un modèle de mélange simple entre trois composants. Pour chacun des composants, les rapports ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr ainsi que les teneurs (via le rapport 1/Sr) peuvent être déterminés.

1- Le premier composant est caractérisé par un rapport ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr bas, de l'ordre de 0.704, et une teneur en Sr relativement forte (1/Sr # 2.5). Ce composant est commun aux deux lignes de mélange et la crique Maripasoula en est le meilleur représentant.

2- Le deuxième composant présente un rapport ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr très élevé (# 0.750) et une teneur en Sr moindre (1/Sr #9). Ce composant est bien représenté par la Tapanahoni.

3- Le troisième composant est caractérisé par un rapport ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr intermédiaire (# 0.710) et une teneur faible (1/Sr > 10). Pour les affluents, ce composant est représenté par la crique Grand Santi (MAR107).

Le Maroni est relativement peu dispersé et se situe sur la droite de mélange entre les deux composants extrêmes (crique Maripasoula et Tapanahoni).

Il est possible de raccorder ces trois composants avec la nature lithologique des terrains drainés. Ainsi, le premier composant correspond à la série P (**Paramaca inférieur** : *schistes, quartzites, métavolcanites*) et présente des caractéristiques propres au drainage de roches volcaniques. Le deuxième composant est difficilement appréhensible au travers de la géologie du bassin de la Tapanahoni. Cependant, sur la même droite de mélange, se situe la crique Sabakou qui draine la série S (**Paramaca supérieur** : *schistes, micashistes, grès*). Il est raisonnable d'affecter à ce composant les caractéristiques de la série S. Le troisième composant correspond lui au drainage des séries $\delta\gamma$ (plutonisme "Guyanais" : *orthogneiss/granodiorites/migmatites*).

Le triangle de mélange ainsi défini correspond aux plus grandes lithologies identifiables sur le bassin du Maroni avec les schistes pour le composant le plus radiogénique (Tapanahoni), les métavolcanites pour le composant le moins radiogénique (crique Maripasoula) et les séries granitiques pour le troisième composant. Un seul point draine les séries $\zeta\gamma$ (plutonisme "Guyanais" : *granitoïdes*) et $\zeta\theta$ (plutonisme gabbro-dioritique : *gabbro-diorite*) et se positionne sur la droite de mélange entre les deuxièmes et troisièmes composants.

Les eaux souterraines présentent des charges dissoutes (TDS, mg/l) proches de celles des eaux de surface avec des compositions chimiques très différentes. Représentées dans un schéma $\delta^{18}\text{O}$ en fonction de $\delta^2\text{H}$, les eaux souterraines se positionnent dans la corrélation globale obtenue pour le bassin du Maroni et démontrent une légère évolution par rapport à la droite locale.

La seconde partie du travail [Négrel and Pételet-Giraud, 2001] a concerné plus particulièrement les eaux souterraines, dans le cadre plus étendu de l'ensemble de la Guyane. L'accent a été mis sur la caractérisation géochimique de l'environnement naturel des eaux, en particulier grâce à l'apport des systématiques isotopiques du strontium et du néodyme.

La chimie des eaux

Les eaux souterraines sont incluses dans les quatre grandes classes hydrochimiques : eau sulfatée-calcique (eaux souterraines provenant des cordons littoraux et une source sur altérites), eau bicarbonaté-sodique sur le site de Camopi (alluvions), eau chlorurée-sodique dans les eaux d'altérites du moyen Maroni et de l'Inini ; la majorité des eaux se situant dans le domaine bicarbonaté-calcique.

La comparaison des faciès chimiques des eaux de surface et des eaux souterraines met en évidence des enrichissements en Ca et Mg dans ces dernières. Les eaux souterraines prélevées dans le socle fracturé montrent le plus net enrichissement. Celles prélevées dans les cordons littoraux ou les zones d'altérites ont des faciès similaires aux eaux de surface.

Le chlore des eaux, majoritairement d'origine marine, et la comparaison de ce dernier avec les autres éléments chimiques met en évidence des enrichissements (Ca, Na, Mg, K...) à relier avec des processus d'interaction eau-roche ; quelques cas d'enrichissements en Cl sont à rapprocher d'activités anthropogéniques.

Les systématiques isotopiques

Les eaux souterraines se positionnent dans la corrélation globale obtenue pour les isotopes de la molécule d'eau (^{18}O et ^2H) dans les eaux de pluies et de surface, démontrant l'origine météorique des eaux et des processus d'évaporation peu significatifs.

En systématique strontium, dans un schéma entre les rapports isotopiques $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ et $1/\text{Sr}$ deux alignements linéaires peuvent être mis en évidence à partir des données des eaux de surface. Ces alignements décrivent un modèle de mélange simple entre trois composants qui peuvent être raccordés avec la nature lithologique des substratums drainés. On retrouve la signature de la série P (Paramaca inférieur : *schistes, quartzites, métavolcanites*), de la série S (Paramaca supérieur : *schistes, micashistes, grès*) et des séries $\delta\gamma$ (plutonisme "Guyanais" : *orthogneiss / graniodiorites / migmatites*).

La divergence de certaines eaux souterraines des zones de cordons littoraux ou d'altérites vers des teneurs très faibles en Sr et des rapports isotopiques variant peu est à rapprocher d'une forte composante pluie dans ces eaux, comme l'indique la ressemblance avec les points des pluies. Les autres échantillons d'eau provenant de ces systèmes de cordons littoraux se positionnent tous sur une tendance linéaire avec enrichissement en Sr (et donc une diminution de $1/\text{Sr}$) associée à une faible diminution du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$. L'utilisation des rapports $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ couplée avec la teneur en Sr permet d'identifier des pôles de mélanges mais illustre aussi les fortes fluctuations des teneurs au travers des eaux souterraines dans les altérites et cordons littoraux. Les eaux de zone de socle fracturé présentent, par contre, des teneurs élevées et restent ainsi relativement groupées, avec des valeurs de $1/\text{Sr}$ peu variables.

Pour déconvoluer davantage ces signaux, il est possible d'utiliser les rapports $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ avec des teneurs élémentaires.

Les concentrations des Terres Rares dissoutes regardées de manière individuelle ou au travers de la somme des concentrations (ΣREE) dans l'ensemble des eaux de la Guyane varient de plusieurs ordres de grandeur, tout en restant dans les gammes données par d'autres études. On note une absence de relation claire entre les concentrations en Terres Rares et les autres caractéristiques de l'eau (pH, conductivité, charge chimique TDS...), impliquant que les concentrations en Terres Rares ne sont pas contrôlées initialement par ces paramètres. Par contre, le rôle de la matière organique, testé indirectement par les relations avec l'aluminium, n'est pas négligeable. Les spectres des Terres Rares des eaux de la Guyane montrent un enrichissement en ΣREE pour les eaux

de surface, pour certaines eaux souterraines des zones de cordons littoraux ou d'altérites et de socle fracturé mais également des spectres opposés.

L'application des isotopes du néodyme vient conforter les interprétations issues des isotopes du strontium. Ainsi, les eaux souterraines des cordons littoraux et des altérites présentent des teneurs en Nd fortes, associées avec des rapports isotopiques radiogéniques ($\epsilon_{Nd}(0)$ entre -15 et -9). Les deux échantillons d'eau souterraine de socle fracturé présentent des teneurs similaires en Nd et des rapports isotopiques très différents.

La comparaison des rapports $\epsilon_{Nd}(0)$ et des rapports Sm/Nd dans les eaux montre des rapports $^{147}\text{Sm}/^{144}\text{Nd}$ plus élevés que dans les roches tandis que les rapports $\epsilon_{Nd}(0)$ sont dans la même gamme que ceux des roches. Le décalage des eaux vers des plus bas rapports $^{147}\text{Sm}/^{144}\text{Nd}$ peut illustrer le fractionnement entre Sm et Nd lors des processus d'altération. On note également une tendance linéaire négative entre les rapports $\epsilon_{Nd}(0)$ et $^{147}\text{Sm}/^{144}\text{Nd}$ dans les eaux de la Guyane.

Prises dans leur ensemble, les eaux de Guyane ne démontrent aucune relation, ni positive, ni négative entre les rapports $\epsilon_{Nd}(0)$ et $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$. ; ils se situent, avec des rapports $\epsilon_{Nd}(0)$ plus radiogéniques, en dehors des gammes isotopiques des grands fleuves mondiaux. De même, les rapports $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ sont légèrement plus radiogéniques dans les eaux de Guyane que ceux mis en évidence dans cette relation générale. Si l'on s'intéresse seulement aux eaux de Guyane, trois nuages de points et un point solitaire peuvent être individualisés dans la comparaison entre les rapports $\epsilon_{Nd}(0)$ et $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$. Les différents nuages de points correspondent à des pôles roches différents qui signent les eaux de la Guyane. En particulier, les eaux issues des cordons littoraux semblent être influencées par les vases d'origine amazonienne.

Les isotopes du bore ont été analysés sur les échantillons de la zone côtière, soit 3 rivières, 11 eaux souterraines issues des dépôts sablo-argileux du littoral et 2 eaux souterraines drainant le socle fracturé. Les signatures en $\delta^{11}\text{B}$ ($>$ eau de mer) avec des pH faibles peuvent correspondre à une adsorption du B sur les minéraux argileux. Les $\delta^{11}\text{B}$ inférieurs à l'eau de mer avec des pH élevés peuvent correspondre à une désorption de B des argiles et/ou à des phénomènes d'interaction eau-roche. Compte tenu de la relation $\delta^{11}\text{B}$ - Cl, les variations de $\delta^{11}\text{B}$ semblent être principalement liées à une interaction eau-roche.

3.4. ELEMENTS SOCIO-ECONOMIQUES

Une importante mission d'évaluation des conditions d'accès à l'eau potable de la population riveraine du fleuve Maroni a été mise en œuvre en 1999 [Bonhomme, 2001].

Intégrant les aspects géologiques, hydrauliques, hydrogéologiques, ce travail a pris en compte un ensemble de critères socio-économiques qui pourront servir de base à la mise en œuvre d'un programme de mise à niveau de l'alimentation en eau potable de cette région des fleuves.

3.5. PUBLICATIONS SCIENTIFIQUES

Les travaux de recherche réalisés dans le cadre du projet « Villages des Fleuves » ont été valorisés sous forme de plusieurs publications ou communications scientifiques :

- déjà publiées : [Lachassagne and Rampnoux, 1998; Négrel and Lachassagne, 2001; Négrel *et al.*, 1997],
- acceptées par des revues scientifiques, et actuellement sous presse : [Lachassagne and Pinault, 2001],
dont les références figurent au sein de la bibliographie et qui sont présentées *in-extenso* en annexe 1.

Par ailleurs, plusieurs autres publications sont en cours de rédaction ou projetées :

- Lachassagne P., Négrel Ph., Gandolfi J.M.- Structure and functioning of hardrock aquifers in French Guiana. Hydrogeological concepts and groundwater geochemistry.- à soumettre à *Journal of Hydrology*,
- Blès J.L., Lachassagne P., Palvadeau E., Weng Ph., Gandolfi J.M.- Réseaux, contraintes tectoniques actuelles, anomalies radon et hydrogéologie en Guyane française.- *Journal à identifier*.

4. Synthèse – Perspectives

4.1. PRINCIPAUX RESULTATS ACQUIS DANS LE CADRE DU CPER 1994-1999

Dans le cadre du présent contrat de plan Etat – Région (projets « Villages des Fleuves » et « Ile de Cayenne ») et plus largement, dans le cadre des travaux de recherche en cours de par le monde sur les **aquifères de socle** (roches plutoniques et métamorphiques, qui constituent la quasi-intégralité du sous-sol de la Guyane), menés par le BRGM et d'autres organismes de recherche, des avancées importantes ont été effectuées en terme de compréhension de la structure et du fonctionnement des ces systèmes spécifiques. Les principaux résultats concernant la Guyane sont les suivants :

- la **mise en évidence de ressources en eau souterraines significatives** au sein des aquifères de socle de Guyane, attestée par plusieurs forages productifs réalisés dans des contextes différents (littoral, fleuves, granites, schistes, etc.). En conséquence, compte tenu de son intérêt économique (en particulier qualité et faibles coûts de traitement associés), la ressource en eau souterraine est maintenant systématiquement prise en considération, de manière prioritaire, dans le cadre des projets d'AEP,
- en contexte des Villages des Fleuves, la mise au point d'une **typologie des différentes ressources en eau souterraine**, en fonction des contextes hydrogéologique et socio-économique (besoins) :
 - aquifères alluviaux, associés aux criques et au fleuve, adaptés aux besoins de petites communautés (moins de 50 habitants),
 - aquifères du socle « profond » (quelques dizaines de mètres de profondeur), à perméabilité de fractures d'origine tectonique, bien adapté aux besoins de villages de taille significative (à partir de plusieurs centaines d'habitants),
- le développement, **pour ces deux types de contextes, de méthodes et d'outils de prospection hydrogéologique adaptés** à l'implantation de forages efficaces : connaissance de la fracturation et des contraintes tectoniques actuelles, méthode « radon », géophysique, etc.,
- la constitution d'un **référentiel hydrogéochimique** caractérisant les signatures des différents compartiments du cycle de l'eau en Guyane : eaux de pluie, eaux de surface (fleuves et criques), eaux souterraines superficielles (alluvions, altérites) et profondes (socle fracturé), etc., et les variations spatiales de ces signatures, en fonction des différents types de roches qui composent le sous-sol de la Guyane. Les premières interprétations de ces données ont permis de préciser le fonctionnement des aquifères et leurs relations avec les eaux de surface, en conditions non influencées (hors de toute exploitation par pompage).

4.2. PERSPECTIVES DANS LE CADRE DU CPER 2000-2006

Les résultats présentés précédemment offrent de larges perspectives en terme de valorisation des ressources en eau souterraine en Guyane. Cette valorisation a déjà débuté, dans le cadre d'opérations ponctuelles, sur les sites où les besoins pour l'alimentation en eau potable de la population étaient les plus urgents (Camopi, Grand

Santi, Loka, Papaïchton, etc.). Une programmation plus systématique, permettant de bénéficier d'effets d'échelle, sera mise en place dans le cadre du futur CPER.

Compte tenu de l'intérêt qu'ils peuvent revêtir pour la Guyane, deux domaines nous semblent justifier tout particulièrement la mise en œuvre de travaux de recherche complémentaire.

4.2.1. Caractérisation des différentes phases d'altération et des propriétés hydrogéologiques de leur zone fissurée altérée respective

Un des très récents résultats de travaux de recherche portant sur les aquifères de socle est la mise en évidence de l'existence de relations fortes entre les processus d'altération (qui concourent au développement de la couverture d'altérites) et la création de structures perméables au sein d'un horizon, la « zone fissurée altérée » (ou horizon fissuré) qui se développe à l'interface entre les altérites et le substratum rocheux sous-jacent (cf. Figure 1). Dans cette zone particulière, l'éclatement de la roche sous l'effet du processus d'altération, crée en effet des fissures (subhorizontales dans le cas des granites), qui peuvent constituer une zone perméable, intéressante du point de vue de la ressource en eau souterraine.

Les résultats récents, obtenus en Bretagne par exemple, montrent qu'un nombre important de forages captant la zone fissurée altérée et non les fractures profondes, présentent un débit significatif, de l'ordre de quelques mètres cubes par heure. Ce type de ressource pourrait être particulièrement adapté aux besoins de villages de taille moyenne (50-500 habitants). En outre, leur mise en exploitation requiert des moyens de forage et sans doute des travaux de prospection hydrogéologique plus légers que ceux nécessaires au captage de la fracturation « profonde » d'origine tectonique.

Il est donc proposé de mettre en œuvre des travaux de recherche visant à caractériser la structure de cette zone fissurée en Guyane et à développer des outils et méthodologies destinés à mettre en valeur la ressource en eau qui lui est associée.

4.2.2. Caractérisation, au moyen de l'outil géochimique et multi-isotopique, du fonctionnement des aquifères en conditions d'exploitation par pompage

Les résultats obtenus dans le cadre du CPER 1994-1999 ont monté l'intérêt de l'outil hydrogéochimique pour la compréhension du fonctionnement des aquifères de socle. De premiers résultats ont été obtenus en conditions d'écoulement naturel.

Il est proposé, dans le cadre du CPER 2000-2006, de réaliser un suivi hydrogéochimique des forages qui viennent d'être mis en exploitation, afin de comprendre le fonctionnement de ces aquifères sous sollicitation par pompage (et en conséquence les modifications entraînées par cette exploitation) et d'en déduire leurs modalités d'exploitation et de protection à long terme. L'accent sera également porté sur l'évolution de la qualité des eaux pompées, en particulier vis à vis des métaux (Fe, Mn, etc.).

5. Références bibliographiques

- Blès, J.-L., Lachassagne, P. and Gandolfi, J.-M. (1999) - Projet "Villages des Fleuves". Fracturation et contraintes actuelles en Guyane. Application à la recherche d'eau souterraine en contexte de socle. Synthèse des données structurales recueillies dans le cadre du projet. R 40594, BRGM.
- Bonhomme, B. (2001) - Programme régional d'AEP dans le cadre du XI CPER. Aménagement du fleuve Maroni : "Etat de l'accès à l'eau potable des villages et habitats dispersés". Région Guyane. RP-50933-FR, BRGM.
- David, A. (1992) - Influence des paramètres hydroclimatiques sur les déplacements verticaux du radon-222 en zone non saturée. University of Paris VI, Paris, 199 pp.
- Gandolfi, J.-M. (1998) - AEP des bourgs de Maripasoula et Loka. Note sur l'état des connaissances en fonction des données disponibles au 10/04/1998, BRGM.
- Gibbs, R.J. (1970) - Mechanisms controlling world water chemistry. *Science*, 170, 1088-1090.
- Guérin, F. (1991) - Production et mécanismes de migration du radon-222 dans les milieux fissurés: application à la recherche des discontinuités perméables du socle cristallin. Université de Paris VI, Paris, 282 pp.
- Lachassagne, P. et al. (2001) - Exploitation of high-yield in hard-rock aquifers. Downscaling methodology combining GIS and multicriteria analysis to delineate favourable zones. *Groundwater (In press)*.
- Lachassagne, P., Castaing, C., Negrel, P. and Rampnoux, N. (1997) - Villages des Fleuves de Guyane. Hydrogéologie du socle fracturé. Mise au point de méthodologies de prospection, exploitation et gestion des aquifères. Rapport d'avancement au 31 décembre 1996. R 39310 DR/HGT 97, BRGM.
- Lachassagne, P. and Pinault, J.-L. (2001) - Radon-222 emanometry: a relevant methodology for water well siting in hard rock aquifer. *Water Resources Research (in press)*.
- Lachassagne, P. and Rampnoux, N. (1998) - Coupling radon emanometry and geophysics for high flowrate water well implementation in hard-rock aquifers under humid tropical climate. *IAH 3rd International Workshop of the Hard Rock Hydrogeology of the Bohemian Massif*. Windischeschenbach, Germany. *Ralph Annau, Steffen Bender, Stefan Wohnlich*. 117-122.
- Lachassagne, P. et al. (1996) - Compréhension de l'hydrogéologie du socle fracturé. Mise au point de méthodologies de prospection : Villages des Fleuves de Guyane. Rapport d'avancement au 31/12/95. R 38760 DR/HGT 96, BRGM.
- Lachassagne, P., Rampnoux, N., Laporte, P. and Mercier, F. (1995) - Recherche d'eau souterraine pour l'alimentation en eau souterraine du village de Camopi - Guyane. Prospection géologique, émanométrique et géophysique. Proposition d'implantation de sondages de reconnaissance. N2139 SGN/GUY 95, BRGM.
- Négrel, P. (2000) - Géochimie du fleuve Maroni en période de basses eaux. Implications pour les interactions eau-roche et la contribution des eaux souterraines. RP-51010-FR, BRGM.

- Négrel, P. and Lachassagne, P. (2001) - Geochemistry of the Maroni River (French Guyana) during low water stage: implication for water rock interaction and groundwater characteristics. *Journal of Hydrology, sous presse*.
- Négrel, P., Lachassagne, P. and Laporte, P. (1997) - Caractérisation chimique et isotopique des pluies de Cayenne (Guyane française). *C.R. Acad. Sci., Série Ila*(324), 379-386.
- Négrel, P. and Pételet-Giraud, E. (2001) - Les eaux souterraines de la Guyane. Caractérisation hydrochimique et isotopique. RP-50306-FR, BRGM.
- Palvadeau, E. (1999) - Géodynamique quaternaire de la Guyane française. Ph-D Thesis- Documents du BRGM n°287, Université de Bretagne Occidentale, Brest, 232 pp.
- Pointet, T. (1989) - Exploration of fractured zones by radon determination in the soil. *International workshop on appropriate methodologies for development and management of groundwater resources in developing countries*. Hyderabad, India. NGRI. 3, 37-47.
- Rampnoux, N. and Lachassagne, P. (1996) - Alimentation en eau potable de Grand-Santi (Commune de Grand-Santi, Guyane). Recherche d'eau souterraine. Proposition d'implantation de sondages de reconnaissance. R39012 SGR/GUY 97, BRGM.
- Rampnoux, N. and Laporte, P. (1996) - Alimentation en eau potable de la commune. Pompages en période de "basses eaux" sur les forages CR1 et CR2. Camopi (Guyane). Compte rendu du suivi des pompages. N2380 SGN/GUY 96, BRGM.
- Rampnoux, N. and Laporte, P. (1997) - Alimentation en eau potable de Grand-Santi (Commune de Grand-Santi, Guyane). Résultats de la campagne de la campagne de reconnaissance par forages et des pompages d'essai sur les forages F1 et F2. N2493 SGN/GUY 97, BRGM.
- Rampnoux, N., Laporte, P. and Besse, A. (1996a) - Alimentation en eau potable du village de Loka. Recherche en eau souterraine. Commune dev Papaïchton (Guyane). R39011 SGR/GUY 96, BRGM.
- Rampnoux, N., Laporte, P. and Lachassagne, P. (1997) - Alimentation en eau potable de Grand-Santi (Commune de Grand-Santi, Guyane). Pompages en période de "basses eaux" sur les forages d'exploitation F1 et F2. N2562 SGN/GUY 97, BRGM.
- Rampnoux, N., Laporte, P. and Noël, J.-P. (1996b) - Alimentation en eau potable de la commune. Pompages par paliers de débit et de longue durée sur les forages CR1 et CR2. Commune de Camopi (Guyane). Compte rendu du suivi du pompage. R39010 SGR/GUY 96, BRGM.

Annexe 1

**Publications scientifiques produites dans le cadre du
projet (acceptées et soumises)**

**Radon-222 emanometry: a relevant methodology for water well siting
in hard rock aquifers**

Patrick Lachassagne*, Jean-Louis Pinault**✉, and Pierre Laporte***

*Resource Assessment, Discontinuous Aquifers Unit, Water Department, Bureau de Recherches
Géologiques et Minières,

1039, rue de Pinville 34000 Montpellier, France

** Water Department, Bureau de Recherches Géologiques et Minières,

BP 6009, 45060 Orléans Cedex 2, France (✉ Corresponding author: jl.pinault@brgm.fr)

***Service Géologique Régional Guyane, Bureau de Recherches Géologiques et Minières, BP 552,
97333 Cayenne Cedex, French Guiana

Abstract

To improve the understanding of soil-gas emanations with the aim of groundwater prospecting in fractured substrates, radon anomalies were mapped in a tropical region (French Guyana) where the structural features of a potential gas source are masked owing to the thick regolith cover. Two anomalies were located. Two probes were then installed, one (B1) on the border of the north anomaly, the second (B2) at the center of the south anomaly, as well as a meteorological station, and monitoring was carried out for six months extending from the dry to the rainy season.

Signal processing of radon signal-atmospheric pressure time series allowed to determine the physical processes causing migration of the gases in the soil and the subsoil. The radon anomalies are very probably associated with the presence, in the hard rock substratum, of a permeable structure that permits the transit of “deep”-origin gas to the surface. This transport by advection disturbs the radon diffusion profile from the first meters of soil into the atmosphere. The radon thus behaves as a marker of deeper gases percolating through the regolith cover. Indeed, in such a context with low permeability weathered formations, due to its short half-life(3.8 days), the radon measured in the first decimeters of the soil displays an exclusively superficial origin.

Hence, the measurement of the radon content in soil, at an identical depth from one sampling site to another, helps locate the zones affected by advective gas transfers which explains why the radon anomalies in soil gases, identified at the scale of a hydrogeological prospecting site located in a hard rock context, usually coincide vertically in hydraulically active fracture zones. This fully justifies the use of this method to site water wells, provided some precautions are observed, particularly pertaining to the spatial and temporal variability of the signal associated with different types of soils and changes in the meteorological parameters and soil moisture contents. The methodology is simple since only robust equipment is required.

The estimation of gas transport parameters also helped identify the extent of advection areas. During the dry season, they are characterized by low gas velocity. These zones shrink with the early rains, and the advection area is confined vertically up the fault where a channeling effect occurs: soil-gas preferably follows the less constricted pores and the increased pressure gradient offsets the decrease in permeability.

1 Introduction

The economic development of a region is often contingent on the availability of a good-quality water resource, in sufficient quantities and at acceptable cost. Groundwaters can contribute to this development. In arid regions, they often represent the only resource that can be mobilized durably, including in the dry season. In wetter regions, where surface waters are available, groundwaters help to provide good-quality water without large-scale and hence costly treatment, in terms of investment and operation, to make them potable.

The drilling campaigns conducted in recent decades in basement regions (fractured aquifers in plutonic and metamorphic rocks) have shown that significant flows (over 5 to 10 m³/h per well, as determined by long duration pumping tests) can be obtained by siting wells in fractured zones. Hence groundwaters, even in this type of setting, are capable of contributing to economic development by supplying water not strictly limited to village hydraulics [Léger *et al.*, 1989]. It is nonetheless necessary to have reliable methods for siting the water wells to achieve acceptable success ratios, both

from the financial standpoint and for acceptance of the risk by the contracting authorities of the development projects.

This prospect has led to the development, over the last ten years, of the prospecting method by radon emanometry in soil gases [Pointet, 1989a; Pointet, 1989b; David, 1992; Guérin, 1991; Surbeck, 1997]. The methodology developed and used at BRGM [Guérin, 1991] consists in taking gas samples from the soil on a regular grid pattern. Sampling is carried out at depth of about 60 cm using a manually inserted metal tube. The sample, extracted by a hand pump, is collected in a scintillation flask. Pumping is carried out without creating a large draw down that could cause distortion of the soil gas radon concentration. The radon content is measured at the end of each field day using a photomultiplier. Mapping of the radon contents then helps identify the anomalies (Figs. 1, 2 and 3) above which water wells can be sited. This methodology, originally developed for uranium prospecting, was first applied in continental France, initially for prospecting mineral hot springs, and then for "cold" waters. It was then adapted and used successfully (Fig. 1) in other climatic and geological contexts, in climates of the Sudan-Sahel type [Léger et al., 1989; Pointet, 1989b] and the wet tropical type [e.g. Lachassagne et al., 1998].

et Ramfron on

As often the case in hydrogeology, this method fits into a coherent downscaling approach, which involves increasingly accurate, but increasingly costly (in terms of cost related to area processed) methods to select prospecting sites of decreasing size as the operations proceed. The approach integrating radon prospecting thus features the following successive steps:

(i) selection of prospecting site(s), one to a few square kilometers in area, based on a multicriteria analysis carried out using a Geographic Information System. This analysis serves to combine the following data: lithology and hydrogeological properties of the substratum, type and thickness of the regolith cover, depth of the piezometric level, slopes, fracture systems and current tectonic stresses, socio-economic parameters, etc. [Lachassagne et al, 2000];

(ii) radon prospecting, at the scale of each site, designed to locate the radon anomalies completely, and to characterize their morphology. They often display an elongate form: 200 to 300 m length for 50 to 100 m width [Lachassagne et al, 1998];

(iii) geophysical prospecting (generally electrical soundings followed by electrical profiles or panels), focused on the radon anomalies so as to site the well with an accuracy of a few meters [Lachassagne *et al*, 1998].

2 Objectives of the study

Radon prospecting is efficient from the standpoint of success in the wells drilled by this method (Fig. 1). It is nonetheless important to know the processes governing radon migration in the subsoil, and hence giving rise to radon anomalies, so as to make maximum use of the results of the hydrogeological prospecting campaigns and to identify the possible limits in the validity of the methodology.

This need of a better understanding of the origin of the radon anomalies emerged clearly when prospecting operations were attempted in geological contexts of tectonically stable regions where the shallow subsoil also consists of impermeable formations. This is particularly the case of tropical regions where the basement is deeply weathered and where this regolith has been preserved from erosion. Given the short half-life of radon, it is difficult, in this configuration, to conceive of any direct and rapid migration, to the surface, of the radon produced or conveyed in the aquifer fractures of the fresh rock. These are in fact overlain by several meters or several tens of meters of impermeable weathered clays. A study aiming at a better understanding of the underground radon gas migration process was thus carried out as part of a research project to develop an efficient methodology for water well siting adapted to the particular context of French Guyana (wet tropical, 95% hard rock country).

Whereas surface measurements of ground CO₂ and He concentrations can provide information about the quantity of gas transferred from presumed sources to the surface, the determination of radon concentration alone is not sufficient to identify the radon source for two reasons: ²²²Rn has a short half-life, and radon sources are multiple. For example, a high radon flux at the surface can result from (1) radon production in the shallow part of the ground, where radium-rich minerals accumulate; as radon migrates to the surface by diffusion, its flux is highly affected by environmental conditions

such as soil moisture, temperature and wind velocity, and can also be temporarily enhanced by factors such as the opening of cracks in clayey soil during droughts; (2) radon expelled from host rocks by a gas flow originating in a deeper gas source: e.g. crustal degassing through a high permeability fractured zone, in which case the flux will be highly dependent on the gas velocity, or groundwater degassing, due to changes in gas partial pressure associated with upward water movement, with radon being transported to the surface when gas advection occurs, etc. Only the latter conditions can indicate the presence of remote sources, thus the presence of local permeability in the bedrock, and are therefore interesting for groundwater prospecting in rocks with fracture permeability.

Since radium is widespread, radon (the heaviest of the rare gases) is present everywhere, with preferential accumulations in fine-grained materials [Vilks *et al.*, 1993] and also in faults and soils. If transport is only by diffusion, the radon source is usually near the measurement site, not more than a few meters from the probe, due to its short half-life [Tanner, 1991].

Deep-origin signals can only be observed if convection/advection occurs. This has been demonstrated in volcanic and hydro-thermal contexts where radon is generally captured by the rising gas column near the surface. In these active contexts, radon is carried by fluids, mainly CO₂ and water vapor, rather than by diffusion. [Ball *et al.*, 1991; Baubron *et al.*, 1991; Chen and Thomas, 1994]. In tectonically stable regions, deep-origin gases are very difficult to detect in soils because their concentrations are too low. Moreover, water vapor and CO₂ are highly affected by superficial conditions, particularly in wet tropical areas where microbial activity in soils is important. Radon could then be used as a tracer of advection zones in which other gases are mainly implicated, especially since soil radon concentrations are very easy to measure in comparison with other soil gases.

To bring to the fore advection, gas column rising must not be distorted, which excludes methods based on soil gas pumping. Because ²²²Rn is an alpha particle emitter, it can easily be detected in the ground by certain passive sensors, without the need for pumping. Moreover, when a radon probe is installed tightly in the soil, with no gap between probe and soil, the measured radon variation should be unaffected by the presence of the probe.

The aim of this work is to show whether and how advection areas can be detected in the specific context of tectonically stable wet tropical climate countries. Although evidences of advection in a non-hydrothermal environment [Baubron *et al.*, 1992; Kropotkin, 1992], mechanisms involved are not clearly identified.

3 Mechanisms involved in radon transport

Gases measured in soils or in the weathered layer of the substratum can be strongly disturbed by environmental variables such as atmospheric pressure, soil temperature and soil moisture, as well as crustal stress. An accurate description of the effect of environmental variables is necessary to decipher information from deeper events. Many researchers have studied the behavior of soil gases [Hinkle, 1994] and especially radon, as a function of environmental parameters [Kramer *et al.*, 1964; Clements and Wilkening, 1974; Holub and Brady, 1981; Schery and Petschek, 1983, Ball *et al.*, 1983; Stranden *et al.*, 1984; Schery *et al.*, 1989; Ball *et al.*, 1991; Guerin, 1991; David, 1992; Washington and Rose, 1992; Holford *et al.*, 1993; King and Minissale, 1994], (see reviews by Rose *et al.* [1988, 1990]).

In some places advection occurs due to crust degassing. The vertical pressure gradient $\partial P / \partial z$ responsible for advection is then superimposed on the atmospheric pressure gradient due to the weight of the column of atmospheric gases, i.e. 10.9 Pa/m at sea level (the gradient due to the compression of the gas column resulting from its own weight is not represented in the equations since it does not cause any soil gas movement).

According to Darcy's law [Bear, 1979] the Darcy velocity v is such that (cf. list of symbols):

$$v = -(k / \mu) \partial P / \partial z \quad (1)$$

where k is the intrinsic gas permeability of the soil, μ the dynamic viscosity of air at a given temperature, P the absolute soil-air pressure and z the vertical coordinate. Alteration of the vertical pressure gradient induces variations in vertical soil-air flow, which changes radon behavior. An increase in atmospheric pressure induces a decrease in the vertical pressure gradient, thereby reducing the Darcy velocity of soil-air, which promotes both decay and diffusion of radon in pores. On the

other hand, lower atmospheric pressure stimulates soil-air advection as well as the upward motion of radon. Hence atmospheric pressure variations cause changes in soil radon concentration, and an increase in atmospheric pressure causes a decrease in radon concentration $C(t, z_0)$ where z_0 is the detector depth. Relative radon concentration variations may be amplified in comparison with the relative atmospheric pressure variations [Pinault and Baubron, 1997]. Furthermore, the radon concentration response is more or less delayed, depending on gas transport parameters, hence the attempt to characterize these parameters by analyzing the coupling between atmospheric pressure and radon concentration time series.

Atmospheric pressure and hence radon concentration undergo diurnal and semi-diurnal cycles. Atmospheric pressure is disturbed by the earth's rotation because of the periodic warming of the atmosphere, which causes it to expand. These diurnal cycles stimulate harmonics, hence the semi-diurnal cycles. Both diurnal and semi-diurnal cycles can be observed everywhere on earth, regardless of latitude. They generate diurnal and semi-diurnal variations in radon concentration $C(t, z_0)$ as well as their associated harmonics. Alongside diurnal and semi-diurnal cycles, the mean amplitudes of which are generally about 0.05-0.1% of the atmospheric pressure, atmospheric pressure undergoes low-frequency variations (with a period of several days) due to variations in meteorological conditions, which also generally affect the soil radon concentration [Pinault and Baubron, 1996].

In the model proposed in Pinault and Baubron, 1997, the water table level is supposed to be deep enough to enable the oscillation of the gas column in the unsaturated zone. Numerical calculations show that the depth of the water table should be at least 10 m; in such conditions the gas column behaves as if it was semi-infinite. Those conditions were fulfilled in the two examples that had been selected in that study, for the comparison of model results to field data. Nevertheless, the experiments presented within the present paper showed that oscillation of radon concentration coupled to diurnal and semi-diurnal atmospheric pressure variations may be observed even though water table is shallow (see §4.). This phenomenon could be interpreted by invoking interactions of the vector gas with water. Increasing in atmospheric pressure induces increasing in gas partial pressure at the surface of the

water table, which may induce concentration increase of the dissolved phase near the surface, according to the Henry's law. The gas pressure oscillation above the water surface induces the oscillation of the dissolved phase concentration under the surface, as a consequence of concentration gradient disturbance. Transport parameters calculated from this model may be slightly biased when the water table is only a few meters below the surface, such as in the actual context described here. Nevertheless, since the main objective of this paper is a comparative study of transport parameters at different period of time and at different places, the conclusions will not be altered by this possible bias.

The most convenient way to process time series is to use their periodic component, which requires the analysis of both time series simultaneously to determine the relative amplitude η_f and phase φ_f of radon concentration variations in response to both diurnal ($f = 1$ cycle a day) and semi-diurnal ($f = 2$ cycles a day) atmospheric pressure variations (cf. list of symbols). The four parameters ($\eta_1, \eta_2, \varphi_1, \varphi_2$) are expressed as functions of the ratio $k^* = k/n$, τ and $\alpha = \text{grad}(P)$, where k is the intrinsic gas permeability of the soil (m^2), n the effective porosity (that part of porosity involved in gas transport, m^3/m^3), τ the tortuosity, and $\text{grad}(P)$ the soil gas pressure gradient responsible for advection (Pa/m), radon being considered as a tracer of gas movement. Indeed, the tortuosity τ and $k^* = k/n$ being used as parameters, the pressure gradient α follows a spiral centered on the origin when the couple (η_f, φ_f) is represented in log-polar co-ordinates ($\log(\eta_f)$ is the radius and φ_f is the polar angle); the polar angle is close to zero when the pressure gradient is high, then decreases as the pressure gradient vanishes (the polar angle is negative since radon concentration oscillations are behind diurnal and semi-diurnal atmospheric pressure oscillations). For a given pressure gradient α , the radius of spirals increases as $\log(k/n)$ increases. Phases lower than -80° induce either a low pressure gradient α or a low value of the permeability k^* whatever the tortuosity τ [this is presented in details in *Pinault and Baubron, 1997*]. Moreover, low amplitudes η_1 and η_2 associated to low phases φ_1 and φ_2 disclose a very low permeability to gases: radon transport is mainly ruled by diffusion. **To summarize, only a significant pressure gradient in the soil will induce both a high radon signal amplification (up to**

several hundreds times) and a measurable dephasing. In the absence of pressure gradient, i.e. in places where only diffusion occurs, either dephasing is much higher than 3 hours, or relative amplitude of radon signal is very low.

For every triplet (τ , α , $k^* = k/n$) two couples (η_1 , φ_1) and (η_2 , φ_2) are associated. Because four variables are measurable (η_1 , η_2 , φ_1 , φ_2) and can be used to determine three unknown parameters ($k^* = k/n$, τ and $\alpha = \text{grad}(P)$), the system is over determined. Although there are four independent transport parameters (k , n , τ and $\alpha = \text{grad}(P)$), the signal processing method for the radon $C(t, z_0)$ and atmospheric pressure $P_a(t)$ time series does not allow the calculation of k and n independently, only their ratio $k^* = k/n$. In actual application to groundwater prospecting, however, only the k/n ratio is needed because it allows direct calculation of in situ gas velocity $v/n = -k\alpha/\mu = -k^*\alpha/\mu$, the relevant parameter for characterizing soil gas advection.

Absence of advection may be due either to a low soil gas gradient pressure although the soil is permeable to gases, or to the low permeability $k^* = k/n$ of soil to gases. In both cases, the velocity v/n is low.

The result of such measurements is highly representative of the gas column characteristics since several meters of gas below the probe are involved in the flow process, allowing sufficient periodic expansion of the gas column to be detected. The result is also reliable since only relative variations in radon concentration are used for the calculation (neither the spatial distribution of Rn nor its absolute concentration in soil gas significantly alters these relative diurnal and semi-diurnal variations). Furthermore, the measurement is not sensitive to detector efficiency as long as the count rate is adapted to the required accuracy.

4 Field description

The experimental site lies in the vicinity of village of Grand Santi (population approximately 500), situated 150 km south of the coast and on the right bank of the Lawa river (or Maroni river) which constitutes the western border of French Guyana (with Surinam) (Fig. 2).

The geological basement of the Grand Santi area consists of granites and migmatites belonging to the Guyana shield, which was mainly metamorphosed between 2.5 and 1.9 billion years ago (Early Proterozoic). These formations are deeply affected by weathering and are overlain, along the river bank, by old alluvial deposits, themselves argillized.

French Guyana has a typical wet tropical climate characterized by two contrasting seasons, with the rainy season stretching from December or January to July or August. Mean annual rainfall in the Grand Santi area is slightly under 2500 mm.

The experimental site lies about 300 m from the river bank (Fig. 2), in a cleared zone (prairie) at the edge of the village. The soil surface, which is subhorizontal, is at a relative altitude of about 5 to 7 m above the river in the low water period. The river is bordered by a very steep bank about 5 m high. The river rises several meters in the wet season. At the highest water level, it may even flood the edge of the alluvial terrace. A small stream, which only runs in the rainy season, flows about one hundred meters south of the experimental site. In the study area, the rocky substratum lies at a depth of between about 20 m and over 35 m (as determined by geophysics and two boreholes). It is overlain by regolith in which clay predominates (a level of sandy saprolite, less than one meter thick, was intersected by the borehole immediately at the top of the substratum) and, for the uppermost four to five meters under the ground surface, by ancient alluvia of which the high clay component suggests properties similar to those of the underlying regolith and making it difficult to distinguish between them. The piezometric level measured in the boreholes (which tap the fractures of the fresh substratum) fluctuates between 2 m depth (high water) and about 6 m depth (dry season) below ground surface.

5 Gas prospecting and monitoring

Gas prospecting

The occurrence of deeper gas emanations was investigated in Grand Santi by two soil gas surveys (Fig. 3) in 1996 and 1997.

The 1996 radon prospecting survey [Rampnoux *et al.*, 1996] was carried out in the rainy season, with a purely operational objective, the installation of water wells to supply the village with drinking water (Fig. 3a). Based on the map of radon anomalies, covering the entire village and its surroundings, electrical soundings and profiles were run, enabling the siting of exploratory boreholes. The first two boreholes (F1 and F2) were drilled above the main radon anomaly. Both proved to be positive, with exploitable long-term discharges of 8 and 9 m³/h respectively (as determined by 48 h pumping tests under low-water conditions). To be more specific about the location of the probes for radon monitoring in connection with the present study, an additional radon survey was carried out in the dry season, for two days in October 1997. Twenty gas samples were taken in the vicinity of the F1 and F2 radon-anomaly wells (Fig. 3b). Radon activity measured in October 1997 was significantly lower than in 1996 when the survey was carried out in the wet season. The mean was 5400 Bq/m³ against 18500 Bq/m³ in 1996 [Rampnoux *et al.*, 1996]. The radon concentration mapping nonetheless shows a good agreement between 1996 and 1997 (Fig. 3a and 3b). In addition, the 1997 refinement of the radon grid allowed better delineation of the radon anomaly identified in the 1996 survey. This made it possible to split into two separate anomalies. Wells F1 and F2 now appear to have been drilled on the edge of the north anomaly and on the south anomaly respectively. These two areas are superimposed on conductive anomalies disclosed by the 1996 geophysical survey (Fig. 3b). These results show the rather good reproducibility of the radon pattern.

Radon probes

Two radon probes were installed, according to the radon anomalies, in the neighborhood of the wells to check both the validity of the model developed in Pinault and Baubron, 1997, and the radon source. A third probe was installed outside the anomaly zone, but failed to function.

The Rn probes were placed in a shallow hole supported by a 100-mm-diameter polyvinyl chloride (PVC) pipe and covered by a Gore-TexTM membrane and soil (Fig. 4) [Pinault and Baubron, 1996]. This design allows the soil gas to flow freely to the atmosphere. The piezometric level remained lower than -2 meters for both wells throughout the observation period.

The radon monitor was an alpha counter equipped with a static 452 mm² silicon detector in a 35 cm³ chamber (French Atomic Energy Commission built Barasol-ALGADE-F, 15K internal memory). It consumes very little power and can operate up to eight months with no maintenance.

A meteorological station was also installed near the radon anomalies, a few meters from the B1 probe. It included a rain gauge, a sheltered thermometer, a thermal probe buried one meter deep with the B1 probe, a pressure sensor for atmospheric pressure measurement, and two water pressure sensors for water level measurements in the two wells.

The sampling rate was set at one hour for radon concentration and environmental parameters.

6 Signal processing

Radon concentrations are not only subject to atmospheric pressure variations but also to other environmental variables such as soil temperature, moisture and earth stress and precaution must be observed in estimating the radon concentration response to atmospheric pressure variations. To do this, the coherency between the two time series, namely the relative radon concentration and the atmospheric pressure variations, is analyzed ignoring other variables such as soil moisture, capping effect of a wet surface, atmospheric and soil temperature, and solid earth tide. The 24- and 12-hour periodicity of the diurnal and semi-diurnal atmospheric pressure variations undergo some fluctuations. Because of the changes in the time of maximum daily temperature of the atmospheric gas column; they typically fluctuate by 2 to 3% from day to day. This temporal variability is peculiar to atmospheric pressure since it involves dynamics of the whole atmosphere, not only local perturbations (clouds, rainfalls, etc...). It is tracked in the coherency calculation: only that part of radon concentration variations that undergoes exactly the same temporal variability as atmospheric pressure is used to calculate the variables (η_1 , η_2 , φ_1 , φ_2). Discrimination between causes of diurnal and semi-diurnal radon concentration variations becomes more accurate as the time series gets longer (usually at least six weeks is required).

η_f and φ_f are estimated from the experimental time series $P_d(t)$ and $C(t, z_0)$ as follows:

1) To take account of the coherency of radon concentration $C(t, z_0)$ in relation to diurnal and semi-diurnal atmospheric pressure variations, the relative amplitude η_f is calculated from:

$$\eta_f = [\text{MSC}(f)]^{1/4} \left[\frac{\|C(f, z_0)\|}{\overline{C(f, z_0)}} \right] / \left[\frac{\|P_a(f)\|}{\overline{P_a(f)}} \right] \quad f = 1, 2 \quad (2)$$

where MSC is the Magnitude Squared Coherency of the pair of time series, $\|C(f, z_0)\|$ and $\|P_a(f)\|$ are the square roots of the Power Spectral Density of the calculated time series representing radon concentration and atmospheric pressure respectively. $\overline{C(f, z_0)}$ and $\overline{P_a(f)}$ are the mean values of the corresponding time series. The Power Spectral Density $P_{xx}(f)$ is defined as the discrete-time Fourier transform of the autocorrelation sequence $r_{xx}(m)$, i.e.:

$$P_{xx}(f) = T \sum_{m=-\infty}^{\infty} r_{xx}(m) \exp(-2\pi i f m T) \quad (3)$$

where T is the sampling rate and $r_{xx}(m)$ is the expected value:

$$r_{xx}(m) = E[x(n+m)x(n)] \quad (4)$$

$x(n)$ representing time series $C(nT, z_0)$ or $P_a(nT)$: $r_{xx}(m)$ does not depend on n because time series $x(n)$ is assumed to be stationary.

The Magnitude Squared Coherency is such that:

$$\text{MSC}(f) = |\Phi_{xy}(f)|^2.$$

$\Phi_{xy}(f)$ is the coherence function:

$$\Phi_{xy}(f) = P_{xy}(f) / \sqrt{P_{xx}(f)P_{yy}(f)} \quad (5)$$

where $P_{xy}(f)$ is the two-channel cross power spectral density of x and y time series, namely the discrete-time Fourier transform of the cross-correlation function $r_{xy}(m)$:

$$P_{xy}(f) = T \sum_{m=-\infty}^{\infty} r_{xy}(m) \exp(-2\pi i f m T) \quad (6)$$

with:

$$r_{xy}(m) = E[x(n+m)y(n)] \quad (7)$$

To estimate Power Spectral Density and coherence function, 16 Hann windowed segments are used for averaging [Marple, 1987]. If the radon concentration time series is long enough (at least 6 weeks), the calculation of η_1 , η_2 , φ_1 and φ_2 is accurate in spite of noise.

2) The coherence phase spectrum θ_f of the two time series for the corresponding frequency f is [Marple, 1987]:

$$\theta_f = \tan^{-1}[\text{Im}(\Phi_{xy}(f))/\text{Re}(\Phi_{xy}(f))] \quad (8)$$

where $\text{Im}(\Phi_{xy}(f))$ and $\text{Re}(\Phi_{xy}(f))$ are the imaginary and the real parts of $\Phi_{xy}(f)$, respectively.

The lag of radon concentration compared with atmospheric pressure is given by $\varphi'_f = 180 - \theta_f$ since both time series vary in opposite directions.

Due to harmonics related to daily radon concentration and atmospheric pressure variations, the phase φ_2 is calculated from $\varphi_2 = \varphi'_2 \pm l \times 60^\circ$ where l is an integer that can be determined by referring to φ_1 , the phase related to the fundamental frequency. The coherent phase spectrum φ_1 is such that $\varphi_1 = \varphi'_1 \pm l \times 180^\circ$ where the integer l may have a non-zero value when the amplitude of semi-diurnal variations is much higher than that of diurnal variations. In any case, φ_1 and φ_2 are calculated unambiguously by accounting for inequalities $-120^\circ \leq \varphi_2 \leq \varphi_1 < 0^\circ$ [Pinault and Baubron, 1997].

7 Analysis of results

Periodogram and correlogram analysis

Figure 5 shows radon signals and rainfall for the 6-month observation period. Sampling rate is aggregated on one day to emphasize long-term variations in radon concentration. To elucidate soil-gas transport mechanisms according to the seasons, four regions are defined for calculations: the "dry season" from 3/11/97 to 7/12/97, the "beginning of the wet season" from 7/12/97 to 26/1/98, the "wet season" from 26/1/98 to 30/3/98 and the "rainy season" from 30/3/98 to 14/5/98 (end of measurements). Time is expressed by reference to Greenwich Meridian Time (French Guyana time plus 3 hours).

Radon signals were strongly affected during these periods, the lowest emanations being observed in the dry season when the radon signals of both probes are nearly merged. Nevertheless, signal B1 is slightly lower than signal B2, in accordance with the survey carried out just before monitoring started (the radon survey results and probe measurements are not comparable in terms of absolute value because they were obtained at different depths and with different devices that were not intercalibrated).

At first, rainfall promotes radon enrichment in the soil at the depth of the probes, probably due to capping effect at short time (modification in the diffusion profile related to the decrease in the top layer permeability) and, at the scale of longer period, an increase in proportion of porosity filled by water, resulting in higher Rn in the remaining air-filled pore space, radon concentration doubling in one and a half months. Increases over weeks may be due to deeper horizons becoming moister, or to higher proportion of water filled pores in the shallow zone. During most of this period, signal B1 is still lower than B2.

In the second part of the wet season, the radon concentration decreases slightly and signal B1 becomes higher than signal B2. In the rainy season, radon signals vary in the opposite direction: radon concentration measured by the B2 probe significantly increases whereas that measured by the B1 probe is strongly affected by rainfall, the concentration dropping sharply just after heavy rain.

Figures 6 and 7 refer to the dry season. An example of atmospheric pressure and radon signals is represented in Figure 6a for 10 days with the 1 hour acquisition step. Diurnal and semi-diurnal atmospheric pressure cycles are clearly visible, as confirmed in Figure 6b where the periodogram exhibits two peaks corresponding to 24 h and 12 h periods. As usual in tropical areas, these peaks are extremely well identified, ensuring favorable conditions for stimulating soil-gas oscillations and enabling calculations to be carried out within a short observation period (five weeks). Nevertheless, only the 24 h period of signal B2 is definitely identifiable because of the low amplitude of the diurnal and semi-diurnal radon variations. The MSC of atmospheric pressure and radon signals is shown in Figure 6c: signals corresponding to the 24 h period are incoherent since MSC is about 0.05, which means that only $\approx 50\%$ ($MSC^{1/4} = 0.05^{1/4} \approx 50\%$) of radon variations are explainable from atmospheric

pressure, against 70% for the 12 h period. Radon emanation can also be correlated with air temperature, for example, when dew temporarily obstructs soil-gas rising, thereby promoting the capping effect. Figure 6d gives $\hat{r}_{xy}(m)$, the estimator of the cross-correlation function $r_{xy}(m)$ of atmospheric pressure and radon concentration time series: coherency of both B1 and B2 signals in regard to atmospheric pressure is perceptible, but B1 is not synchronized with earth rotation, as may be seen in Figure 6c where both the 24 h and 12 h B1 peaks are shifted to the right. Furthermore, a long-term trend is clearly visible in both signals (Fig. 6d) as a result of the action of long-term atmospheric pressure variations on radon emanation, the two signals being anti-correlated: as expected, in long-term variations, radon signal decreases with increasing atmospheric pressure, pushing down the radon isovalues into the soil. The coherence phase spectra θ_f of the pairs $[P_a, Rn_1]$ and $[P_a, Rn_2]$ are shown in Figures 7a and b for $MSC > 0.025$ when the signals are substantially coherent. The coherence phase spectrum is accurate since it exhibits a plateau in the vicinity of the 24 h and 12 h periods.

Figures 8 and 9 show an example of the same signal representations for the **wet season** extending from 26/1/98 to 30/3/98. Both periodogram (Fig. 8b) and coherency (Fig. 8c) peaks are well resolved since the observation time (nine weeks) is longer than for the dry season (five weeks). Signal B2 is very well structured, as shown in Figures 8b-d: 24 h and 12 h variations both exhibit high amplitude. Furthermore, atmospheric pressure and radon concentration B2 are strongly coherent ($MSC^{1/4} > 90\%$) (Figs. 8c and d). On the other hand, signal B1 is poorly structured (Figs. 8b and c), disclosing low advection in the vicinity of the B1 probe, whereas the mean radon concentration remains very close (B1 even exceeds B2) in the wet season for both probes, as shown in Figure 5. Thus the B1 signal increase is probably due to capping effects that influence the radon diffusion profile.

Figures 10 and 11 refer to the **rainy season** extending from 30/3/98 to 14/5/98: signal B1 is strongly disturbed as shown by the example in Figure 10a. Here again, atmospheric pressure and B2 signals are both well structured (Figs. 10b and c). For signal B1, the 24 h variations (due to the oscillations of the radon diffusion profile) are clearly visible in the cross-correlogram shown in Figure 10d. Furthermore, a long-term trend (over diurnal and under five days) is visible in signal B2 (Fig.

10d), and a drop in atmospheric pressure logically stimulates the radon signal. The capping effect probably prevents any radon increase from atmospheric pressure variation in B1.

The results are given in Tables 1 to 3, including the calculation of parameters η_1 and η_2 (ratio of the relative amplitude of diurnal and semi-diurnal radon variations to the relative amplitude of diurnal and semi-diurnal atmospheric pressure variations) and ϕ_1 and ϕ_2 (phase between atmospheric pressure disturbances and radon concentration response).

Soil-gas transport mechanisms

Parameters (η_1 , η_2 , ϕ_1 , ϕ_2) were used to calculate the gas transport parameters in the ground as well as systematic errors deduced from the model [Pinault and Baubron, 1997]. The results are given in Tables 4 and 5. Gas velocity represents the real velocity of soil gas in the vicinity of the probe. The B1 and B2 probes disclose distinct soil-gas transport mechanisms:

1) Thanks to the B2 probe that was placed at the center of the south radon anomaly, it is found that advection occurs whatever the season. In the dry season, gas velocity is low at 7.5 cm/h. It rises to 24 cm/h at the beginning of the wet season, although neither tortuosity nor pressure gradient are significantly affected by soil moisture. Only parameter $\log_{10}(k/n)$ increases, rising from -10.91 to -10.34, as the result of an effective porosity decrease due to higher soil moisture. Large uncertainties on estimated parameters of the second period (beginning of the wet season) seem to be due to rapid changes during the period because the early rainfall strongly affects soil-gas transport parameters. Hence the calculations are less accurate than if conditions had been stationary. Unfortunately, this period cannot be split up to increase temporal resolution since a six-week period is required to carry out a proper periodogram estimation. Yet the results are reliable enough to show wide differences between this period and the others.

In the third period (wet season), the pressure gradient decreases, hence the amplitude increase of both the $[P_a, Rn_2]$ cross correlation shown in Figure 8d and the amplification factors η_f given in Table 3: when both k/n and τ parameters are fixed, the higher the amplification factors, the lower the pressure gradient α and the more delayed the radon signal in comparison with atmospheric

pressure [Pinault and Baubron, 1997]. Finally, a new organization of pores takes place with torrential rain, revealed by the higher tortuosity (tortuosity varies between 0 and 1, 1 corresponding to a straight line between two points) during the last period (rainy season). Due to $\log(k/n)$ decrease because of lower gas permeability, the pressure gradient α rises to 50 Pa/m, i.e. approximately five times the atmospheric pressure gradient at sea level. Gas velocity again rises to 22 cm/h, due to gas channeling because of very high tortuosity ($\tau=0.64$).

2) The B1 probe placed at the edge of the north anomaly served to show that the radon concentration is drastically disturbed when it rains, although the installation of the probes was identical and the soil, observed during these operations, showed similarities to B2.

Advection nearly stops after the early rains, and also during the rainy season: during this wet period, radon transport is mainly governed by diffusion since gas velocity is lower than 2 cm/h. Radon concentration remains high due to the high soil moisture. It is severely depleted during torrential rains as infiltrated rainwater reaches the detector (Fig. 10a). The lower the gas velocity near the B1 probe, the higher it is near the B2 probe, which proves that advection concentrates at the fault (Fig. 12). Thus, the related advection plume (and not necessarily the extension of the radon anomaly) shrinks during the wet season. The total flux of deep origin gas is probably constant, but it concentrates at the main fracture zones of the basement. Repetition of the pattern in the two main rainy periods (beginning of wet season and rainy season) confirms its existence.

On the other hand, B1 signal analysis tends to imply that gas velocity is significantly the same in the vicinity of the B1 probe for both the wet and dry seasons (period 1 and 3), reaching 6 cm/h in both cases, revealing an extension of the advection area during the dry season. These factors cannot be related to the water table level, where the variations are very similar in the vicinity of both B1 and B2 probes.

Comparison of the results with hydrogeological data

The results show good agreement with available hydrogeological data.

1) The depth of the base of the regolith cover is lower at F2 (32 m) than at F1. This is a first argument suggesting that F2 (and thus B2) could be (laterally) closer to a fracture zone.

2) Fluid borehole logging performed on both wells shows that the F2 flowrate is mainly supplied by influxes of water located deeper (47-48 m depth) than those supplying F1 (26 m depth). In fact, F1 water inflows occur immediately under the casing shoe.

3) Fluid geochemistry [Negrel *et al.*, 1999] suggests a much higher proportion of water coming from the regolith cover in F1 than in F2, and hence a majority of "deep"-origin water in the latter well.

Moreover, as observed during the radon and geophysical surveys (Fig. 3), F1 appears to be very close to, but outside, the main anomaly area, and F2 seems to lie on the axis of one of the two main anomalies.

Results of soil He and CO₂ analyses

In situ analyses of CO₂, He, CH₄ and Rn were also carried out on another experimental field in French Guyana (Crique des Américains, Matoury in Cayenne neighborhood) according to a protocol developed in Aubert and Baubron, 1988 as well as Baubron *et al.*, 1991. Soil air was sampled at 0.5 to 0.6 m depth, every 10 m along a 150 m profile crossing a formerly identified radon anomaly. CO₂ is poorly correlated with radon, and CH₄ do not show any relationship with radon.

A significant correlation was observed between radon and helium values, the latter frequently reaching or slightly exceeding 5.28 ppm, which is significantly higher than the air value (5.24 ppm).

8 Discussion - a conceptual model for radon anomalies

The results obtained in connection with this work demonstrate the value of using the atmospheric pressure – radon signal time series combination for determining the physical processes causing migration of the gases in the soil and subsoil. The validity of the method and the capacity of the signal processing software used, already demonstrated previously [Pinault and Baubron, 1997], are confirmed in a relatively more severe context: piezometric level close to the ground surface (hence

limited height of the gas column subject to lower barometric pumping), high water content of the soils in the wet season, presence of a thick weathered cover (several tens of meters), etc..

These results confirm that the radon anomaly analyzed is very probably associated with the presence, in the rock substratum, of a permeable structure that permits the transit of "deep"-origin gas to the surface. This transport by advection disturbs the radon diffusion profile to the atmosphere arising in the first few meters of soil. The radon behaves as a marker of deeper gases percolating through the regolith cover (Fig. 13).

In the context of French Guyana, where the first decameters of the subsoil consist of low permeability weathered formations, the radon measured in the first decimeters of soil thus displays an exclusively superficial origin [Tanner, 1991]. It is produced by the decay of the radioactive minerals present there.

Apart from anomalous structures of the advective type, the radon content in the soil hence displays the characteristics of a diffusion profile [Reddy and Sukhija Rama, 1996]: it is close to that of the atmosphere (very low) at the atmosphere/soil interface, increases with depth, and tends asymptotically toward a value which is a function of the physical parameters of the soil and its mineralogical composition (content of radon precursors). The presence of horizons with differentiated properties in the pedological profile can disturb the shape of the diffusion profile [David, 1992].

The permeable structures of the rock substratum are preferential channels for the transit of deep-origin gas to the surface, driven by flow mechanisms associated with advection process. The main deep gas elements are nitrogen (N_2) and carbon dioxide (CO_2), combined with methane (CH_4), argon (Ar) and helium (He) [Baubron *et al.*, 1992; Kropotkin, 1985]. In tectonically stable or hydrothermally inactive regions, methane and nitrogen are preponderant, followed by carbon dioxide and rare gases (particularly helium). These gases are partly generated within the earth's crust and also represent a fraction of the flux transiting from the mantle. The atmospheric fluids incorporated with the meteoric waters are added to these two components. At all events, the number of radon atoms is always insufficient to form a gas flux by itself [Kristiansson and Malmqvist, 1982]. So, the pressure gradient α responsible for diurnal and semi-diurnal radon concentration variations discloses

advection. The advection processes continue in the regolith cover above these permeable discontinuities, and then in the pedological horizons. In the latter, advection alters the radon concentration profiles in soils: radon is driven out of the superficial formation whereas most of the radon would have decayed in pores if only diffusion had been effective. The radon isovalues are shifted in the direction of the gas flow, i.e. upward. Hence the measurement of the radon contents, at an identical depth from one sampling site to another, helps locate the zones affected by these convective gas transfers.

This explains why the radon anomalies in soil gases, identified at the scale of a hydrogeological prospecting site located in a hard rock context, usually coincide vertically in hydraulically active fracture zones (Fig. 13). This justifies consideration of the use of this method to site water wells, provided some precautions are observed, particularly pertaining to the variability of the signal associated with changes in the meteorological parameters and soil moisture contents [Lachassagne *et al.*, 1999b].

Conversely, these factors also help to explain the absence of a positive relationship, observed in a catchment basin about 100 km² in area [Reddy and Sukhija Rama, 1996], between the radon content in the soil, measured in the immediate vicinity of the wells, and their actual production yield. A reasoning involving the presence or absence of a radon anomaly associated with the wells, or pertaining to the relative value of the radon signal in the neighborhood of the wells, would undoubtedly offer a closer correlation than the comparison of yields with the absolute radon contents alone, since the latter can be powerfully influenced by the soil properties, as seen above. Moreover, it would be wise to select the wells used in such analysis very carefully. Productive wells perhaps do not all intersect the fractures of the substratum; they could in fact tap decompression fractures within the first meters of the substratum, or even sandy saprolite at the base of the weathering profile.

These factors also agree with the observations [Veeger and Ruderman, 1998; Wanty *et al.*, 1990; Banwell and Parizek, 1988] which suggest that the radon concentration in groundwaters (and no longer in the soil gases) shows no correlation with the proximity of the lineaments, as does ⁴He. Radon activity appears to be influenced by geochemical and hydrological factors rather than the

degree of fracture concentration. In this sense, radon measurements in soils and in groundwater provide complementary information.

Regolith cover, even thick, do not appear to act as a shield with respect to the advective gas flux. They could even conceivably favor the use of radon as a tracer for these deep-origin gases, in view of the short half-life and mobility of radon, by totally eliminating a "deep" component of this gas which could reach the soil.

The results of this study confirm that these advection processes occur even in tectonically stable or hydrothermally inactive regions (no hot spring has been identified in French Guyana). Given the presumed weakness of the gas flows (ten times smaller than those of the "active" regions) [*Baubron et al.*, 1992]), the radon tracer appears to be particularly responsive to these advective flows. It can even be used to visualize changes, in time and space, in the flow of deep-origin gases associated with variations in the superficial properties of the soil ("respiration" of the anomaly).

In a subsurface context like the one investigated, it is possible that most of the advective gas flux is due to groundwater degassing. This would imply that degassing could only occur in sectors where groundwater exhibits a significant upward vertical flow component (decreased pressure along the flow line). In this eventuality, it is possible that the permeable fracture zones located on hills, in sectors where groundwater displays a descending vertical flow component, do not reveal advective anomalies and hence cannot be detected by radon prospecting. A statistical analysis of the location of the radon anomalies with respect to the morphology could help dispel this uncertainty. However, this possibility is not too penalizing in connection with water well siting because, for economic reasons (depth of the structures) or for effectiveness, particularly in arid regions where the regolith cover??? must be saturated with water for the well to provide a sufficient resource, the wells are generally located in valley floors.

The creation of gas bubbles in the upper part of the earth's crust initialized by alpha emissions, including radon, and stable due to the general saturation of the groundwater [*Malmqvist and Kristiansson*, 1985], could also be a factor in explaining the occurrence of deep origin gases near the

subsurface. In that case, radon anomalies would also be present in places where groundwater displays a descending vertical flow component.

Carbonates are very often filling the fractures in hard rocks. As calcite precipitation is associated with changes in CO₂ partial pressure, emission of gas bubbles might be related to this phenomenon and the resulting CO₂ be (partly) responsible for advection.

Acknowledgements. This work was supported by the European Union (FEDER fund), French Guyana Region and French Ministry of Industry through BRGM's research grant within the "Villages des Fleuves" project. This is BRGM contribution No. 2000-54.

References

- X Aubert, M. and J-C. Baubron, Identification of a hidden thermal fissure in a volcanic terrain using the combination of hydrothermal convection indicators and soil-atmosphere analysis, *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, 35, 217-225, 1988.
- Ball T. K., R. A. Nicholson and D. Peachey, Effects of meteorological variables on certain soil gases used to detect buried ore deposits, *Trans. Inst. Min. Metall., Sect. B*, 92, 183-190, 1983.
- Ball, T. K., D. G. Cameron, T. B. Colman, and P. D. Roberts, Behavior of radon in the geological environment: A review, *Q. J. Eng. Geol.*, 24, 169-182, 1991.
- Banwell G.M., R. R. Parizek., Helium 4 and radon concentrations in groundwater and soil gas as indicators of zones of fracture concentration in unexposed rock, *J. Geophys. Res.*, 93 B1, 355-366, 1988.
- Baubron J.-C., P. Allard, J.-C. Sabroux, D. Tedesco and J.-P. Toutain, Soil gas emanations as precursory indicators of volcanic eruptions, *J. Geol. Soc., London*, 148, 571-576, 1991.
- X Baubron J.-C., Marty B., and Ouzounian G., Behavior of naturally occurring gases in sedimentary and crystalline rocks. Disposal of radioactive waste. Gas generation and release from radioactive waste repositories, N. E. A.- OECD, 341-352. Aix-en-Provence: OECD, 1992.

- Bear J., *Hydraulics of Groundwater*, McGraw-Hill, New York, 1979.
- Chen, C., and D. M. Thomas, Soil processes and chemical transport, analysis of volatile-phase transport in soils using natural radon gas as a tracer, *J. Environ. Qual.*, 23, 173-179, 1994.
- Clements W.E. and M.H. Wilkening, Atmospheric pressure effects on ^{222}Rn transport across the earth-air interface, *J. Geophys. Res.*, 79, 5025-5029, 1974.
- ✓ David, A., Influence des paramètres hydroclimatologiques sur les déplacements verticaux du radon-222 en zone non saturée, Thesis, 199 pp., University Paris 6, January 1992.
- Guerin, F., Production et mécanismes de migration du radon-222 dans les milieux fissurés: Application à la recherche des discontinuités perméables du socle cristallin, Thesis, 282 pp., University Paris 6, June 1991.
- Hinkle, M. E., Environmental conditions affecting concentrations of He, CO₂, O₂ and N₂ in soil gases, *Appl. Geoch.*, 9, 53-63, 1994.
- Holford D. J., S. D. Schery, J. L. Wilson and F. M. Phillips, Modeling radon transport in dry, cracked soil, *J. Geophys. Res.*, 98, 567-580, 1993.
- Holub R. F. and B. T. Brady, The effect of stress on radon emanation from rock, *J. Geophys. Res.*, 86, 1776-1784, 1981.
- King C. Y. and A. Minissale, Seasonal variability of soil gas radon concentration in central California, *Radiat. Meas.*, 23, 683-692, 1994.
- Kraner, H. W., G. L. Schroeder, and R. D. Evans, Measurements of effects of atmospheric variables on ^{222}Rn flux and soil gas concentration, in *The Natural Radiation Environment*, edited by J. A. S. Adams and W. M. Lowder, pp. 191-215, Univ. of Chicago Press, Chicago, III, 1964.
- Kristiansson K., L. Malmqvist, Evidence for nondiffusive transport of ^{222}Rn in the ground and new physical model for the transport, *Geophysics*, 47, 10, 1444-1452.
- ✓ Kropotkin P. N., Degassing of the earth and the origin of hydrocarbons, *Inter. Geol. Rev.*, 1261-1275, 1985.

- Lachassagne P., Bérard P., Bruel T., Chéry L., Coutand T., Desprats J.-F., Le Strat P., and Wyns R. 2000. Exploitation of high-yield wells in hard-rock aquifers. Downscaling methodology combining GIS and multicriteria analysis to delineate favourable zones. To be published in *Groundwater*.
- Lachassagne P. and Rampnoux N., Coupling radon emanometry and geophysics for high flowrate water well implementation in hard-rock aquifers under humid tropical climate. IAH 3rd International Workshop of the Hard Rock Hydrogeology of the Bohemian Massif, 117-122. Windischeschenbach, Germany: Ralph Annau, Steffen Bender, Stefan Wohnlich Eds, 1998.
- Léger C., M. Normand, T. Pointet, C. Zunino. Small groundwater irrigated plots in igneous and metamorphic terrain, Burkina Faso (in French), *Hydrogéologie*, 4, 249-263, 1989.
- Malmqvist L., K. Kristiansson, A physical mechanism for the release of free gases in the lithosphere, *Geoexploration*, 23, 447-453.
- Marple S.L., *Digital Spectral Analysis With Applications*, Prentice-Hall, Englewood Cliffs, N.J., 1987.
- Negrel Ph., P. Lachassagne. Geochemistry of the Maroni River (French Guyana) during low water stage: implication for water rock interaction and groundwater characteristics.- Submitted to *Journal of Hydrology* in 1999, 1999.
- Pinault J.-L. and J.-C. Baubron, Signal processing of soil gas radon, atmospheric pressure, moisture, and soil temperature data: a new approach for radon concentration modeling, *J. Geophys. Res.*, 101, B2, 3157-3171, 1996.
- Pinault J.-L. and J.-C. Baubron, Signal processing of diurnal and semi-diurnal variations in radon and atmospheric pressure: a new tool for accurate in situ measurement of soil gas velocity, pressure gradient, and tortuosity, *J. Geophys. Res.*, 102, B8, 18,101-18,120, 1997.
- Pointet T., Exploration of fractured zones by radon determination in the soil. International workshop on appropriate methodologies for development and management of groundwater resources in developing countries, 37-47. Hyderabad, India: NGRI, 1989a.
- Pointet T., Hydrogeological Prospecting of Hard-Rock Aquifers in Semiarid Climates for Small-Scale Irrigation, Abstracts of the 28th International Geological Congress, Washington, D.C., USA, July 9-19, 1989, p. 2-620, 1989b.

- Rampnoux N., P. Lachassagne, P. Laporte P., A. Besse. Alimentation en eau potable du Bourg de Grand Santi (Guyane). Recherche d'eau souterraine. Propositions d'implantation de sondages de reconnaissance. *BRGM report* R39012, 1996
- Reddy, D.V., B.S. Sukhija Rama, Search for correlation between radon and high-yield borewells in granitic terrain, *J. Appl. Geophysics*, 34, 221-228, 1996.
- Rose, A. W., J. W. Washington, and D. J Greeman, Variability of radon with depth and season in a central Pennsylvania soil developed on limestone, *Northeastern Environmental. Science.*, 7, 35-39, 1988.
- Rose, A. W., A. R. Hutter, and J. W. Washington, Sampling variability of radon in soil gases, *J. Geochem. Explor.*, 38, 173-191, 1990.
- X Schery S. D. and A. G. Petschek, Exhalation of radon and thoron: The question of the effect of thermal gradients in soil, *Earth Planet. Sci. Lett.*, 65, 57-60, 1983.
- Schery, S. D., S. Whittlestone, K. P. Hart, and S. E. Hill, The flux of radon and thoron from Australian soils, *J. Geophys. Res.*, 94, D6, 8567-8576, 1989.
- Stranden, E., A. K. Kolstad, and B. Lind, The influence of moisture and temperature on radon exhalation, *Radiat. Prot. Dosim.*, 7, 55-58, 1984.
- Surbeck H.. Radon as a tool in hydrogeology: obstacles and prospects, in *Rare Gas Geochemistry. Applications in Earth and Environmental Sciences*, Proceedings of the 3rd International Congress on Rare Gas Geochemistry, edited by H. S. Virk, pp. 69-77, Guru Nanak Dev University, Amritsar, 1997.
- Tanner, A. B., Error in measuring radon in soil gas by means of passive detectors, *Nucl. Geophys.*, 5, 25-30, 1991.
- X Veeger A.I., N.C. Ruderman. Hydrogeologic controls on Radon-222 in a buried valley-fractured bedrock aquifer system, *Ground Water*, vol. 36 n° 4, pp. 596-604, 1998.
- Vilks, P., J. J. Cramer, D. B. Bachinski, D. C. Doern, and H. G. Miller, Studies of colloids and suspended particles, Cigar Lake uranium deposit, Saskatchewan, Canada, *Appl. Geochem.*, 8, 605-616, 1993.

Wanty R.B., S.L. Johnson, P.H. Briggs, Radon-222 and its parents radionucleides in groundwater from two study areas in New Jersey and Maryland, USA, *Appl. Geochem.*, 6, 305-318, 1990.

X Washington, J. W., and A. W. Rose, Temporal variability of radon concentration in the interstitial gas of soils in Pennsylvania, *J. Geophys. Res.*, 97, 9145-9159, 1992.

Symbols

Symbol	Unit	Definition
$C(t, z_0)$	Bq/L	concentration of radon gas in air
f	cycles/day	frequency
k	m^2	intrinsic gas permeability of the soil
$k^* = k / n$	m^2	ratio of the intrinsic permeability to the total porosity
ϕ_f	°	phase of radon concentration variations in response to atmospheric pressure variations
n	m^3/m^3	effective porosity of soil
P	Pa	absolute air pressure
$P_a(t)$	Pa	atmospheric pressure time series
z	m	vertical coordinate
z_0	m	radon detector depth
$\alpha = \text{grad}(P)$	Pa/m	pressure gradient in the z direction
η_f		ratio of the relative amplitude of radon concentration variations to the relative amplitude of atmospheric pressure variations, for a given frequency f
μ	kg/(m.s)	dynamic viscosity of air at a given temperature
v	m/s	Darcy velocity of soil air, the volume of air flowing per unit bulk cross-sectional area of soil per unit time
v / n	m/s	in situ gas velocity
MSC		Magnitude Squared Coherency
RPSD		Relative Power Spectral Density
τ	m/m	tortuosity (ratio of the straight-line distance between two points to the distance between the same two points by way of the connected pores)

Captions

Note to the Editor: Figures 3, 4, 12 and 13 can also be provided in color.

Figure 1 - Use of radon emanometry for water well siting. Synthesis of results obtained in Burkina Faso and French Guyana.

Figure 1a: Burkina Faso [Léger *et al.*, 1989]. X axis: Flow rate blown out of the well by a down hole percussion drilling (m^3/h). Y axis: percentage of drilled borehole per flowrate class.

Figure 1b compares the productivity of 28 boreholes drilled on radon anomalies (mean flow rate $4 \text{ m}^3/\text{h}$) with Fig. 1a. The results of "village water" prospecting (mean flow rate $1.4 \text{ m}^3/\text{h}$) in similar geological conditions.

Figure 1c: French Guyana [Lachassagne *et al.*, 1998]: flow rates over $5 \text{ m}^3/\text{h}$ determined by 48 h pumping test; flowrate under $5 \text{ m}^3/\text{h}$ determined by blowing.

Figure 2 - Location of experimental field in Grand Santi (French Guyana).

Note the location of the two boreholes (F1 and F2) and the boundaries of the two football (soccer) fields (Fb) and the basketball (Bb) field that will be used to locate the radon anomalies in the other figures.

Figure 3 - Results of 1996 (Fig. 4a) and 1997 (Fig. 4b) radon surveys on the studied Grand Santi anomaly (activities in Bq/m^3). 1996 geophysical survey (electrical profile) with the main conductive anomalies, location of radon sampling stations (activity in Bq/m^3), location of Barasol probes B1 and B2 and of boreholes F1 and F2. The boundaries of the football and basketball fields are shown to locate the anomaly.

Figure 4 - Schematic view of the implementation design of a Barasol probe.

Figure 5 - Radon signal of B1 and B2 probes and rainfall record throughout the monitoring period (dry season, beginning of wet season, wet season, rainy season). Sampling step aggregated over one day to improve graph readability

Figure 6 - Graphs refer to the 15/11/97 - 25/11/97 period ("dry season") - a) Representation of P_a (atmospheric pressure), Rn_1 and Rn_2 signals (Rn_1 and Rn_2 are radon signals measured by the B1 and B2 probes, respectively) - b) Relative Power Spectral Density (PSD) of P_a , Rn_1 and Rn_2 signals according to frequency - c) Magnitude Squared Coherency (MSC) of $[P_a, Rn_1]$ and $[P_a, Rn_2]$ according to frequency - d) Cross correlogram of $[P_a, Rn_1]$ and $[P_a, Rn_2]$ according to lag

Figure 7 - Graphs refer to the 15/11/97 - 25/11/97 period ("dry season") - a) Phase of $[P_a, Rn_1]$ according to frequency - b) Phase of $[P_a, Rn_2]$ according to frequency

Figure 8 - Same as Fig. 6, but graphs refer to the 22/02/98 - 4/3/98 period ("wet season")

Figure 9 - Same as Fig. 7, but graphs refer to the 22/02/98 - 4/3/98 period ("wet season")

Figure 10 - Same as Fig. 6, but graphs refer to the 20/04/98 - 30/04/98 period ("rainy season")

Figure 11 - Same as Fig. 7, but graphs refer to the 20/04/98 - 30/04/98 period ("rainy season")

Figure 12 - Schematic view of the behavior of the Grand Santi advective anomaly. During rainy seasons, due to capping effect, advection-related gas flow concentrates upward along the main permeable fractured zone.

Figure 13 - Schematic view of radon concentration in soil due to diffusion of radon of superficial origin and advection of "deep"-origin gas (N_2 , He, CO_2 , NH_4) altering the diffusive radon concentration profile in soil (0-5000: arbitrary radon concentrations): advection produces closer radon concentration isovalues. Barasol detects radon concentration variations when isovalues undergo fluctuations due to diurnal and semi-diurnal atmospheric pressure pulsations. Radon survey detects spatial variations in radon concentration at a given depth (*ca.* 0.5 m).

Table 1 - Parameters corresponding to the atmospheric pressure P_a

region	period	mean	Stand. dev.	RPSD (24 h)	RPSD (12 h)
1	3/11/97 - 7/12/97	798.2	1.52	0.292	0.374
2	7/12/97 - 26/1/98	799.1	1.50	0.505	0.664
3	26/1/98 - 30/3/98	798.5	1.41	0.525	1.00
4	30/3/98 - 14/5/98	797.5	1.44	0.466	1.00

Table 2 - Parameters corresponding to the R_{n1} signal (B1 probe). Violation of inequalities

$-120^\circ \leq \varphi_2 \leq \varphi_1 < 0^\circ$ is due to phase spectrum estimation errors owing to the lack of consistency between atmospheric pressure and R_{n1} signals. Due to the low MSC corresponding to the 24 h period (0.036), the phase spectrum cannot be calculated for this region.

region	mean	Stand. dev.	RPSD (24 h)	RPSD (12 h)	MSC (24 h)	MSC (12 h)	Phase (24 h)	Phase (12 h)	η_1	φ_1	η_2	φ_2
1	264.0	33.4	.0079	.0074	.055	.085	60	51	5.31	-60	5.05	-51
2	501.2	47.2	.0047	.0074	.036	.068		78	2.10		2.70	-78
3	471.1	34.2	.0066	.0078	.337	.145	-102	-118	3.51	-78	2.24	-122
4	465.3	67.9	.0325	.0066	.130	.110	129	-128	12.9	-129	3.75	-112

Table 3 - Parameters corresponding to the R_{n2} signal (B2 probe)

region	mean	Stand. dev.	RPSD (24 h)	RPSD (12 h)	MSC (24 h)	MSC (12 h)	Phase (24 h)	Phase (12 h)	η_1	φ_1	η_2	φ_2
1	278.6	40.2	.0133	.0075	.070	.310	47	-166	8.32	-47	8.02	-74
2	512.0	57.2	.0058	.0126	.676	.783	-167	101	5.78	-13	7.71	-41
3	437.9	36.2	.0191	.0592	.643	.934	-153	-152	8.00	-28	11.21	-88
4	563.1	91.9	.0043	.0035	.490	.610	-146	-156	7.26	-34	4.71	-84

Table 4 - Transport parameters corresponding to the B1 probe: systematic errors $\pm \epsilon$ are determined from the model [Pinault and Baubron, 1997]. Only an upper limit of gas velocity can be given for the second region, due to the low amplification factors $\eta_1 = 2.1$ and $\eta_2 = 2.7$ (Table 2)

region	τ	$\log(k/n)$	$\pm \epsilon$	α Pa / m	$\pm \epsilon$ (%)	v / n cm / h	$\pm \epsilon$ cm / h
1	0.08	-10.22	0.04	4.9	18.	5.9	1.6
2						<2.0	

3	0.11	-10.50	0.03	10.0	15.	6.3	1.3
4	0.19	-12.46	0.008	39.6	2.2	0.27	0.01

Table 5 - Transport parameters corresponding to the B2 probe

region	τ	$\log(k/n)$	$\pm\epsilon$	α Pa / m	$\pm\epsilon$ (%)	v/n cm / h	$\pm\epsilon$ cm / h
1	0.32	-10.91	0.02	30.6	8.5	7.5	1.0
2	0.35	-10.34	0.23	26.0	29.	23.9	5.6
3	0.27	-10.24	0.04	12.3	15.	14.0	3.3
4	0.64	-10.66	0.02	49.6	0.82	21.7	0.26

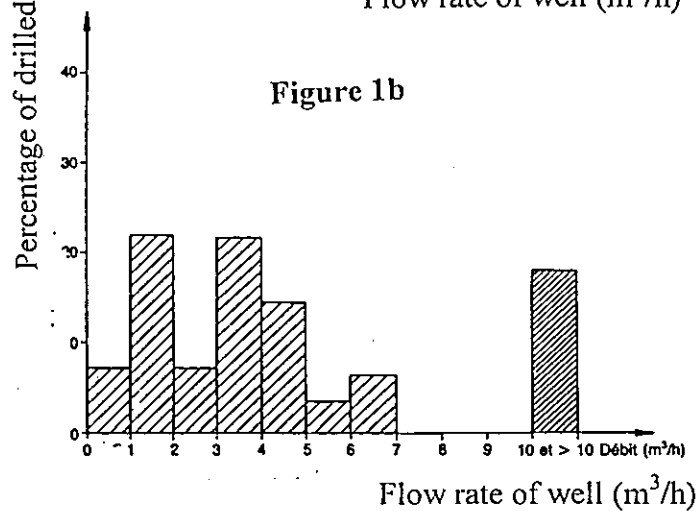
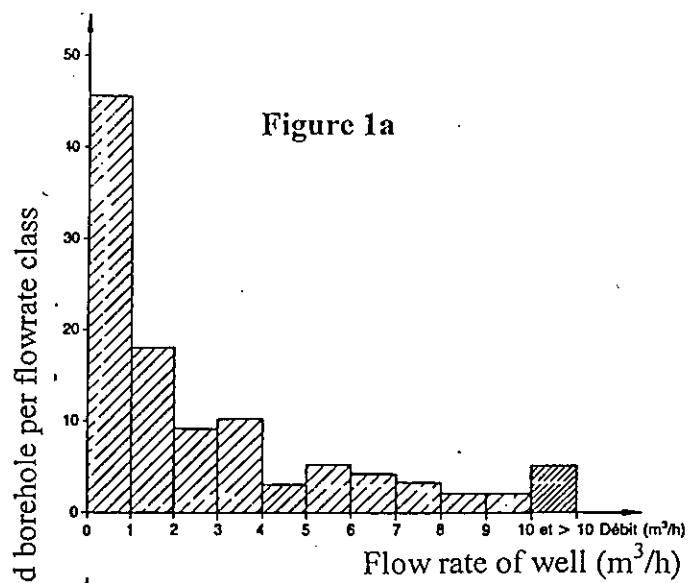
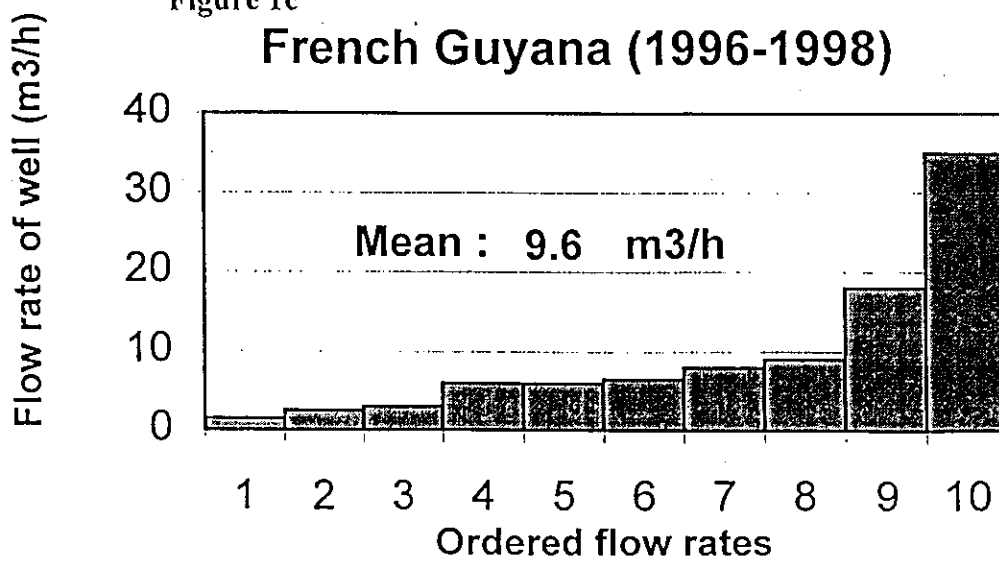


Figure 1c

French Guyana (1996-1998)



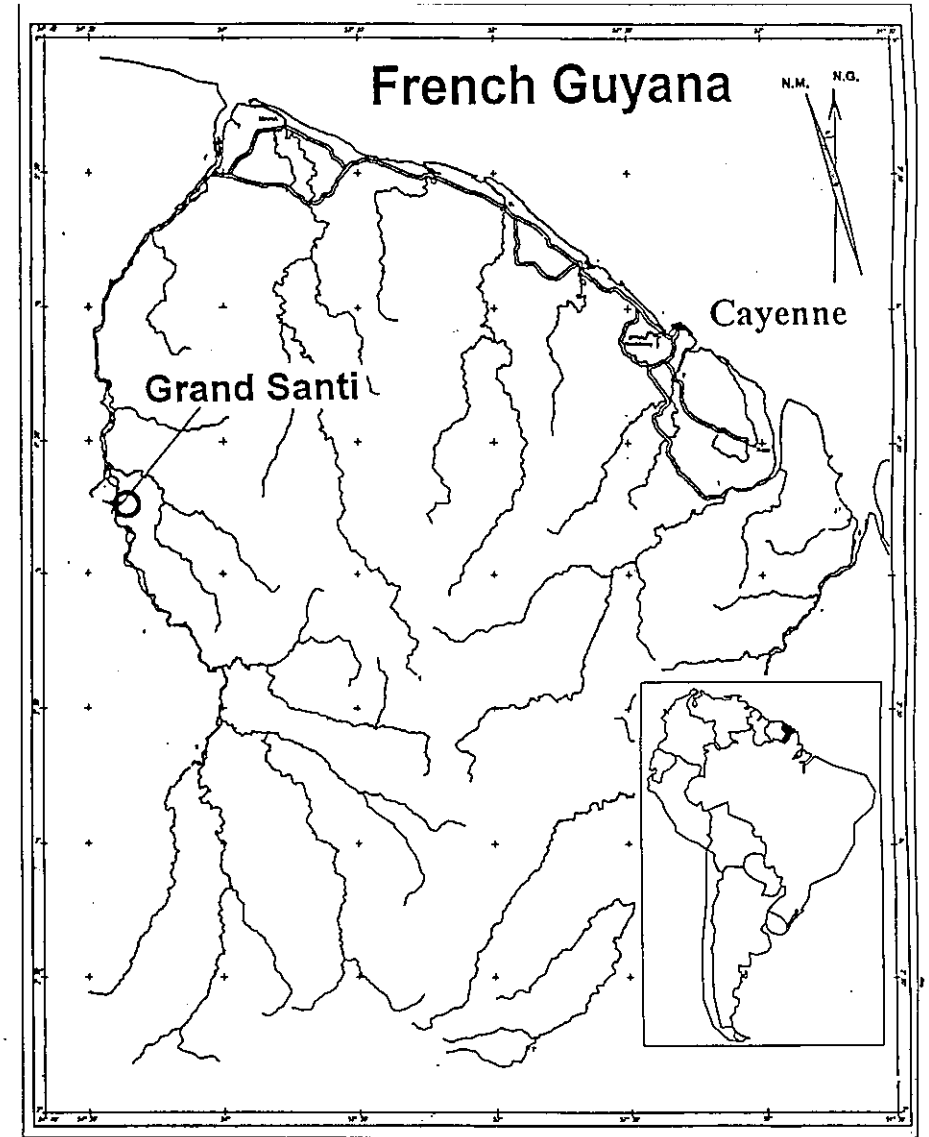
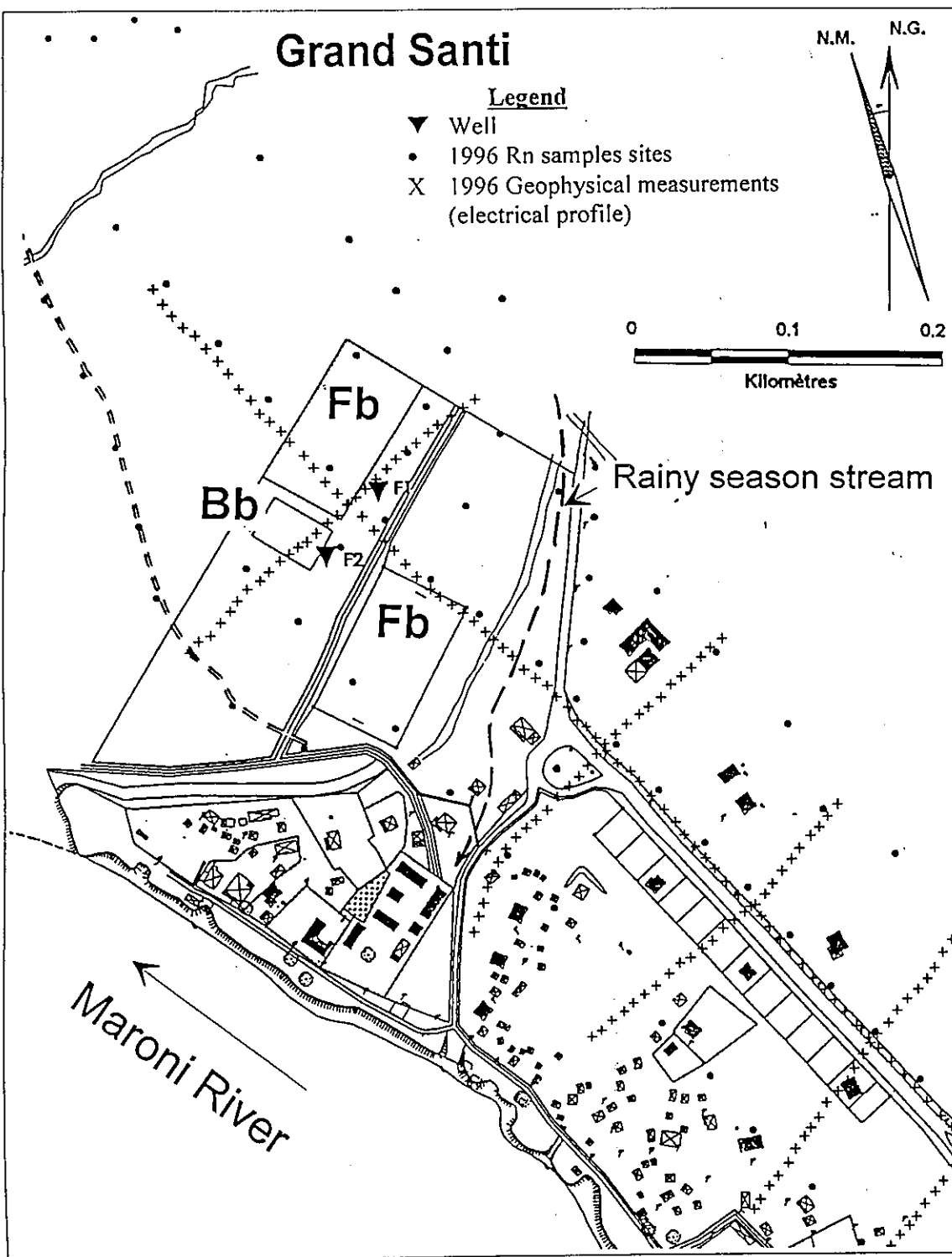


Figure 2

Legend:

- B3: Barasol probe
- F1: Well
- Radon emanometry survey (Bq/m3)
- Electrical profile (1996)
- Conductive anomaly (< 300 Ohm.m)

Map Labels:

North arrow: Nm, Ng, 17°

Scale bar: 50 m

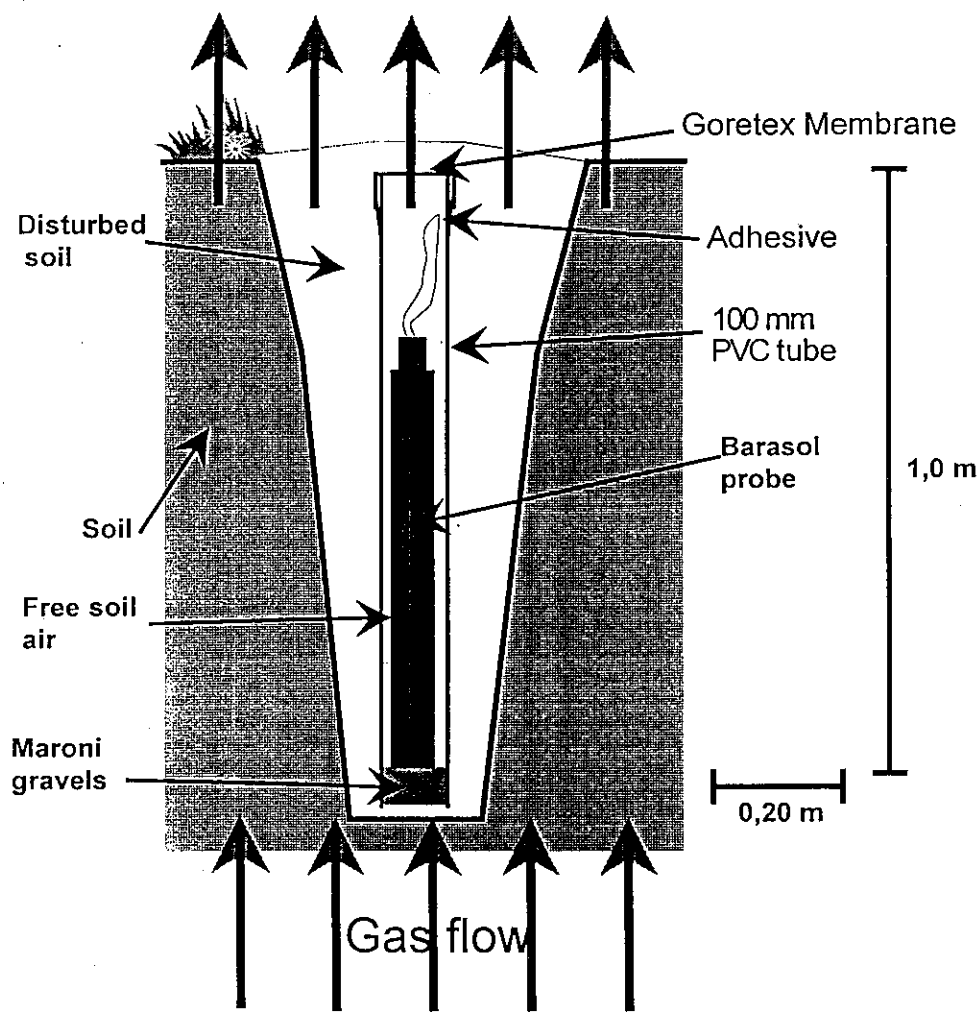
Map features and labels:

- Contour lines: 1500, 1600, 1700, 1800, 1900, 2000, 2100, 2200, 2300, 2400, 2500, 2600, 2700, 2800, 2900, 3000, 3100, 3200, 3300, 3400, 3500, 3600, 3700, 3800, 3900, 4000, 4100, 4200, 4300, 4400, 4500, 4600, 4700, 4800, 4900, 5000, 5100, 5200, 5300, 5400, 5500, 5600, 5700, 5800, 5900, 6000, 6100, 6200, 6300, 6400, 6500, 6600, 6700, 6800, 6900, 7000, 7100, 7200, 7300, 7400, 7500, 7600, 7700, 7800, 7900, 8000, 8100, 8200, 8300, 8400, 8500, 8600, 8700, 8800, 8900, 9000, 9100, 9200, 9300, 9400, 9500, 9600, 9700, 9800, 9900, 10000
- Profiles: P5, B3, B1, F1
- Data points: 11501, 10619, 20105, 26786, 22015, 22494, 32523, 33670, 20600, 3213, 15500, 22200, 21753, 19083, 2980, 2738, 18130, 17871, 19463, 5094, 22274, 7008, 15836, 8475, 24588, 16243, 2405, 5624, 21635, 18140, 15000

Grand Santi - July 1996
Soil gas survey - radon content

[illegible]

Figure 4



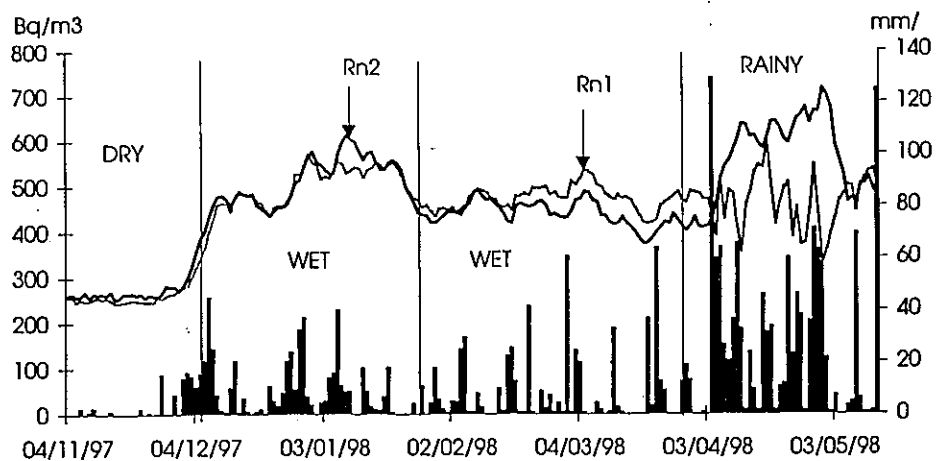


Figure 5

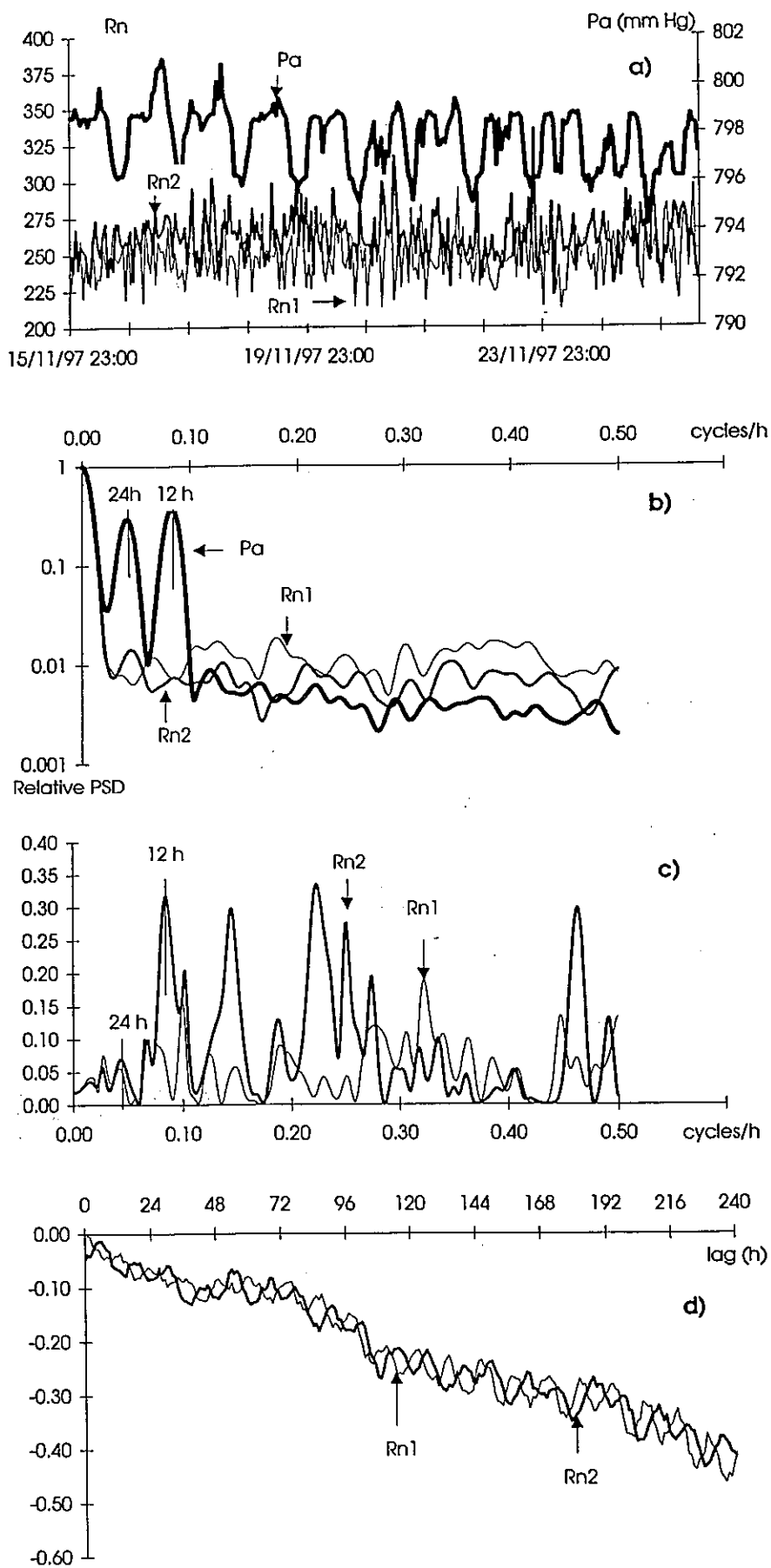


Figure6

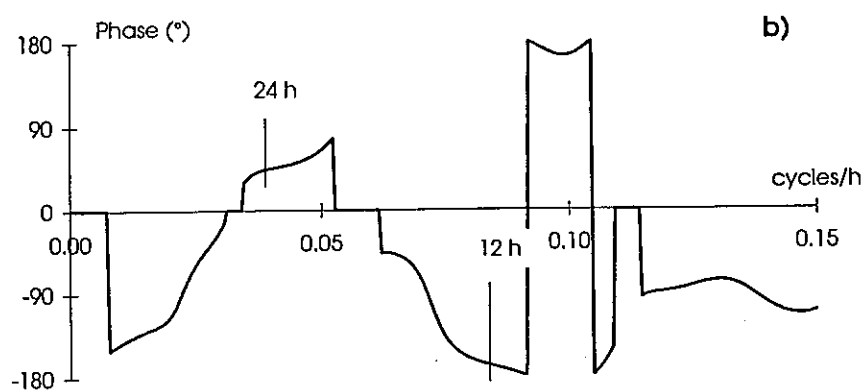
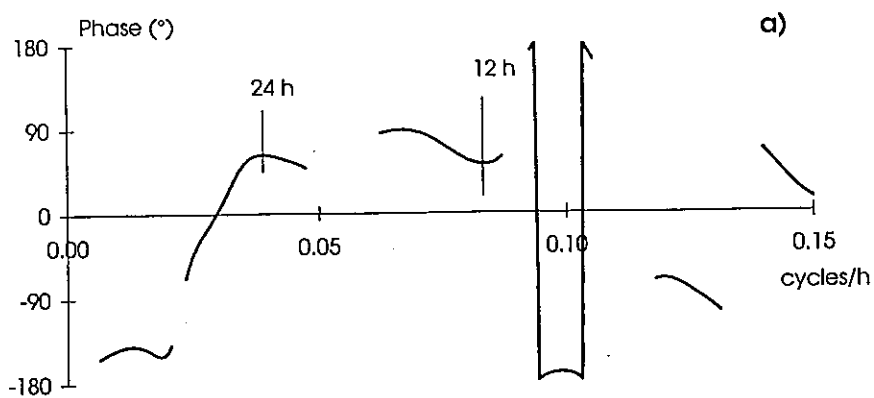


Figure7

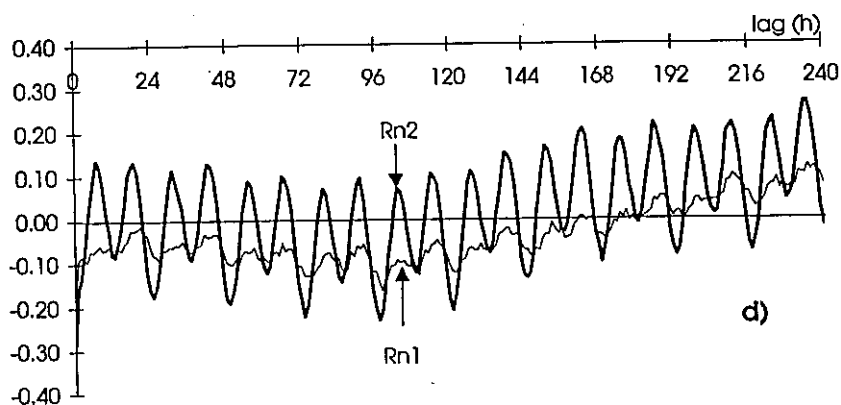
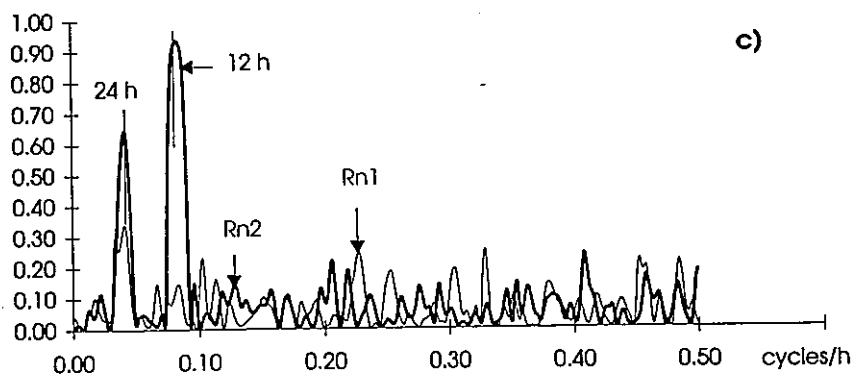
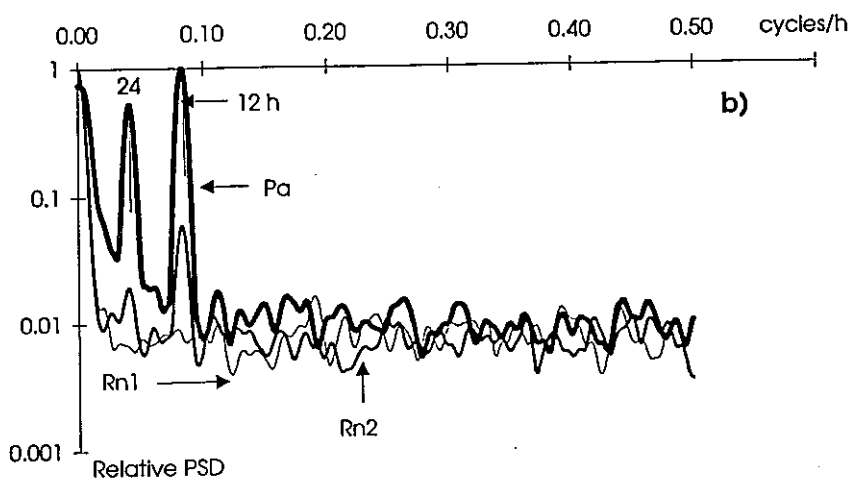
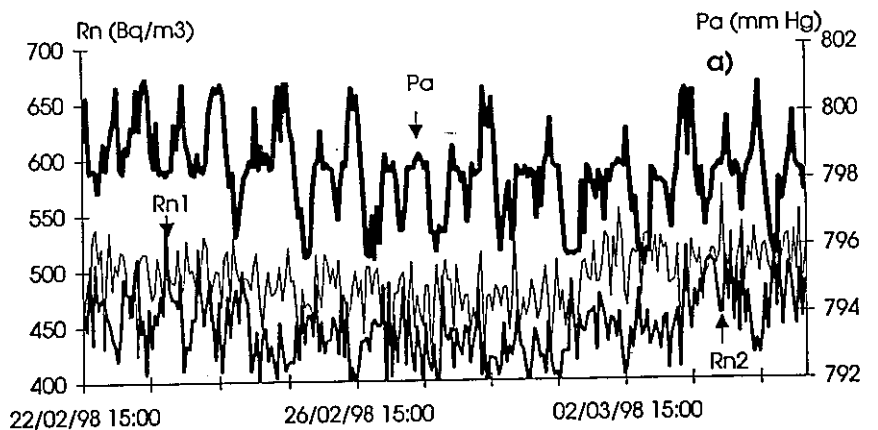


Figure8

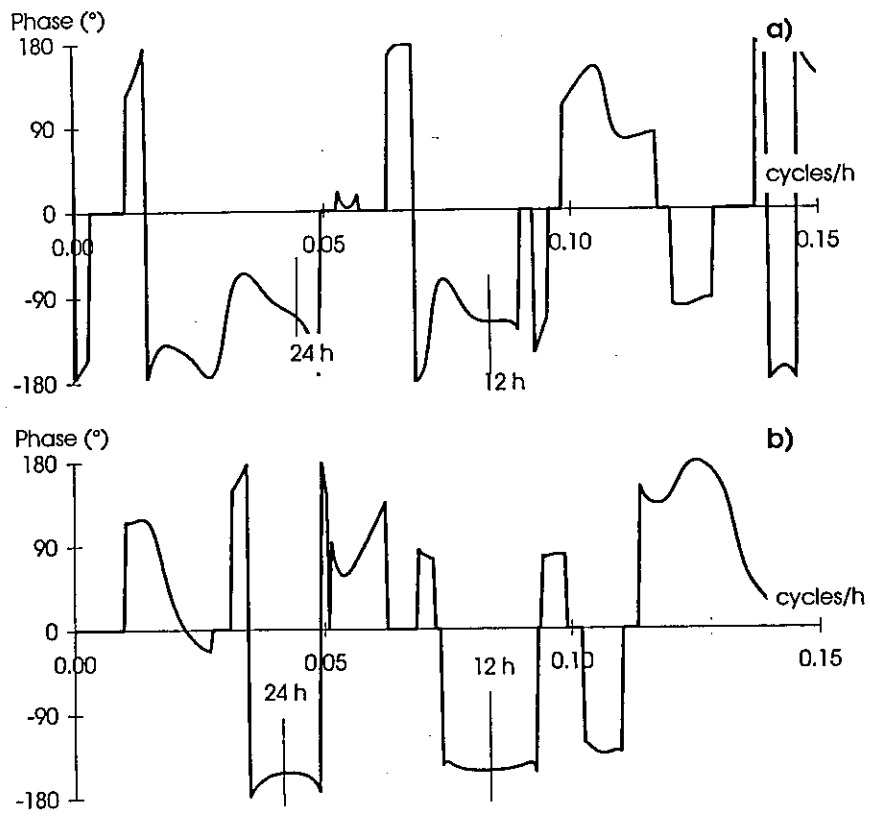


Figure9

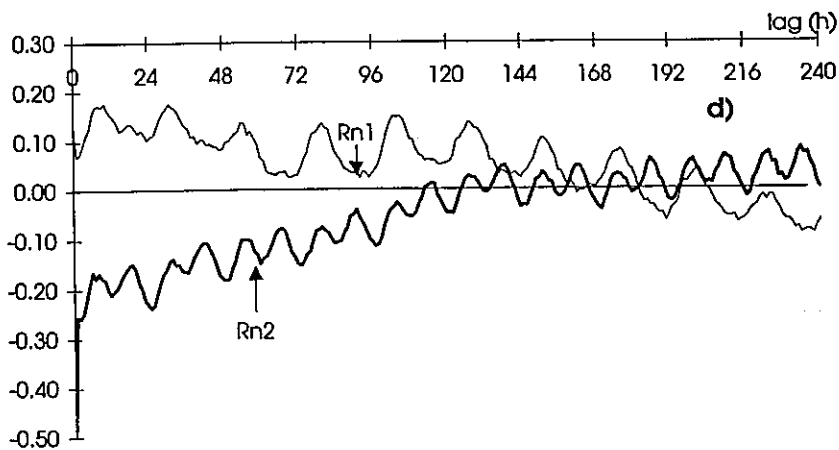
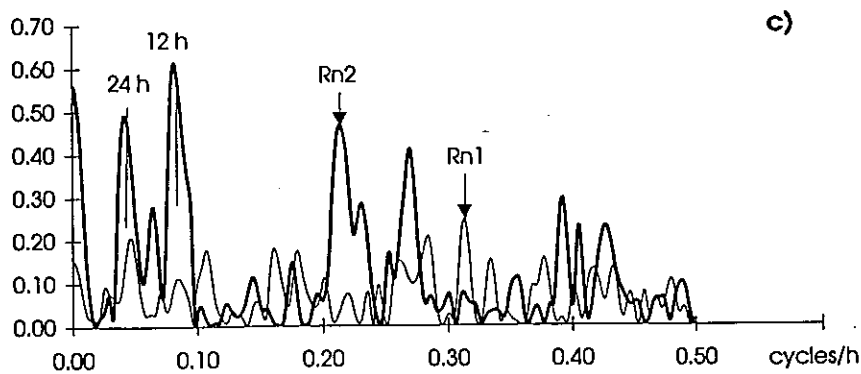
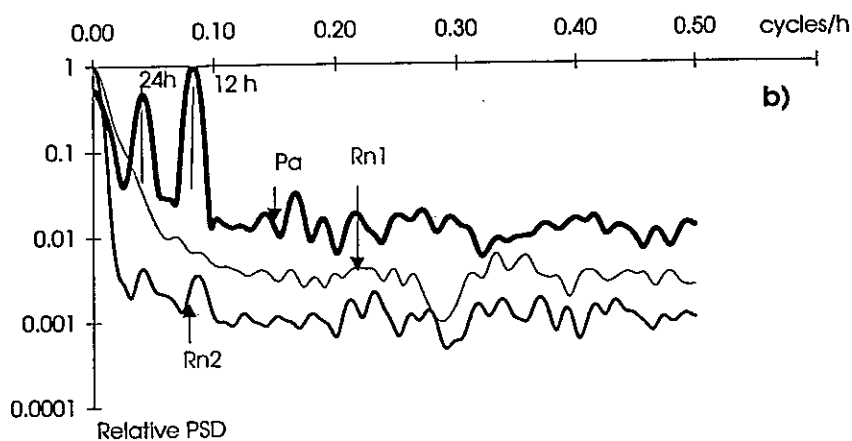
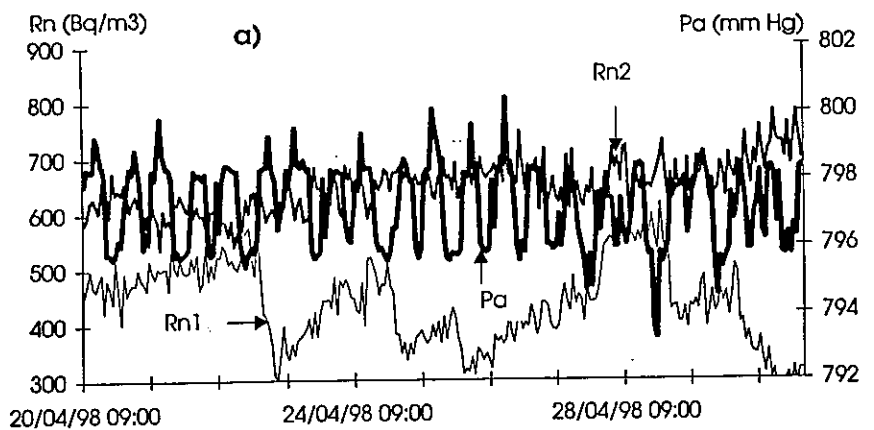


Figure10

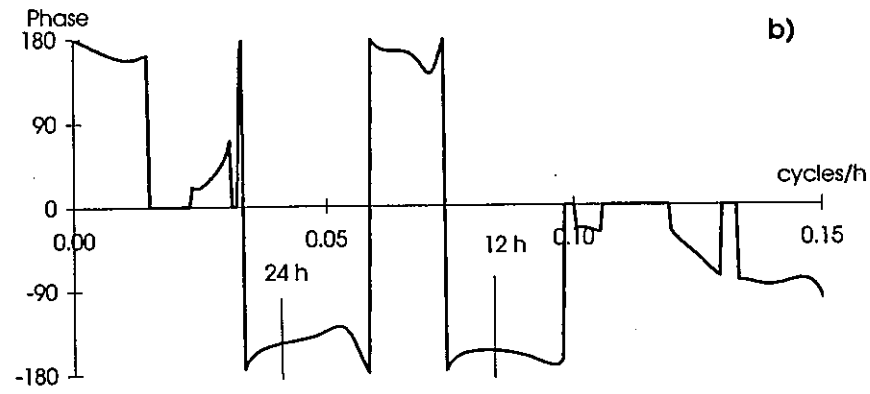
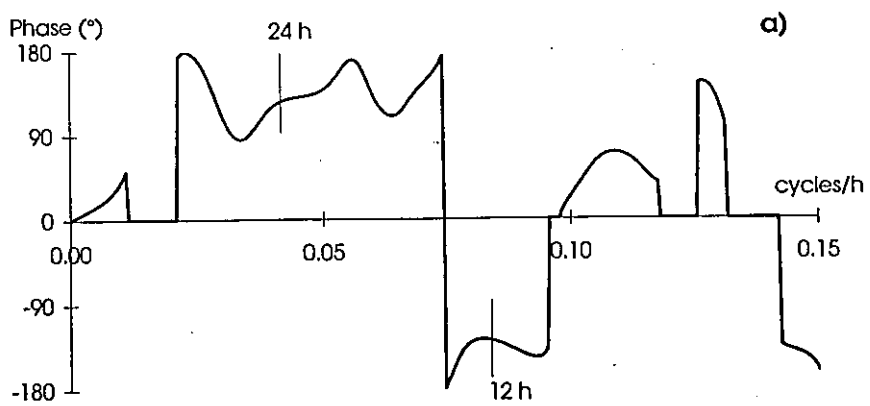
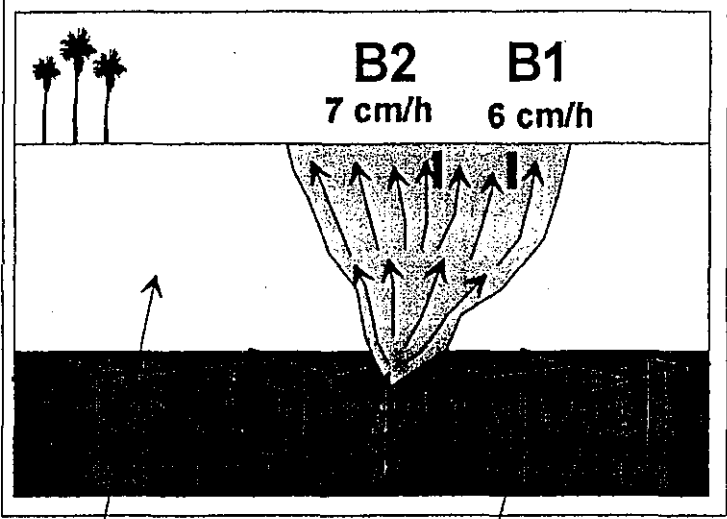


Figure11

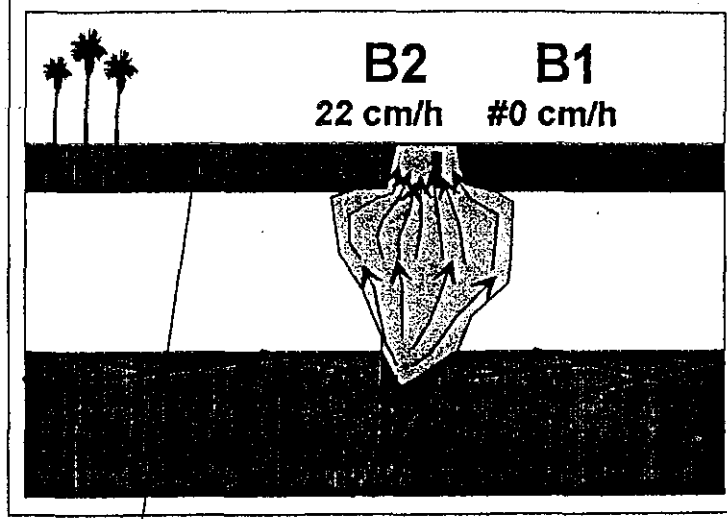
DRY SEASON



Weathered zone

Hardrock

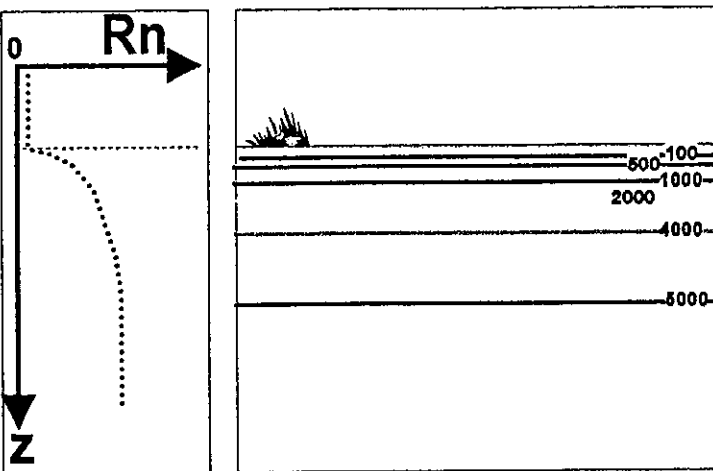
RAINY SEASONS



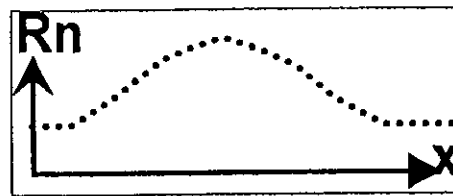
Wet soil

Figure 12

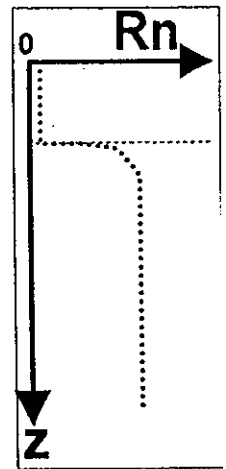
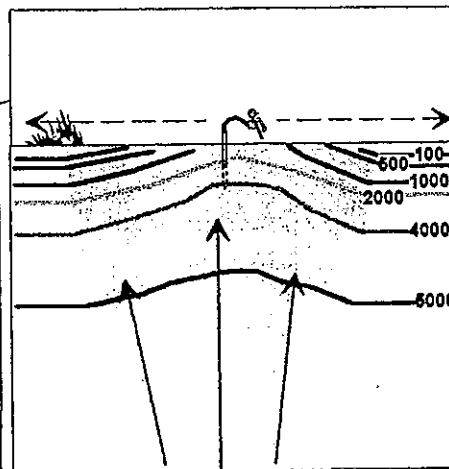
Diffusive context



Advective context



R_n survey ($p = 0.5$ m)



Geochemistry of the Maroni River (French Guiana) during the low water stage: implications for water–rock interaction and groundwater characteristics

P. Négrel^{a,*}, P. Lachassagne^b

^aBRGM/EAU/GRI, Avenue C. Guillemin, BP 6009, 45060 Orleans Cedex 2 France

^bBRGM/EAU/RMD, 1039, Rue de Pinville, 34000 Montpellier, France

Received 11 November 1999; revised 21 July 2000; accepted 21 August 2000

Abstract

The Maroni River, draining a basin of 60,000 km² and flowing down to the Atlantic Ocean between French Guiana and Surinam, was studied during a low flow period using the chemical and isotopic composition of its dissolved load. The dissolved concentrations of major ions (Cl, SO₄, NO₃, HCO₃, Ca, Na, Mg, K), trace elements (Rb and Sr), stable isotopes (O and D) and strontium isotopes (⁸⁷Sr/⁸⁶Sr) were determined on samples from the main stream of the river and its tributaries and from groundwaters collected in wells and two boreholes.

The total dissolved solid (TDS) and the sum of cations Σ^+ agree with those summarised for the major Guyanan rivers, the Orinoco and Amazon. On a TDS vs. Na/Na + Ca diagram, all the data from the Maroni catchment plot in the precipitation dominance field close to the plots of the Tefe and Negro rivers. The groundwaters collected from wells largely mimic the surface waters and may represent alluvial groundwater along the Maroni terraces, whereas the groundwaters collected from the boreholes show clearly higher Σ^+ values and reflect an increase in water–rock interaction.

The river and groundwaters of the Maroni catchment have been isotopically enriched ($\delta^{18}\text{O}$ vs. $\delta^2\text{H}$) through evaporation, and the $\delta^{18}\text{O}$ and $\delta^2\text{H}$ can be used as mixing tracers of river waters within the catchment. After corrections for rainwater addition were computed for selected elements and for ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr ratios, using chloride as an atmospheric-input reference, the water–rock interaction along the Maroni catchment was investigated for cations and Sr isotopes. © 2000 Elsevier Science B.V. All rights reserved.

Keywords: French Guiana; Maroni river; Dissolved load; Strontium isotopes

1. Introduction

The chemical and isotopic compositions of river waters reflect the different natural processes that provide chemical elements to the dissolved load, i.e. mainly the weathering of rocks and soils, atmospheric

inputs and anthropogenic disturbances (Drever, 1988). Focused on a better understanding of the exogenic cycle of the elements, numerous detailed studies have recently been carried out on large- to medium-size river systems, including the Amazon (Stallard and Edmond, 1987; Edmond et al., 1995; Gaillardet et al., 1997), the Congo (Négrel et al., 1993; Allegre et al., 1996), the Ganga–Brahmaputra (Sarin et al., 1989), the Indus (Pande et al., 1994) and the Huanghe (Zhang et al., 1990).

* Corresponding author.

E-mail addresses: p.négrel@brgm.fr (P. Négrel), p.lachassagne@brgm.fr (P. Lachassagne).

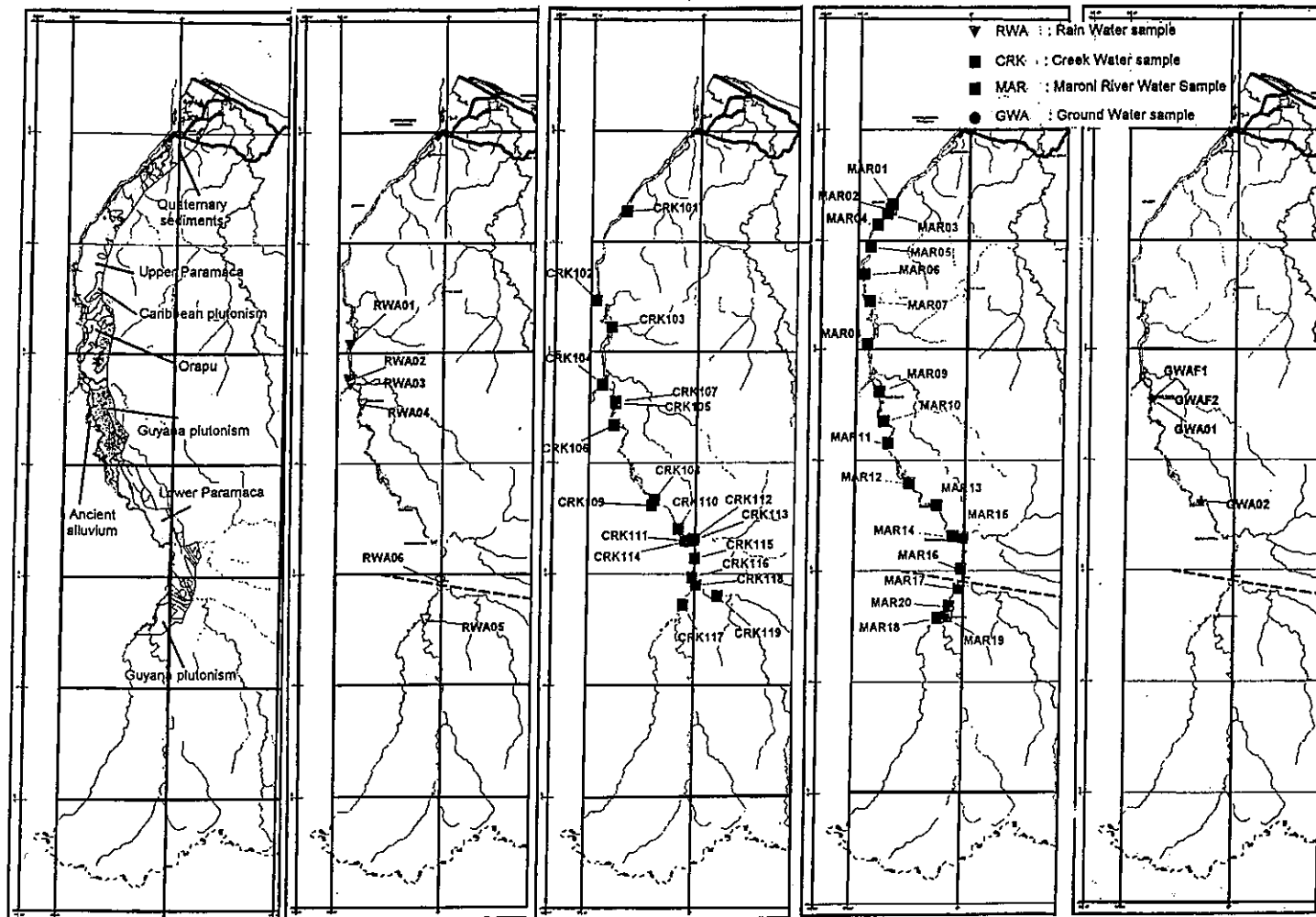


Fig. 1. Geological and lithological map of the Maroni River drainage basin.

Most of these studies focused on identifying the source(s) of chemical species in terms of atmospheric supply and chemical weathering of rocks (Stallard and Edmond, 1987; Sarin et al., 1989; Négrel et al., 1993; Edmond et al., 1995; Huh et al., 1998) or on reconstructing the unweathered continental crust (Allegre et al., 1996; Gaillardet et al., 1997). One final objective was to determine the flux of ions to the ocean, especially in order to reconstruct the fluctuation of the Sr isotopic curve during the past (Palmer and Edmond, 1992). With regard to small catchments, the application of geochemical tools may provide important constraints on runoff (Ben Othmann et al., 1997), on the different end-members, e.g. natural and anthropogenic (Négrel, 1997, 1999; Petelet et al., 1998), and on their respective contributions (Négrel and Deschamps, 1996).

The present work concerns the medium-size catchment of the Maroni River, which flows to the Atlantic Ocean and separates French Guiana and Surinam. Undertaken during a low-flow period, the study is based on major- and trace-element concentrations and stable (O, D) and Sr isotopes in the dissolved load. It is part of a research programme dealing with the characterisation of groundwater resources in French Guiana with regards to the poorly understood structure and functioning of hard-rock aquifers that will be exploited in the future: the present use, by the inland population, of river water for drinking induces important health impacts and therefore groundwater is of major importance with respect to a possible water supply to reduce these impacts. In this framework, the main purpose of the study was to constitute a geochemical reference for the water. In more detail, the objectives of the work were to: (i) characterise the atmospheric inputs over the catchment in order to improve the previous study carried out near the coast at Cayenne in 1995 (Négrel et al., 1997); (ii) characterise both the chemical and isotopic compositions of the main channel of the Maroni River and its tributaries to provide a background of the water quality; (iii) characterise, through all of the small tributaries, the chemical and isotopic signature of the water–rock interaction; and (iv) provide (primarily) information, from a small number of boreholes and shallow wells, on available groundwater.

2. General settings of the Maroni catchment

The Maroni catchment occupies the western part of the French Guiana with the 400-km-long Maroni River draining an area of around 60,000 km² and forming the frontier with Surinam (Fig. 1). The main channel of the Maroni River near Antécume Pata, in the south of French Guiana, is formed by the junction of the Litany and Marouini rivers. The main tributaries are the Tampock, the Inini, and the Abounami on the right bank, and the Tapanahoni on the left bank.

Small fluctuations in altitude are observed along the river course resulting in a gentle slope (Palvadeau, 1998); 250 km inland the Maroni is at an altitude of only 100 m. The climate of the entire basin is humid tropical with two rainy seasons and two dry seasons due to the latitude fluctuations of the Intertropical Convergence Zone. During the rainy season, lasting from late December to July, the main rains are from April to June. The main dry season occurs from August to December, with very low precipitation rates in September and October. Less important dry period, the so-called “petit été de Mars” (small March summer), usually provides an attenuation of the precipitation rates. The mean annual rainfall over the Maroni basin is 2000–2500 mm and mimics the mean annual rainfall at Cayenne (around 3000–3500 mm; data from Météo-France). Approximately 85% of the rainfall occurs during the rainy season. The rainfall during the dry season occurs as mainly as thunderstorms.

Mean air temperature is fairly uniform throughout the year (around 25–28°C) with mean relative humidity reaching 80%. The total annual effective rainwater is thus around 1000 mm yr⁻¹ and leads to a concentration factor of almost 2 resulting from rainwater evapotranspiration (data from Météo-France). This ratio is similar to that used by Gaillardet et al. (1997) in the Amazon Basin.

French Guiana covers 10% of the Guayana Shield, which represents the northern extension of the Amazonian Platform (Gibbs and Barron, 1993; Edmond et al., 1995; Deckart et al., 1997). The Guayana Shield (Fig. 2), encompassing Guyana, Surinam and French Guiana, mainly comprises three rock complexes: the Imataca Archaen gneiss (3.4–2.7 Ga), the Lower Proterozoic volcano-sedimentary terrains

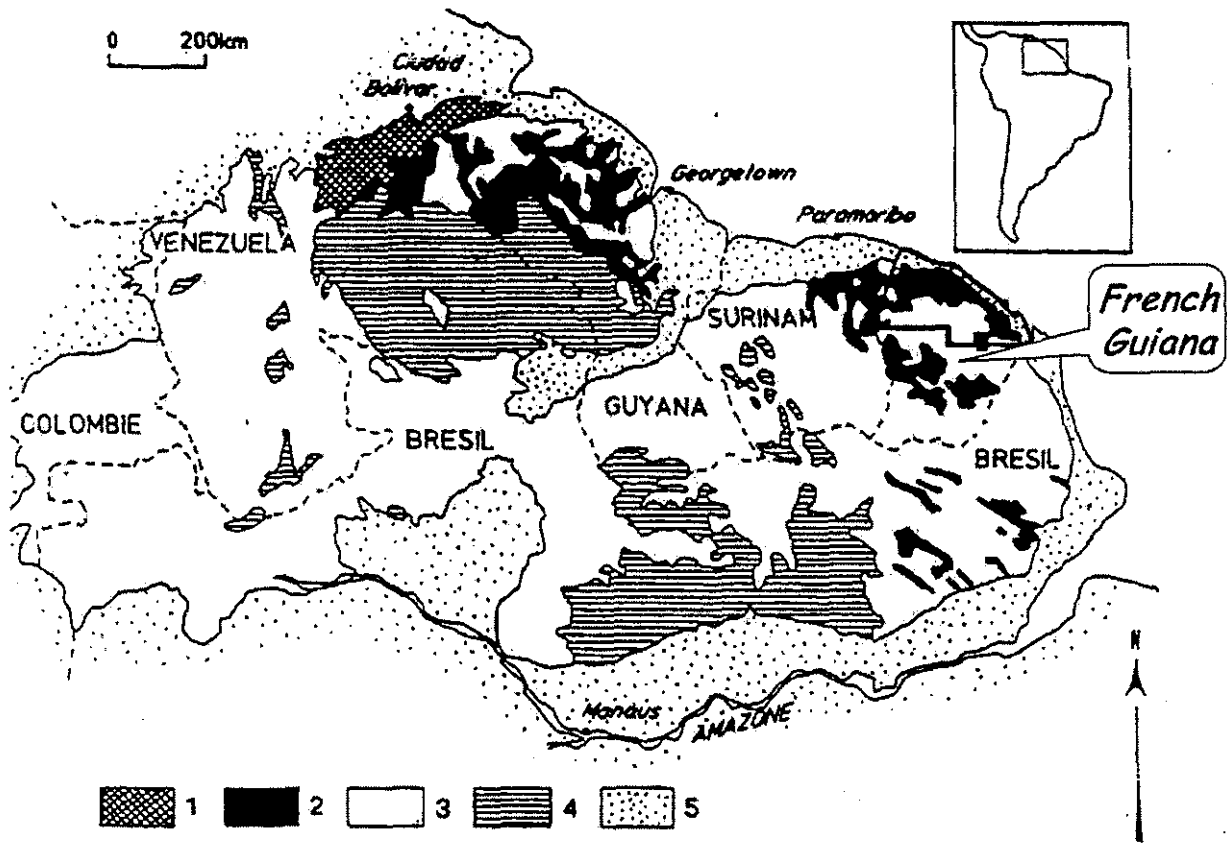


Fig. 2. Geological features of the Guayana Shield (from Gibbs and Barron, 1993). 1: Imataca archaen complexes, 2: Greenstone belt, 3: Granitic and metamorphic Paleoproterozoic rocks, 4: Detritic and granitic Mesoproterozoic rocks, 5: Meso and Cenozoic sediments.

and granite-gneiss rocks (2.3–1.9 Ga), and the Middle Proterozoic continental deposits and magmatic rocks (1.9–1.5 Ga). With regard to its weathered substratum, which is composed only of Lower Proterozoic (2.5–1.9 Ga) igneous and metamorphic rocks, French Guiana is similar to the Guayana Shield drained by the Orinoco (Edmond et al., 1995). In slightly more detail, the geology of the French Guiana can be summarised as four different units (Milési et al., 1995):

- the Cayenne Island series, limited to the Cayenne area;
- the Lower Paramaca (P) of mainly metavolcanic rocks (basic and acid) and rare sediments;
- the Upper Paramaca (S) and Orapu comprising schists, mica schists, quartzites, conglomerates, metagraywackes, metasiltites and rare meta-volcanic rocks (meta-basalt, amphibolite);

- plutonic intrusions of gabbro-diorite, granite and granodiorite from the “Guyana plutonism”, and granitoid, granodiorite and tonalite from the “Caribbean plutonism”.

The climatic and geodynamic conditions over the Guayana Shield since the Cretaceous have induced the extensive development of 50–100-m-thick alterites masking the substratum. Nevertheless, recent Quaternary uplift (Marot, 1989; Palvadeau, 1998) mainly linked to the loading effect of the Atlantic passive margin by the Amazonian sediment cone (Driscoll and Karner, 1994; Palvadeau, 1998) has induced significant erosion and explains the drainage of the unweathered substratum by the Maroni River.

The main tributaries and several minor tributaries sampled during the survey (Fig. 1) drain one or more

Table 1

Geology of the catchments of the main Maroni River tributaries and several small tributaries sampled during the survey (after Marot, 1989; Milési et al., 1995) (P Lower Paramaca: meta-volcanic rocks (basalt, amphibolite) and rare sediments; S Upper Paramaca: schists, micaschists, quartzites, conglomerates, metagrauwackes, metasilites; $\zeta\theta$, $\zeta\gamma$, $\delta\gamma$ Guyana plutonism: gabbro-dioritic intrusions, granit and granodiorite; γ Caribbean plutonism: granitoide, granodiorite and tonalite)

River name	REF	River bank	Bedrock
Sabakou	CRK 101	D	S
Gran Creek	CRK 102	G	S/P/G
Crique Beimann	CRK 103	D	$\zeta\gamma/\delta\gamma/P/G$
Tapanahoni	CRK 104	G	Not available
Crique Grand Santi	CRK 105	D	$\delta\gamma$
Crique Gonini	CRK 106	G	$\delta\gamma$
Crique Grand Santi N	CRK 107	D	$\delta\gamma$
Crique Poumoufou	CRK 108	D	P
Assici Creek	CRK 109	G	P
Crique Saina	CRK 110	D	P
Crique Deodad	CRK 111	D	P
Crique	CRK 112	D	P
Crique Inini	CRK 113	D	P/ $\gamma/\zeta\gamma/S$
Crique Maripasoula	CRK 114	D	P
Crique	CRK 115	D	P
Yan Creek	CRK 116	G	P
Crique	CRK 117	D	$\zeta\gamma/\zeta\theta$
Tampock	CRK 118	D	$\zeta\gamma/\zeta\theta/\delta\gamma/P/S$
Tampock	CRK 119	D	$\zeta\gamma/\zeta\theta/\delta\gamma/P/S$

lithologies and the geology of their catchments is indicated in Table 1.

The groundwater resources within the Maroni River catchment are typical of those of tropical hard rock settings and are therefore modest. The alluvia have a high clay content, mainly due to the nature of the sediments in tropical settings and also due to local weathering, and are relatively thin (mainly less than 5 m) and are of reduced lateral extent; they therefore account for only small volume of groundwater in the catchment. In addition, because of present erosion conditions, the groundwater level in the alluvia is frequently very low during low-water stages. Consequently, these formations do not seem to constitute a significant aquifer and it is noteworthy that most of the village wells that tapped these aquifers are now abandoned. Most of the groundwater resource is located in the crystalline bedrock.

The alterites, which constitute the upper compartment of the bedrock aquifers, have an effective porosity of a few percent and thus a water storage function.

The unweathered bedrock of comprising the lower compartment of the aquifers shows locally good permeability where it is fractured and it is from here that groundwater can be best abstracted by pumping. The use of appropriate methodologies for siting water wells (Lachassagne et al., 2000a) has had a good rate of success (Lachassagne et al., 2000b) in supplying villages and small towns with wells yielding 5 to more than 15 m³/h of high-quality water that does not require costly treatment.

3. Sampling procedures and analytical methods

3.1. Sampling procedure for rain, river and ground waters, field measurements

Rainwaters were collected in precleaned polyethylene bags from the beginning to the end of the rainfall. Rain and river water samples were filtered on site through 0.2 μ m acetate cellulose filters and stored in precleaned polypropylene bottles. The samples for cation and isotope measurements were acidified to pH 2 with ultrapure HNO₃, and one bottle of each sample (not acidified) was kept for anion determination. Groundwater samples were collected from shallow wells during the 1996 survey. Later, two deep wells (F1 to 46 m and F2 to 52 m) were drilled through the bedrock in Grand Santi (Fig. 1) with groundwater abstracted from fractures of the unweathered bedrock being collected during pumping tests. The procedure for the collection and treatment of groundwater was similar to that used for rain and river water.

Electrical conductivity and water temperature were measured in the field with a WTW LF96 microprocessor conductivity meter standardised to 20°C. The pH was measured on site with a combined Ingold pH electrode and Orion 250 pH-meter regularly calibrated using two standard buffers. HCl titration and Gran's method were used in the field for the determination of the total alkalinity (hereafter referred to as HCO₃).

3.2. Major- and trace-element determination, stable and strontium isotopic measurements

Chemical analysis of the water samples was carried out by capillary ion electrophoresis for major cations

Table 2

Data concerning the major and trace elements and the stable and strontium isotopic ratios in the six rain events sampled in the Maroni catchment during this study. Id corresponds to the detection limit, nd corresponds to non determined value

Locations	Ca	Na	Mg	K	Cl	SO ₄	NO ₃	HCO ₃	Sr	⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Sr
Apagui	10.0	126.1	Id	33.3	154.9	2.1	3.2	5.0	0.016	0.711598
Manbari	15.0	121.7	8.3	23.1	104.2	9.4	8.1	Id	0.39	0.711780
Poligodou Soula	10.0	121.7	4.2	35.9	101.4	4.2	1.6	Id	0.023	0.711525
Grand Santi	0.0	13.0	Id	Id	11.3	Id	Id	14.0	0.003	0.714936
Antecume Pata	7.5	100.0	Id	43.6	78.9	2.1	1.6	Id	0.013	nd
Elae	2.5	21.7	Id	10.3	16.9	Id	Id	0.0	0.006	nd

and anions (Pantsar-Kallio and Manninen, 1995) and by atomic absorption spectrometry for Sr. Precision was greater than $\pm 5\%$ for the determination of major elements and 10% for Sr measurements.

The standard procedure used by BRGM was adopted for the chemical separation and mass spectrometry of strontium. Briefly, Sr was separated using a cation exchange column (Dowex AG50X8) with HCl 2N as eluant. The total blank for Sr was less than 0.5 ng for the entire procedure (sampling, filtration, storage and chemical separation). After chemical separation, 1/5 of the sample was loaded onto a single tungsten filament and analysed using a Finnigan MAT 262 multiple collector mass spectrometer. The ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr ratios were normalised to a ⁸⁶Sr/⁸⁸Sr ratio of 0.1194. The overall precision of the ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr determination is approximately $\pm 10 \times 10^{-6}$ (2σ errors). The reproducibility of ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr measurement was tested by duplicate analyses of the NBS 987 standard; the mean value obtained during the study was $0.710227 \pm 17 \times 10^{-6}$ (2σ , $n = 70$).

4. Results

4.1. Rainwater chemistry

The rainwaters over French Guiana were studied by two methods and a sampling strategy was developed so as to obtain the most representative rain input in the Maroni catchment.

Rainwaters had been collected over a period of one year (1995) at Cayenne (Négrel et al., 1997) and analysed for major elements and stable isotopes. Electrical conductivity in the samples ranged from 3 to 70 $\mu\text{S}/\text{cm}$ and pH from 4.7 to 6.5. Because chloride

in the rainwater in this environment comes entirely from seasalts without evaporite deposits, the Xi/Cl ion ratios (where Xi represents measured anions and cations) enable a characterisation of the rainwater source(s) as evidenced by Négrel et al. (1997). Thus:

- the mean Na/Cl, Mg/Cl, SO₄/Cl and NO₃/Cl ratios differ slightly from that of seawater;
- the HCO₃/Cl ratio is at least one order of magnitude greater than that of seawater;
- the mean Ca/Cl ratio differs significantly from that of seawater and a terrestrial input of Ca dust must be considered;
- the mean K/Cl ratio is one order of magnitude greater than that of seawater, which can be linked with the vegetal exudation of K originating primarily from the weathering of rocks, as shown by Crozat (1979).

The stable isotopes $\delta^2\text{H}$ and $\delta^{18}\text{O}$ reveal a good relationship relative to the monthly rainfall and periodic rainfall events with an equation $\delta^2\text{H} = 10.43 + 7.72\delta^{18}\text{O}$, $R = 0.99$ (Négrel et al., 1997).

During the present study, a transect survey was carried out along the Maroni River from the coast to around 300 km inland and six complete rain events were sampled in two different geographic regions (Fig. 1): one located around Grand Santi, 165–185 km from the ocean, (Apagui, Manbari, Poligodou Soula and Grand Santi samples), and the other near Elaé-Antécume Pata to the south, 270–290 km from the ocean (Elaé and Antécume Pata samples). This transect rain sampling yielded electrical conductivities ranging from 7 to 31 $\mu\text{S}/\text{cm}$ and pH in the range 4.78–7.84.

Table 2 summarises the major- and trace-element

Table 3

Rain data from Cayenne (Négrel et al., 1997) and the Maroni catchment (this study). All mean values ($\mu\text{mol/l}$) are arithmetic mean excepted for the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios which were pondered by the Sr content. Number in brackets refers to the standard deviation, ld corresponds to the detection limit, nd corresponds to non-determined value

	Mean value in the annual survey in Cayenne ($n = 12$)	Mean value in the Maroni survey ($n = 6$)
Cl	124.7 (64.9)	77.9 (55.4)
SO ₄	7.9 (4.9)	4.4 (3.4)
NO ₃	4.8 (4.3)	3.6 (3.1)
Ca	11.6 (9.7)	7.5 (5.4)
Na	100.6 (59.2)	84.1 (52.5)
Mg	14.9 (14.3)	6.3 (2.9)
K	36.1 (40.1)	29.2 (12.9)
Sr	nd	0.017 (0.01)
$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	nd	0.711806

contents, and the stable and strontium isotopic compositions in the six rain events. All contents fluctuate slightly, except for the rain sample collected in Elaé which exhibits low concentrations. The Sr contents, only analysed during this survey, also fluctuate slightly, again excepting the sample from Elaé. The $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios range from 0.71153 to 0.71494 on four samples.

Table 3 summarises the mean values and standard deviation obtained in the Cayenne and Maroni surveys. Thus, notwithstanding the propagate errors on the data (e.g. around 3% of the ratio):

- the mean Na/Cl and Ca/Cl ratios for both the Maroni (this study) and Cayenne (Négrel et al., 1997) surveys are greater than that of seawater, reflecting an input of these elements from the continent as shown in the annual study (Négrel et al., 1997);
- the mean Mg/Cl ratio differs slightly from that of seawater in the Maroni survey, but not in the Cayenne survey (Négrel et al., 1997);
- the mean K/Cl ratio is greater than that of seawater due to the vegetation (Croizat, 1979);
- the mean SO₄/Cl and NO₃/Cl are greater than that of seawater as previously shown in coastal environments (Galloway and Gaudry, 1984).

On comparing the two mean chemical compositions (Table 3), it is seen that all the mean values associated with the standards deviations were similar in the Maroni survey and in the Cayenne survey.

The stable isotopes $\delta^2\text{H}$ and $\delta^{18}\text{O}$, measured in the Maroni survey (Table 2) fall in the upper part of the range observed in Cayenne (Négrel et al., 1997). All rain samples collected in French Guiana, i.e. 10 monthly and 3 individual rains in Cayenne (Négrel et al., 1997) and 6 rain events in the Maroni catchment (this study), show a good relationship with an equation $\delta^2\text{H} = 9.22 \pm 2.10 + 7.34 \pm 0.56\delta^{18}\text{O}$, where $n = 19$ and the coefficient of correlation (r) is 0.99. The deuterium (d) excess (10.9‰) is lower than that found in Amazonian rainwaters by Martinelli et al. (1996) where d ranged between 11.8 and 15.8.

Rainwaters in the Amazon Basin have been widely investigated and the similarity with the Maroni Basin allows a comparison. Stallard and Edmond (1987) noted a decrease in the rainwater Cl content with increasing distance inland, with 50 $\mu\text{mol/l}$ at 250 km inland and 10 $\mu\text{mol/l}$ at 1500 km inland. This value in the Amazon Basin agrees with the mean Cl content in rainwaters in the Maroni Basin (77.9 $\mu\text{mol/l}$, $n = 6$) and at Cayenne (124.7 $\mu\text{mol/l}$, Négrel et al., 1997). When compared to seawater values, the Amazon rainwaters appear enriched in Ca, Mg and Sr (summary in Gaillardet et al., 1997), as do those from French Guiana. Rainwaters collected in the National Centre for Spatial Studies (Kourou, French Guiana) exhibit similar enrichments with respect to Saharan dust input (Lacaux and Delmas, oral communication). Such enrichment has also been demonstrated in the Congo Basin (Négrel et al., 1993) and confirms the existence of carbonate-rich aerosols that control the chemical composition of rainwaters. We shall return later to this subject of enrichment and its implication in atmospheric input correction.

4.2. Dissolved load chemistry in the main stream of the Maroni River and tributaries

Electrical conductivity is a useful indicator of the total content of ions and of dissolved inorganic components (Meybeck, 1986). As illustrated in Table 4, the tributaries of the Maroni River show large variations ranging from 20 $\mu\text{S/cm}$ (Tapanahoni) to between 60 and 100 $\mu\text{S/cm}$ (MAR102, 108, 114,

Table 4

Master variables from the Maroni catchment (main stream and tributaries): temperature T (in °C), electrical conductivity C (in $\mu\text{S}/\text{cm}$ standardised to 20°C), pH measured in field, nd corresponds to non determined value

Name	Distance shoreline (km)	REF	C ($\mu\text{S}/\text{cm}$)	T (°C)	pH	SPM (mg/l)
Maroni	0	MAR1	26.7	30.4	6.69	nd
Maroni	5	MAR2	26.4	31.0	7.31	nd
Maroni	10	MAR3	26.7	31.4	7.52	nd
Maroni	18	MAR4	26.9	30.5	7.15	5.6
Maroni	30	MAR5	26.6	30.6	7.36	nd
Maroni	45	MAR6	26.3	31.3	7.35	nd
Maroni	60	MAR7	25.6	33.2	7.15	5.8
Maroni	90	MAR8	26.1	30.1	6.50	3.4
Maroni	110	MAR9	27.5	31.4	6.70	8.3
Maroni	130	MAR10	26.7	31.0	6.32	nd
Maroni	145	MAR11	28.1	28.4	6.27	nd
Maroni	160	MAR12	27.0	30.3	6.45	14
Maroni	185	MAR13	26.8	29.7	5.88	nd
Maroni	200	MAR14	26.3	30.3	6.5	18.2
Maroni	215	MAR15	23.8	30.7	7.47	nd
Maroni	230	MAR16	23.2	30.4	7.20	2.7
Maroni	240	MAR17	22.4	30.5	7.33	nd
Litany	260	MAR18	21.0	28.9	6.85	2.8
Marouini	265	MAR19	28.5	29.9	7.28	4.3
Maroni	250	MAR20	25.3	29.0	7.17	2.7
Sabakou		CRK101	32.0	29.0	6.58	nd
Gran Creek		CRK102	97.6	34.0	7.64	nd
Crique Beimann		CRK103	49.0	29.8	7.08	20.9
Tapanahoni		CRK104	20.5	28.3	6.14	3.5
Crique Grand Santi		CRK105	38.7	27.6	5.6	nd
Crique Gonini		CRK106	31.0	29.6	6.10	nd
Crique Grand Santi N		CRK107	31.1	24.3	5.52	nd
Crique Poumoufou		CRK108	65.3	33.4	6.60	nd
Assici Creek		CRK109	27.7	25.6	6.30	nd
Crique Chaina		CRK110	44.4	24.3	6.02	nd
Crique Deodad		CRK111	40.0	25.5	6.51	nd
Crique		CRK112	36.5	25.2	6.98	nd
Crique Inini		CRK113	40.7	27.1	6.99	74
Crique Maripasoula		CRK114	66.0	26.9	6.50	nd
Crique		CRK115	69.2	25.6	7.42	nd
Crique		CRK116	32.0	24.2	7.10	nd
Crique		CRK117	nd	23.8	7.05	nd
Tampock		CRK118	38.2	29.1	7.13	10.7
Tampock		CRK119	38.1	29.5	7.15	nd

115). Electrical conductivity variations in the main stream of the Maroni River relate to the input of the tributaries and correlate with the fluctuations of the Cl content ($r = 0.68$); for example, the Inini and Tapanahoni, respectively, induce an increase and a decrease in the Maroni values.

The pH ranges from 6.4 to 7.5 in the Maroni River (Table 4), with the lower values correspond-

ing to the intermediate part of the catchment. The tributaries show an identical range in pH as the Maroni River. Transverse measurements of electrical conductivity, pH and water temperature made along the Maroni River ($n = 10$) and three tributaries (Crique Beimann, Tapanahoni and Crique Gonini) all revealed a good homogeneity of the water masses with regard to the different

Table 5

Chemical composition (in $\mu\text{mol/l}$) and stable and strontium isotopic compositions of the dissolved load from the Maroni catchment (main stream and tributaries), ld corresponds to the detection limit

REF	Ca ($\mu\text{mol/l}$)	Na ($\mu\text{mol/l}$)	Mg ($\mu\text{mol/l}$)	K ($\mu\text{mol/l}$)	Cl ($\mu\text{mol/l}$)	SO ₄ ($\mu\text{mol/l}$)	NO ₃ ($\mu\text{mol/l}$)	HCO ₃ ($\mu\text{mol/l}$)	Sr	⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Sr	$\delta^2\text{H}$ (‰ (SMOW))	$\delta^{18}\text{O}$ (‰ (SMOW))
MAR1	37	117	33	31	53	4	3	191	0.25	0.722875	−14.0	−2.9
MAR2	37	113	33	31	53	3	2	492	0.24	0.724283	−13.2	−2.9
MAR3	37	117	33	33	53	3	ld	21	0.24	0.724252	−13.6	−2.8
MAR4	35	113	33	31	53	3	ld	345	0.24	0.724393	−13.0	−3.0
MAR5	42	108	29	28	51	3	ld	151	0.19	0.724539	−13.6	−3.0
MAR6	37	134	33	31	51	2	ld	129	0.20	0.724737	−13.8	−3.0
MAR7	37	117	29	31	51	2	ld	200	0.19	0.72492	−13.8	−3.0
MAR8	40	121	33	31	51	2	ld	243	0.20	0.724327	−14.4	−3.0
MAR9	42	126	37	28	51	3	ld	283	0.22	0.721889	−12.7	−2.8
MAR10	40	126	37	31	51	3	ld	240	0.19	0.721582	−13.4	−2.9
MAR11	42	122	33	31	51	3	ld	230	0.21	0.721374	−14.2	−3.0
MAR12	40	122	37	28	51	3	ld	188	0.22	0.720985	−15.2	−2.9
MAR13	42	122	37	33	53	3	ld	293	0.21	0.721786	−14.0	−3.1
MAR14	40	122	33	33	53	3	ld	206	0.22	0.722157	−13.4	−3.2
MAR15	32	100	25	33	51	3	ld	157	0.16	0.726758	−14.2	−3.1
MAR16	30	96	21	33	48	3	ld	185	0.18	0.729061	−15.3	−3.3
MAR17	27	100	17	33	48	4	ld	153	0.17	0.730773	−14.9	−3.4
MAR18	22	91	17	33	45	3	ld	146	0.15	0.734464	−15.6	−3.6
MAR19	37	104	25	31	48	2	ld	202	0.24	0.725131	−14.7	−3.3
MAR20	30	113	25	38	48	3	ld	109	0.16	0.728118	−16.1	−3.5
CRK 101	35	161	46	31	93	3	4.8	228	0.20	0.726314	−11.8	−2.8
CRK 102	230	274	208	20	144	7	3.2	913	0.46	0.707977	−12.3	−2.7
CRK 103	90	243	67	44	87	3	ld	349	0.45	0.711345	−11.8	−2.6
CRK 104	25	104	17	36	39	2	ld	166	0.13	0.742911	−16.3	−3.3
CRK 105	52	182	33	51	101	8	1.6	270	0.23	0.710626	−11.6	−2.9
CRK 106	45	139	33	36	53	1	ld	274	0.26	0.718173	−12.5	−2.9
CRK 107	40	161	25	36	121	14	ld	16	0.15	0.711036	−11.5	−2.9
CRK 108	110	143	129	20	90	4	ld	508	0.30	0.707818	−14.6	−3.4
CRK 109	40	117	29	36	73	8	ld	125	0.18	0.71199	−17.2	−3.8
CRK 110	75	104	92	28	84	9	8.1	356	0.24	0.708196	−14.6	−3.6
CRK 111	62	152	75	18	68	4	ld	308	0.36	0.705321	−11.7	−2.8
CRK 112	35	117	29	39	56	3	ld	143	0.17	0.722563	−14.6	−3.2
CRK 113	60	143	62	31	84	7	ld	234	0.28	0.70849	−14.2	−3.3
CRK 114	75	261	67	39	161	8	ld	343	0.48	0.706297	−9.3	−2.4
CRK 115	167	135	150	8	65	5	4.8	704	0.16	0.706961	−14.5	−3.3
CRK 116	52	113	50	18	59	4	ld	209	0.17	0.713024	−15.8	−3.1
CRK 117	60	100	67	10	53	3	ld	272	0.13	0.71263	−16.5	−3.7
CRK 118	55	156	50	31	70	3	ld	283	0.30	0.716168	−12.4	−2.8
CRK 119	55	152	46	36	73	3	ld	322	0.32	0.71646	−12.7	−2.7

parameters, indicating that the mixing of the water masses is fairly complete.

Table 5 shows the chemical composition of the dissolved load in waters from the Maroni catchment. The order of cation abundance was $\text{Na} > \text{Ca} > \text{K} > \text{Mg}$ in the Maroni River and $\text{Na} > \text{Ca} > \text{Mg} > \text{K}$ in the tributaries. For the anions, the order was $\text{HCO}_3 > \text{Cl} > \text{SO}_4 > \text{NO}_3$ in both the Maroni River and the tributaries. With regard to the content variability, Cl and K fluctuate less in the Maroni River (5 and 8%, respectively) than in the tributaries (around 40% for both), whereas Ca, Na, Mg, SO_4 and Sr fluctuate by 15–20% in the Maroni River and, for Ca, by as much as 70% in the tributaries. Total Dissolved Solids (TDS, mg/l) and the sum of the cations (Σ^+ , $\mu\text{eq/l}$) for the Maroni, with respective mean values close to 20.86 ± 6.15 mg/l and 280.1 ± 32.5 $\mu\text{eq/l}$, agree with those summarised by Berner-Kay and Berner (1987), Edmond et al. (1995) and Gaillardet et al., 1997 for the Guyana rivers, the Orinoco and the Amazon. On the TDS (mg/l) vs. $\text{Na}/(\text{Na} + \text{Ca})$ diagram developed by Gibbs (1970), all the data from the Maroni catchment plot in the precipitation dominance field close to the plot of the Tefe and Negro rivers with low TDS values and a $\text{Na}/(\text{Na} + \text{Ca})$ ratio close to 1.

Stable isotopes fall in the range -2.7 to -3.8‰ for $\delta^{18}\text{O}$ and -9.3 to -17.2‰ for $\delta^2\text{H}$ in both the Maroni River and its tributaries. Strontium isotopes ranged from 0.706297 (CRK114) to 0.742911 (CRK104) in the tributaries and from 0.720985 (MAR12) to 0.734464 (MAR18) in the Maroni main stream.

The concentration in suspended particulate matter (SPM) in the Maroni River during the low-water stage varied from 2.7 mg/l (MAR16, 18, 20) to 18.2 mg/l (MAR14). Two samples (MAR12 and 14), located in an area of river bed sand worked for gold, have the highest SPM concentrations. All other SPM concentrations are low (average 4.4 ± 2 mg/l) compared, for example, to the tributaries of the Congo or Amazon rivers (Négrel et al., 1993; Gaillardet et al., 1997). For the tributaries, the SPM concentration ranged from 3.5 (CRK104) to 74 mg/l (CRK113), the highest concentrations being clearly related to alluvial gold workings. It is noteworthy that the TDS always dominate the SPM by a factor ranging from 2.2 (MAR14) to 12 (MAR8), with the exception of sample CRK113 with a factor 0.7 (alluvial gold workings).

4.3. Groundwaters

Alluvial and/or alterite groundwaters collected in shallow wells at Grand Santi and Pompidou (Fig. 1, Table 6) showed weak fluctuations in the conservative parameters. Electrical conductivity, in the range 40–46 $\mu\text{S/cm}$, corresponds mostly to the values observed in the tributaries, but is clearly higher than that of the Maroni River. The pH values, from 5.00 to 5.99, were also weakly variable. Moreover, water samples collected in the shallow well at Grand Santi at two different periods of the year (November 1996 and March 1997) showed no fluctuations of the conservative parameters.

Groundwaters collected in the Grand Santi GWAF1 and GWAF2 boreholes showed higher values in electrical conductivity than the maximum value found in the Maroni catchment (97.8 $\mu\text{S/cm}$, CRK102). The pH reached neutrality in borehole GWAF2 (6.93) and falls within the range of values found in the Maroni catchment.

Table 7 summarises the chemical and isotopic compositions of the groundwaters. The order of cation abundance was $\text{Na} > \text{Ca} > \text{K} > \text{Mg}$ in the samples from the shallow wells, except in GWA203 (November 1996) where $\text{Mg} > \text{K}$. For the anions, the order was $\text{HCO}_3 > \text{Cl} > \text{NO}_3 > \text{SO}_4$. In the groundwater collected from the boreholes, the order of cation abundance was $\text{Ca} > \text{Na} > \text{K} > \text{Mg}$, except in samples from borehole GWAF1 (October 1997) where $\text{Na} > \text{Ca}$. For the anions, the order was $\text{HCO}_3 > \text{Cl} > \text{SO}_4$ with a lack of NO_3 . Well GWA201 exhibited similar chemical compositions in the samples collected in October 1996 and March 1997 for most elements, with exception of Cl and especially NO_3 , the latter increasing by a factor 12. Total dissolved solids (TDS, mg/l) could not be computed for samples GWA203, GWA201, GWAF1, GWAF2 (March 1997) because of the lack of HCO_3 measurements. Therefore we decided to examine the sum of the cations (Σ^+ , $\mu\text{eq/l}$) in the groundwater. The Σ^+ show a wide range with the lower values (400–470 $\mu\text{eq/l}$), noted in the shallow-well samples, being slightly higher than the range of Σ^+ observed in the surface waters from the Maroni catchment (200–300 $\mu\text{eq/l}$). Groundwater samples collected from boreholes F1 and F2 show clearly higher values (1600–2500 $\mu\text{eq/l}$) than those of surface water,

Table 6

Master variables in groundwaters from the Maroni catchment: temperature T (in °C), electrical conductivity C (in $\mu\text{S}/\text{cm}$ standardised to 20°C), pH measured in field

Name	REF	C ($\mu\text{S}/\text{cm}$)	T (°C)	pH
Oct-96				
Grand Santi	GWA201	40	28.5	5.80
Pompidou	GWA202	115	28.8	4.40
Pompidou	GWA203	46 ^a	19.7 ^a	5.99 ^a
March-97				
Grand Santi	GWAF1	146.9	26.4	6.60
Grand Santi	GWAF2	198.5	26.2	6.93
Grand Santi	GWA201	46	27.8	5.00

^a Determined in laboratory.

reflecting an increase in water–rock interaction. The groundwaters collected from the shallow wells largely mimic the surface waters and may represent waters from alluvial deposits within the Maroni terraces and/or waters from the bedrock alterites. The deeper groundwater differs largely from the shallow groundwater, although it does show relationships due to the fact that it partly originates from the alterite compartment. This is particularly the case for well F1 for which all the hydrogeological data suggest that the alterite compartment contributes significantly to the well flowrate.

Stable isotopes in the analysed groundwaters fall in the range -3.3 to -3.6‰ for $\delta^{18}\text{O}$ and -15.7 to -17.8‰ for $\delta^2\text{H}$. Strontium isotopes range from 0.703985 (GWAF2/10-97) to 0.710147 (GWA203, 10-96).

5. Discussion

5.1. Mixing processes in the Maroni catchment based on stable isotopes

The stable isotopic signature in continental waters is mainly controlled by precipitation input, evaporation and mixing processes (IAEA, 1981). The stable isotopes measured in the stream waters from the Maroni catchment are plotted in a classical $\delta^{18}\text{O}$ vs. $\delta^2\text{H}$ diagram (Table 5, Fig. 3). A few of the waters plot close to the local meteoric water line (LMWL, Négrel et al., 1997), although most show a significant

shift (close to 1.4‰) to the right of this line. These ^{18}O and ^2H enrichments are known to be linked to evaporation processes in soils (Maulé et al., 1994) and to forest evapotranspiration (Martinelli et al., 1996) rather than to surface evaporation from the river water masses (IAEA, 1981). Indeed, there is no direct relationship between the surface temperature of the water, which is generally lower in the small forest-covered tributaries than in the Maroni main stream, and the stable isotopic signature.

Thus we can conclude from the $\delta^{18}\text{O}$ vs. $\delta^2\text{H}$ values and the regression equations, which have shallower slopes than those of precipitation waters, that the river waters in the Maroni catchment have been isotopically enriched through evapotranspiration. The slope of the $\delta^{18}\text{O}$ – $\delta^2\text{H}$ relationship for the Maroni main stream and tributaries varies between 3.01 and 4.81 with an average value of 3.90 (Fig. 3, line b). Stable isotopes measured in waters from the Tocantins catchment (SE of French Guiana) are shown in Fig. 3 for comparison (data from Hieronimus et al., 1995). They show similar relationships with an $\delta^{18}\text{O}$ shift to the right of the LMWL (Hieronimus et al., 1995), although the regression equation yielded a slope of 4.3 (Fig. 3, line a), slightly different from that found in the Maroni catchment.

The Litany (MAR18) and Marouini (MAR19) rivers, and the residual mixing (MAR20) after their junction, plot near the LMWL; the highest $\delta^{18}\text{O}$ and $\delta^2\text{H}$ enriched water corresponds to sample MAR3. For the tributaries, samples CRK109 from Assici Creek (a medium-size tributary flowing from Surinam) and CRK110 from Crique Saïna (a small-size tributary flowing from French Guiana) plot on the LMWL, sample CRK117 from Crique Maripasoula (a very small tributary flowing from French Guiana) has the highest $\delta^{18}\text{O}$ and $\delta^2\text{H}$ enriched values (-2.4 and -9.3‰ , respectively). These different values are observed in tributaries located close to one to another and show the lack of relationship between the level of $\delta^{18}\text{O}$ and $\delta^2\text{H}$ enrichment and the location/size of the rivers.

Note that the plot of the groundwater samples shows the same relationship noted for the Maroni (Table 4, Fig. 3).

Owing to evaporation, the $\delta^{18}\text{O}$ and $\delta^2\text{H}$ can be used as mixing tracers within the catchment (IAEA, 1981). Fig. 4 illustrates the relationship between $\delta^{18}\text{O}$

Table 7
Chemical composition (in $\mu\text{mol/l}$) and stable and strontium isotopic compositions of groundwaters from the Maroni catchment, ld corresponds to the detection limit, nd corresponds to non determined value

Name	REF	Ca ($\mu\text{mol/l}$)	Na ($\mu\text{mol/l}$)	Mg ($\mu\text{mol/l}$)	K ($\mu\text{mol/l}$)	Cl ($\mu\text{mol/l}$)	SO ₄ ($\mu\text{mol/l}$)	NO ₃ ($\mu\text{mol/l}$)	HCO ₃ ($\mu\text{mol/l}$)	Sr ($\mu\text{mol/l}$)	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	$\delta^2\text{H}$ (‰ (SMOW))	$\delta^{18}\text{O}$ (‰ (SMOW))
Oct-96													
Grand Santi	GWA201	85.0	169.6	20.8	12.82	70.4	2.1	9.68	391	0.32	0.708130	-15.7	-3.5
Pompidou	GWA 203	65.0	247.8	8.3	20.51	180.3	2.1	30.65	ld	0.14	0.710147	-16.8	-3.3
March-97													
Grand Santi	GWA-F1	475.0	365.2	187.5	17.95	45.1	1.0	ld	nd	1.03	nd	-16.4	-3.6
Grand Santi	GWA-F2	782.5	465.2	208.3	20.51	53.5	7.3	ld	nd	1.48	nd	-17.8	-3.6
GrandSanti	GWA 201	100.0	152.2	33.3	48.72	149.3	3.1	119.3	nd	0.57	nd	-16.6	-3.4
Oct-97													
Grand Santi	GWA-F1a	402.5	426.1	200.0	ld	59.2	4.2	ld	1754	0.91	0.704100	nd	nd
Grand Santi	GWA-F1b	535.0	478.3	254.2	ld	62.0	6.3	ld	2197	1.14	0.704200	nd	nd
Grand Santi	GWA-F2	600.0	473.9	225.0	ld	70.4	7.3	ld	2295	1.14	0.703985	nd	nd

and distance along the Maroni River. Three main stations are noted in this graph: Apatou, which represents the beginning of the survey; Grand Santi, which is the town where the boreholes were drilled; and Antecume Pata, which represents the location of the junction of Litany and Marouini rivers. Among the tributaries, only those with a significant discharge for the hydrologic budget were included in the diagram: the Tampock, Inini, Tapanahoni and Beimmann.

The first observation concerns the dispersion of the data. The $\delta^{18}\text{O}$ of the tributaries are more scattered than those of the Maroni, but show no relationship with distance. This is not the case for the Maroni River where the $\delta^{18}\text{O}$ values increase from Antecume Pata to around Grand Santi, while from Grand Santi to Apatou the values can be considered as invariant.

In more detail, the first sample collected after the junction of Litany and Marouini rivers is mainly influenced by the Litany, whereas the second point corresponds to a more complete mixing (arrows a–a'). The arrival of the Tampock with an enriched $\delta^{18}\text{O}$ value induces an increase in the Maroni signature (arrow b), but this is attenuated by the input of the Inini with a less-enriched value. Between 150 and 100 km, the $\delta^{18}\text{O}$ values of the Maroni River fluctuate slightly and a decrease in the $\delta^{18}\text{O}$ values is observed after the arrival of the Tapanahoni (arrow c). Until Apatou, and in spite of the arrival of tributaries with enriched values but with a low discharge, the $\delta^{18}\text{O}$ values of the Maroni are quite invariant (arrow d). The three last $\delta^{18}\text{O}$ values of the Maroni increase and reach a similar value to that of sample CRK101.

5.2. Geochemical mass-balance calculation

Geochemical processes in the catchment surface or ground waters can be interpreted from mass-balance calculations (Velbel, 1985; Mast and Drever, 1990). The approach involves determining input–output budgets for dissolved constituents in the waters. For the Maroni catchment, the *input* of the geochemical budget can be considered as the dissolved material derived from rainwater and the dissolved material contributed by mineral weathering, and the *output* as the dissolved material in water leaving the catchment, the dissolved material taken by the biomass and the dissolved material temporarily stored in the

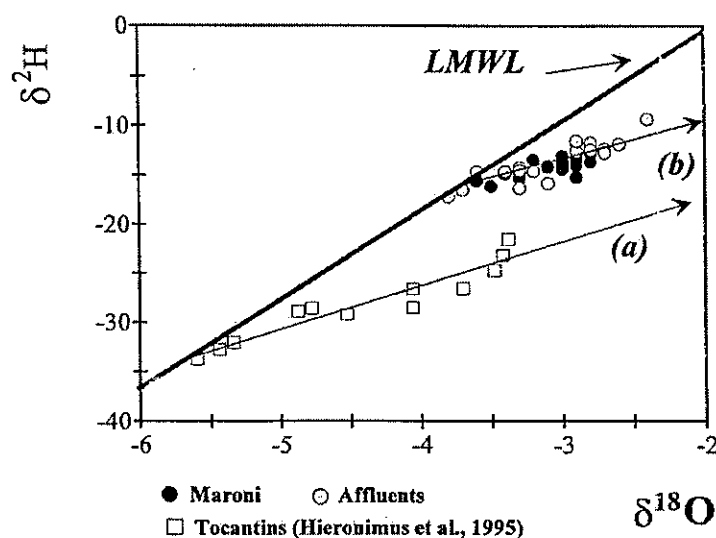


Fig. 3. Plot of the $\delta^{18}\text{O}$ and $\delta^2\text{H}$ (in ‰) in water samples from the Maroni catchment (main stream and tributaries).

catchment. Drever and Hurcomb (1986) and Mast and Drever (1990) showed that annual changes in biomass and the soil exchange pool are negligible in most catchments, and this was assumed to be the case in our study.

5.2.1. Atmospheric inputs to river water

The atmospheric-input correction consists in quantifying and subtracting the portion of elements carried by rainwater into the runoff. The chemical composition of the rainwater is thus required to calculate a geochemical mass-balance budget. According to the initial work of Meybeck (1979), the atmospheric contribution to stream water for any element Z is estimated by reference to the Cl concentration in the stream multiplied by the Z/Cl ratios in the rainwater. In absence of evaporites in the concerned catchment, the chloride ions in the atmosphere originate from seasalt and human activity. In the Maroni catchment, Cl ions do not participate in weathering reactions and so, in the absence of evaporites in the bedrock, behave conservatively through the hydrological cycle (Meybeck, 1983), which is why they are used as an atmospheric-input reference in unpolluted hydrosystems (Négrel et al., 1993). Gaillardet et al. (1997) in studying the Amazon Basin suggested that the enrichment in Ca, Mg, Sr, etc. in rainwaters originates from the drainage basin itself. Therefore, a marine

correction applied to river water means that these elements are included in weathering processes over the whole basin. However, although carbonate terrains exist in the Amazon Basin, they are not present in the Maroni Basin, which is why we decided to correct the stream water chemistry by reference to rains in the Maroni Basin.

For mass-balance equations, it is the highest concentrations of Cl ions from rainwater that must be determined. Using the method of Négrel et al. (1993) in which the mean weight Cl content of the rainwater is multiplied by the concentration factor, around 78 $\mu\text{mol/l}$ of Cl in the Maroni catchment originates from rainwater and the mean concentration factor is close to 2, giving a maximum value of 156 $\mu\text{mol/l}$ of Cl due to rainwater input. As all Cl contents measured in the stream waters are lower than this value, then all Cl can be attributed to rainwater input.

The contribution of precipitation to the dissolved load material output from the catchment can therefore be calculated at each sampling point. From the rainwater input expressed as a percentage of the total element content in the stream water samples (Table 8) we note that

- Rain inputs to the Maroni River are remarkably constant. Ca, Mg and Sr originating from rain

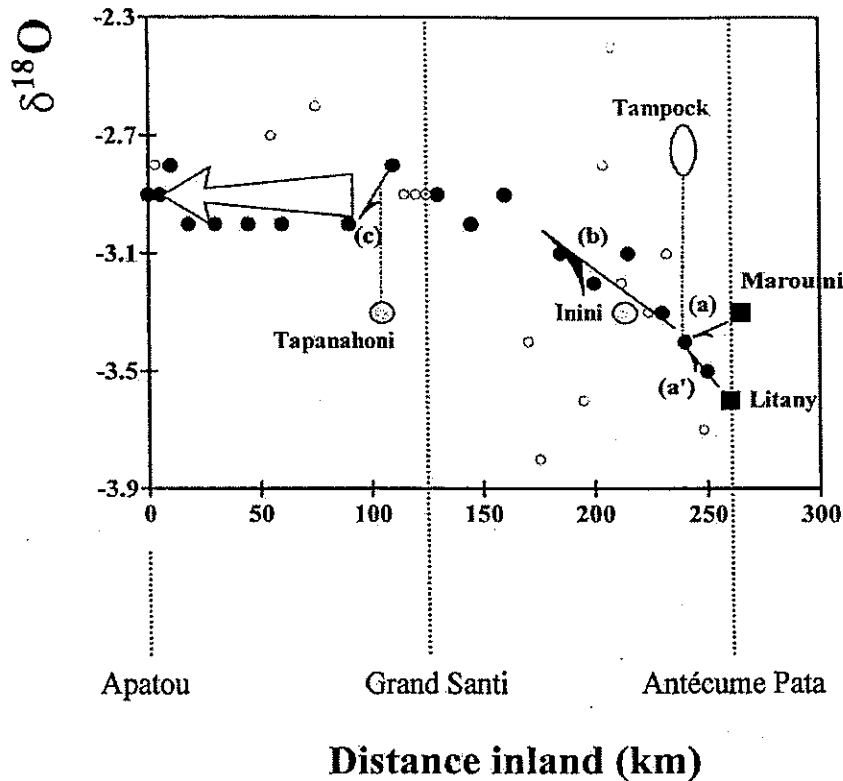


Fig. 4. Relationship between $\delta^{18}\text{O}$ and distance along the Maroni River (main stream and tributaries).

show similar proportions (average 10–14%) and negligible variations (standard deviation 1.3–3.4%). The rain inputs for Na ($48.2 \pm 3.9\%$) and K ($60.4 \pm 5.7\%$) are higher due to the relative proximity of the coast. Similar proportions for rain input are recorded for the Congo Basin (Négrel et al., 1993) and similar proportions have been obtained for Na and Mg on the Amazon Basin, although the Ca and Sr contributions are lower (Gaillardet et al., 1997); in this case the difference can be explained by the marine correction, which does not take into account the contribution of Ca-bearing aerosols in rainwaters (Gaillardet et al., 1997). For the Tocantins Basin, Hieronimus et al. (1995) found identical rain inputs for Na and K, lower ones for Ca and Mg and higher ones for Sr. HCO_3^- , as shown by several authors (Hieronimus et al., 1995; Gaillardet et al., 1997), is not carried by rainwater. The proportions of K carried by rainwater are subject to uncertainties because of the importance of vegetation (Négrel et al., 1993;

Gaillardet et al., 1997). In our data bank, the strontium isotopic ratio corrected for rain inputs, and therefore representing the interaction with bedrock, range from 0.72246 (MAR1) to 0.73334 (MAR17).

- The rain inputs for the tributaries vary in different ways. For example, the contribution in sample CRK115 is 6% whereas it reaches 29% in sample CRK107. Mg exhibits also a wide range from 3 (CRK115) to 39% (CRK107). As with the Maroni River, it is the rain inputs for Na that are the highest, but with a larger variability ranging from 39% in sample CRK103 to 81% in sample CRK107. K is over-corrected in most tributaries, which reflects the influence of vegetation and is more marked in the tributaries than in the Maroni main stream. Négrel et al. (1993) and Gaillardet et al. (1997) have shown a similar pattern in the Congo and Amazon basins. The Sr contribution of rain inputs ranges from 8

(CRK103, 111) to 34% (CRK107). When corrected for rain inputs, the Sr isotopic ratio shows a wide range from 0.70539 to 0.70596 (CRK114–115) to 0.7475 (CRK104).

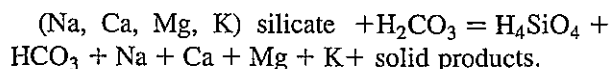
- For the groundwaters, one notes large differences in the correction for rain input between the samples collected in shallow wells and those collected in boreholes at Grand Santi. The Ca derived from rain input decreases from 8 to 23% (quite in accordance with the Maroni River data) in the shallow-well samples to 1–1.4% in the borehole samples. Similar decreases are observed for Mg and Sr and also for Na, which is 45–70% for the shallow-well groundwaters and only 15% for the borehole groundwaters. K is over-corrected in the shallow-well samples and cannot be corrected in the borehole samples because of its low content (i.e. detection limit). When corrected for rain input, the Sr isotopic ratio exhibits higher values in samples GWA201 and 203 (0.70775–0.70866, respectively) than in the samples from boreholes GWAF2 and F1 (range 0.70378–0.70402).

To summarise, with a weak contribution from rain inputs, the Ca, Mg and Sr mean values close to 85–89% originate mainly from water–rock interaction, and the HCO_3^- is derived totally from water–rock interaction. Conversely, the Na is derived equally (50–50%) from rain input and water–rock interaction. K cannot be used because it is subject to over-correction due to the influence of vegetation. Water–rock interaction seems to be more important in the deep groundwaters than in the shallow groundwaters.

5.2.2. Water–rock interaction and stream water geochemistry

The bedrock of French Guiana is of the aluminosilicate type with granitic rocks (granitoid, granodiorite and tonalite), silicate rocks (schists, mica schists and sandstones) and volcanic rocks (basalt, amphibolite). The weathering of aluminosilicates often includes incongruent dissolution, followed by the formation of secondary minerals (e.g. clays). A general reaction (Garrels and Mackenzie, 1967; Sarin et al., 1989) for

the weathering of silicate rocks with carbonic acid can be written as:



In this weathering reaction of silicates, the Na is in albite ($\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$), the Ca in plagioclase ($\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$), the Mg in Mg-silicates ($\text{MgAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$), and the K in K-silicates (biotite and K-feldspars). The HCO_3^- is from atmospheric CO_2 (Probst et al., 1994).

When corrected for rain inputs, water samples from the Maroni catchment (main stream and tributaries) plot well on the 1:1 line in a graph of HCO_3^- vs. sum of cations (Σ^+), as illustrated by Fig. 5. This is in agreement with the work on the basaltic area in the Parana (Brazil) by Benedetti et al. (1994) who related this relationship to a mixing line between two end-members. In our work, however, there is no direct link between Σ^+ (and/or HCO_3^-) and the geology of the weathered terrains (Fig. 5 and Table 1). The tributaries, which define the best relationship, almost certainly lie on the 1:1 line as a function of the degree of rock weathering within the catchment. This implies that the cations released by weathering are balanced by the alkalinity as shown by Tardy et al. (1993) for the Amazon Basin. The groundwater samples plot on the 1:1 line at greater Σ^+ and HCO_3^- concentrations, reflecting an increase in the water–rock interaction processes. The weak shift of groundwater samples to the right of the 1:1 line may reflect an imbalance of Si

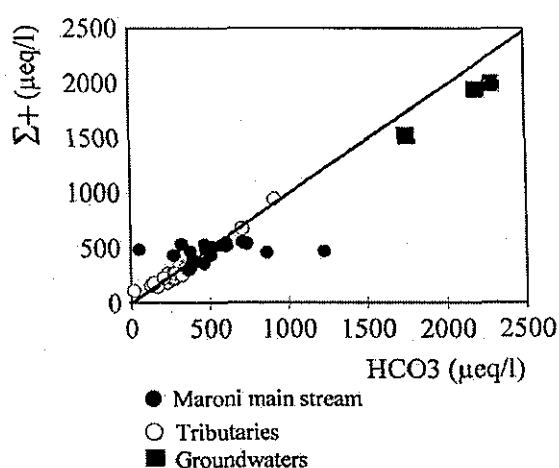


Fig. 5. Plot of the sum of cations (Σ^+) vs. the HCO_3^- content in water samples from the Maroni catchment (main stream and tributaries). Cations are corrected for rain input.

Table 8

Percentage of rainwater input for the measured chemical species (strontium isotopic ratios corrected for rain input)

REF	Cl (%)	Ca (%)	Na (%)	Mg (%)	K (%)	Sr (%)	⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Sr
Maroni							
MAR1	100	14	49	13	65	9	0.72398
MAR2	100	14	51	13	65	9	0.72558
MAR3	100	14	49	13	60	9	0.72555
MAR4	100	15	51	13	65	9	0.72571
MAR5	100	11	50	14	67	11	0.72616
MAR6	100	13	41	12	62	11	0.72629
MAR7	100	13	47	14	62	11	0.72659
MAR8	100	12	45	12	62	11	0.72583
MAR9	100	11	43	11	67	10	0.72298
MAR10	100	12	43	11	62	11	0.72283
MAR11	100	11	45	12	62	10	0.72246
MAR12	100	12	45	11	67	10	0.72998
MAR13	100	12	47	11	60	11	0.72299
MAR14	100	13	47	13	60	10	0.72335
MAR15	100	15	55	16	57	13	0.73254
MAR16	100	15	54	18	54	11	0.73125
MAR17	100	17	52	23	54	12	0.73334
MAR18	100	19	53	22	51	13	0.73777
MAR19	100	12	50	15	58	8	0.72636
MAR20	100	15	46	15	47	13	0.73049
Tributaries							
CRK 101	100	26	62	16	113	20	0.72987
CRK 102	100	6	57	6	263	13	0.70739
CRK 103	100	9	39	11	75	8	0.71130
CRK 104	100	15	41	19	41	13	0.74750
CRK 105	100	19	60	24	74	19	0.71035
CRK 106	100	11	41	13	56	9	0.71878
CRK 107	100	29	81	39	127	34	0.71063
CRK 108	100	8	68	6	165	13	0.70703
CRK 109	100	18	67	20	77	17	0.71203
CRK 110	100	11	87	7	112	15	0.70756
CRK 111	100	10	48	7	141	8	0.70476
CRK 112	100	15	52	15	55	14	0.72432
CRK 113	100	14	64	11	103	13	0.70800
CRK 114	100	21	66	19	157	14	0.70539
CRK 115	100	4	52	3	316	17	0.70596
CRK 116	100	11	56	9	124	15	0.71323
CRK 117	100	9	58	6	196	17	0.71280
CRK 118	100	12	49	11	86	10	0.71665
CRK 119	100	13	52	13	77	10	0.71696
Groundwaters							
<i>Oct-96</i>							
GWA201	100	8	45	27	206	9	0.707752
GWA 203	87	23	68	150	285	47	0.708661
<i>March-97</i>							
GWA-F1	100	1	13	2	94	2	
GWA-F2	100	1	12	2	98	2	
MAR201	100	14	106	36	115	11	
<i>Oct-97</i>							
GWA-F1a	100	1	15	2	nd	3	0.703882
GWA-F1b	100	1	14	2	nd	2	0.704021
GWA-F2	100	1	16	3	nd	3	0.70378

(not included in Σ^+) produced by the weathering of Na-feldspars, which release both HCO_3^- and Si.

The weathering of silicates produces all the cations, but because of a high reactivity in surficial waters, K is not a useful tracer of silicate weathering (Négrel et al. 1993; Gaillardet et al., 1997). Silica was measured only in the groundwater samples because Si in the surficial waters of tropical environments is often controlled by diatom growth and is thus not a useful indicator (Négrel et al., 1993; Gaillardet et al., 1997). The Mg, Na, Sr data corrected for rain inputs are plotted vs. Ca in Fig. 6a–c.

The plot of Mg vs. Ca (Fig. 6a) shows a linear relationship both for the Maroni main stream and the tributaries, with all points lying on the 1:1 line. In a Na vs. Ca graph (Fig. 6b) the points of the Maroni main stream and the tributaries again lie on the 1:1 line, although with a greater dispersion for some tributaries; however, as Na is largely rain corrected

(around 50%) the data scattering can be explained by the intensity of the correction. The groundwater samples in these graphs plot to the right of the 1:1 line and reflect Ca enrichment with regard to Mg and Na. In a Sr vs. Ca graph (Fig. 6c), two different groups of points can be individualised. Those of the Maroni main stream, the tributaries and three shallow groundwaters (GWA201 and GWA203:10/96, 03/97) plot with low Ca and Sr contents (in the range 0–220 $\mu\text{mol/l}$ for Ca and 0–0.6 $\mu\text{mol/l}$ for Sr) and define a positive trend; the exceptions are samples CRK102, 108 and 115, which show Ca enrichment with regard to Sr. The samples of groundwater from boreholes GWA1 and F2 plot with higher Ca and Sr contents (up to 400 and 0.9 $\mu\text{mol/l}$, respectively) and reflect a greater degree of interaction with the rock body.

The positive correlation between Ca, Mg and Na, all with a slope close to 1, would seem to indicate (a) weathering of the primary phases which, however, are depleted by weathering in surficial environments drained by rivers, and (b) ion exchange and/or weathering of secondary phases, such as clay minerals, which deliver Ca, Na and Mg to waters. Surface and/or weathered subsurface rocks (alterites) would then be more implicated in the water chemistry acquisition than the deep fresh bedrock. It is noteworthy that silicate weathering (basalt, granite, gneiss) under different climatic conditions (temperate: Négrel and Deschamps, 1996; Négrel, 1997, 1999; tropical: Gaillardet et al., 1997; Louvat and Allègre, 1997) also yield a Ca/Mg slope ≈ 1 . The positive correlation between Sr and Ca may reflect a similar genesis of these elements because of their geochemical similarity in Ca-bearing phases (Faure, 1988).

Sr isotope systematics can give certain constraints on the weathering conditions. The mass balance for Sr in such a crystalline environment should be controlled by the two feldspar phases (Blum et al., 1994; Bullen et al., 1996), i.e. the primary phases and their alteration products (e.g. clay minerals), although the influence of biotite weathering as shown by Zuddas et al. (1995) and Bullen et al. (1996) cannot be completely rejected. The $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ values corresponding to water–rock interaction and resulting from the mass-balance calculations are summarised in Table 8, from which it can be seen that $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios fluctuate between the different sampling points in the

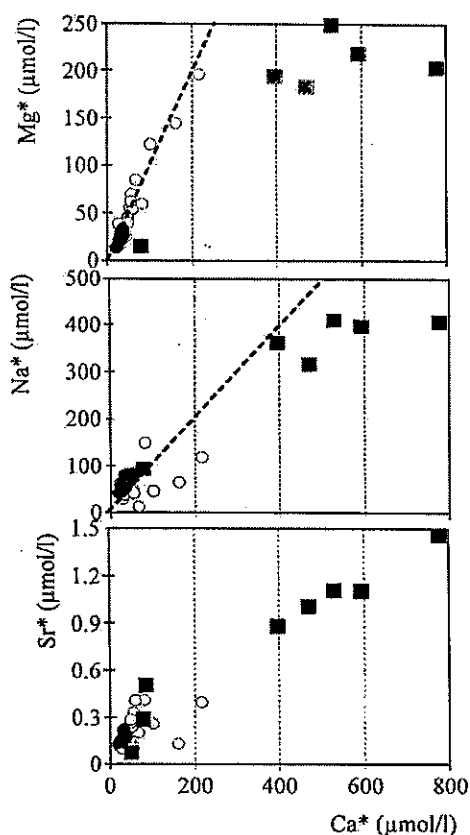


Fig. 6. a–c Plots of Mg, Na, and Sr vs. Ca. All data (in $\mu\text{mol/l}$) are corrected for rain input.

catchment. For example the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ for the tributaries ranges from 0.70476 (CRK111) to 0.7475 (CRK104). However, it remains difficult to associate a $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio and a bedrock type at the scale of each tributary in view of uncertainties in the geology together with local variability in the nature of the bedrock. Thus, the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio in eight tributaries draining the Lower Paramaca (CRK108–112 and CRK114–116) fluctuates between 0.70476 (CRK111) and 0.72432 (CRK112). In other tributaries draining granitoids the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio is in the range 0.71035 (CRK105) to 0.71878 (CRK106). The $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio of the Maroni River shows an intermediate range between 0.72397 (MAR1) and 0.73334 (MAR17), whereas that of the groundwater samples ranges from 0.70378 (GWA2) to 0.70866 (GWA203).

Sr isotope studies of rivers and lakes have shown that variations in $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ and Sr contents are caused primarily by mixing of waters of various origins with different $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios and Sr contents (Stueber et al., 1984; Palmer and Edmond, 1992; Anderson et al., 1992). Négrel and Dupré (1995), studying the Oubangui Basin in Central Africa, showed that the Sr isotopic values for streams are controlled by mixing between different water pools, each of them possibly reflecting water–rock interaction with different rock types.

All the water samples from the Maroni catchment are plotted in a $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ vs. $1/\text{Sr}$ diagram (Fig. 7), which is classically used to evaluate two-component mixing and end-member water compositions (Faure, 1988). This figure shows at least two mixing trends in the Maroni catchment, these being mostly defined by the tributaries. It also indicates the existence of at least three end-members, one of which is common to the mixing lines and is defined by a low $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio associated with the highest Sr content. Samples CRK107 and 114 for the tributaries lie closest to this end-member. With regard to the geology, the common end-member may correspond to the drainage of the Lower Paramaca (P) of mainly metavolcanic rocks, and the low $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio would reflect the weathering of rocks such as basalt and amphibolite that are known to impart a low $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio to the waters (Faure, 1988; Négrel and Deschamps, 1996; Négrel, 1997; Louvat and Allègre, 1997).

The second end-member is defined by the highest

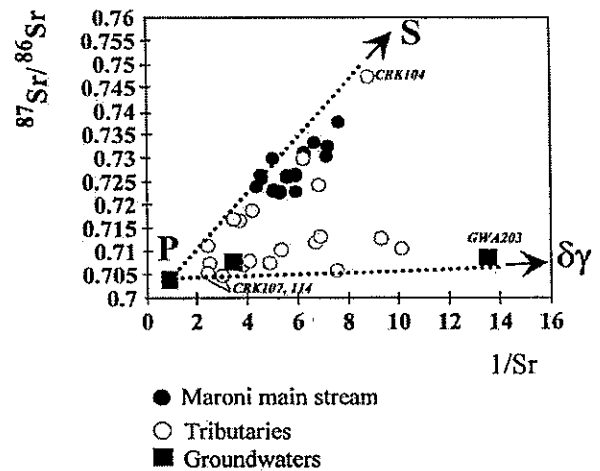


Fig. 7. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ vs. $1/\text{Sr}$ plot of water samples (corrected from rain input) from the Maroni catchment.

$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio associated with an intermediate Sr content and is possibly represented by sample CRK104 (Tapanahoni). With regard to the geology, this end-member could correspond to the drainage of the Upper Paramaca (S) with a mainly sedimentary lithology. The high $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio would be related to the weathering of schists and mica schists, which deliver higher $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios (Négrel, 1999).

The third end-member is defined by a relatively low $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio associated with a very low Sr content. Sample MAR107 for the tributaries of the Maroni and sample GWA203 for the shallow groundwaters possibly correspond to this end-member, although GWA203 shows a lower Sr content. With regard to the geology, this end-member could correspond to the drainage of plutonic granitoid intrusions (granite and granodiorite from the “Guyana plutonism”, granitoid, granodiorite and tonalite from the “Caribbean plutonism”).

The tributaries are scattered along the two mixing lines between the three end-members. No sample lies on a mixing line between the Upper Paramaca (S) and the granitoids. The Maroni samples plot along the mixing line between the end-members corresponding to the drainage of the Lower Paramaca (P) and that of the Upper Paramaca (S). Thus, it is the weathering of these two geological units, i.e. metavolcanics and metasediments, that mainly control the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio of the Maroni River. The shift of the points to the right of the mixing line between S and P reflect the

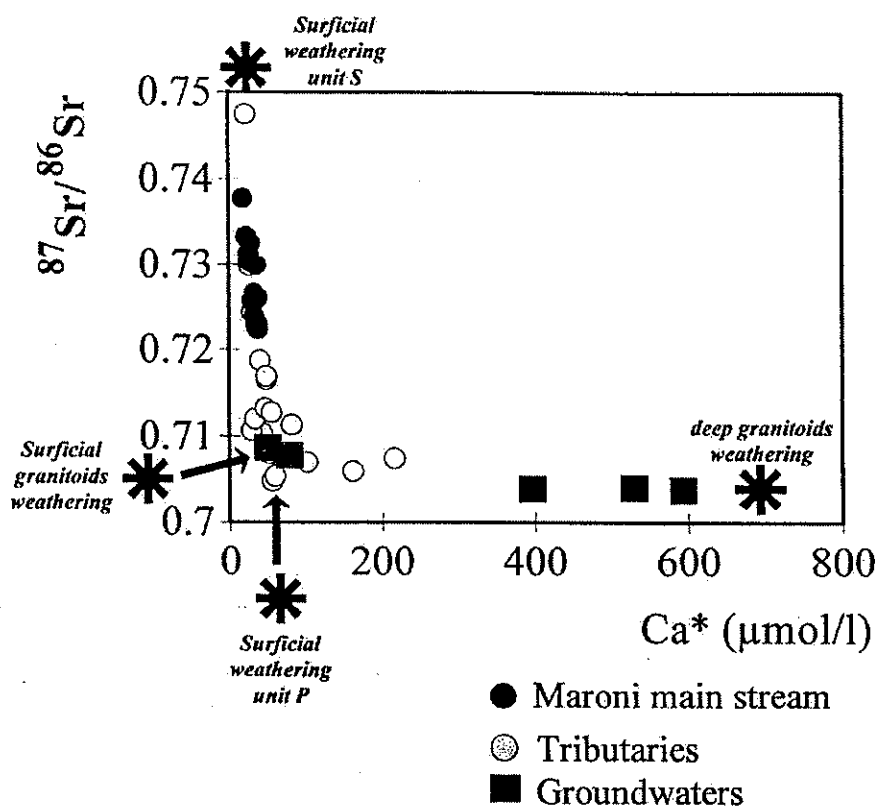


Fig. 8. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ vs. Ca content (in $\mu\text{mol/l}$) plot of water samples (corrected for rain input) from the Maroni catchment.

input into the Maroni of tributaries draining weathered granitoids. With regard to proportions, around 50% of the Sr in the Maroni River originates from the weathering of either P or S units. This compares to the results obtained on rivers draining “undifferentiated Proterozoic rocks” of the Guayana Shield (Edmond et al., 1995), which also lie on the mixing line between the S and P end-members, especially the Suapure which plots very close to the S end-member.

With regard to groundwaters, sample GWA201 lies on the straight line corresponding to a mixing between waters that have interacted with volcanic rocks of the Lower Paramaca (P) and waters that have interacted with granitoids (represented by samples CRK107). However, this sample also plots with a lower Sr content, as reflected by the $1/\text{Sr}$ ratio close to 14, whereas the $1/\text{Sr}$ ratio of sample CRK107 is close to 10. GWA201 could be more marked by the weathering of alterites developed on granitoids.

The deep groundwaters from boreholes GWAf1

and F2 plot with higher Sr contents than the shallow groundwaters (samples CRK107 and 114), but show similar $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios. The location of these deep groundwaters is not consistent with an interaction with volcanic rocks of the Lower Paramaca (P) because the boreholes were drilled within granitoids. One way to explain the similarity between the drainage of volcanic rocks of the Lower Paramaca (P) and groundwaters that have interacted with granitoids is to consider that the latter are influenced by the weathering of low Rb-rich Sr phases (e.g. plagioclase) which would impart a low $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio to the waters.

This hypothesis can be tested through a mixing diagram between the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio and Ca content (Fig. 8) where binary mixing is defined by hyperbolae (Langmuir et al., 1978). The samples from the Maroni catchment do not define a clear hyperbola. They appear rather to be scattered along two main trends: the first showing a weak fluctuation of the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio associated with a large increase of the Ca content; the second showing a large fluctuation of

the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio within a weak Ca content range. As previously mentioned, the Ca content is much higher in the deep groundwaters from the boreholes and we can define two water–rock interactions along the first trend; one corresponds to deep weathering of granitoids, which gives a high Ca content and low $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio, and the second corresponds to surficial weathering of unit P (water originating from the alterite compartment) with a decrease in the Ca content but no change in the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio. The deep weathering of granitoids reflected in the first trend implies that the weathering of Ca-bearing phases (e.g. plagioclases) is greater than in the surficial weathering of unit P, where plagioclases have already been intensely weathered. The second trend shows an increase in the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio as a result of the weathering of unit S without changes in the Ca content. This trend also includes samples corresponding to the surficial weathering of granitoids. Therefore, it is obvious that some tributary samples (CRK102, 115) have a relatively high Ca content and plot close to the first trend between the deep and shallow weathering of unit P. For these samples, the shift towards a relatively high Ca content can be explained by more extensive weathering of primary Ca-bearing phases with a low $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio, such as plagioclase. Négrel (1999) demonstrates similar change in the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios according to the origin of the water within the weathering profile in the Margeride massif (France).

6. Conclusions

By combining chemical and isotopic composition of its dissolved load during a low-flow period on the Maroni River (French Guiana), our study comes to the following conclusions on the geochemical reference for the water in French Guiana:

1. All the data from the Maroni catchment agree with the precipitation dominance field (Gibbs, 1970). Groundwaters collected from shallow wells largely mimic the surface waters and may represent waters in alluvial deposits along the Maroni terraces, whereas deep groundwaters collected from boreholes reflect an increase in water–rock interaction.
2. The stable isotopes in river and groundwaters in the Maroni catchment have been enriched through

evaporation and can be used along the river and tributaries as mixing tracers as some have either enriched (Tampock, Inini) or depleted (Tapanahoni) $\delta^{18}\text{O}$ signatures.

3. Corrections for rainwater addition, using chloride as an atmospheric – input reference, were computed for selected elements and for $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios. Excepted Na (derived equally from rain input and water–rock interaction) and K (subjected to over-correction due to the influence of the vegetation), Ca, Mg and Sr originate mainly from water–rock interaction (85–90%) and HCO_3^- is totally derived from water–rock interaction.
4. The Sr isotopic systematics in water from the Maroni catchment reveals at least two mixing trends mostly defined by the tributaries. These trends infer the existence of at least three end-members, one of which is common to the mixing lines. This end-member may correspond to the drainage of the mainly volcanic Lower Paramaca (P, basalts and amphibolites). The second end-member (highest $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio) may correspond to the drainage of the Upper Paramaca (S, schists and mica schists). The third end-member (low $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio and low Sr content) is considered to correspond to the drainage of plutonic granitoid intrusions.
5. The shallow groundwaters corresponds to a mixing between waters that have interacted with the Lower Paramaca (P) and granitoids. The Sr isotopic systematics of deep groundwaters are consistent with an interaction with Lower Paramaca (P), which disagree with the geology observed within the boreholes (granitoids). One way to explain their characteristic is to consider the weathering of low Rb-rich Sr phases (e.g. plagioclase) which impart a low $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio to the waters; this is also in agreement with the relationship between the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ and the Ca content.

As a sufficient number of boreholes have been drilled in French Guiana, ongoing research is now focusing on the geochemistry of groundwaters. The geochemical database on groundwater will serve the building-up of a groundwater geochemical referential for this region and will be valorised in conjunction with geologic, hydrodynamic, etc. information. One main objective will be to better constrain the functioning of French Guiana hard rock aquifers and to improve both their

prospecting and management: sustainable resource evaluation, delineation of groundwater protection zones, etc.

Future research will have to focus on increasing use of existing geochemical tools (like Sr–Nd isotopes) dedicated to the understanding of the structure and functioning of the different compartments of hard-rock aquifers (i.e. overlying sediments, when they do exist, weathered cover — the alterites, weathered–fissured zone, fractured hard-rock). Research will particularly have to deal with the identification of the relative signature of groundwater circulations in the alterites and in the underlying weathered–fissured zone. This zone, with efficient porosities ranging from 3 to 20% in the alterites and from 0.5 to 2% in the weathered–fissured zone, may contain most of the groundwater reserve (as fresh bedrock efficient porosity is often less than 0.01%). This will also help to identify the role of these different hydrogeological compartments, both in natural and under pumping conditions, and in the framework of surface-groundwater relationships.

The geochemical tools need to be adapted to the different geological but also climatic settings of world main hard-rock areas: tropical humid (e.g. French Guiana, Brasil for example), temperate (e.g. Europe, US) or arid or semi-arid (e.g. India, Africa, etc.), etc. Indeed, these aquifers are already largely exploited (and probably overexploited) in some countries (e.g. India) and will probably be more and more solicited for water supply in the future.

Acknowledgements

This work was financially supported by the European Union (FEDER), the French Guiana Region and the BRGM (Bureau de Recherche Géologiques et Minières) through its Research Programmes in French Guiana. P. Skipwith is thanked for improving the English. We also thank the TIMS team (led by C. Guerrot), the stable isotopes team (led by C. Flehoc) and the ICP-MS team (led by A. Cocherie), which provided the Sr, stable-isotope and trace-element analyses. M. Brach and C. Crouzet are thanked for technical assistance in the physico-chemical analyses. Ph. Van Cappellen and two anonymous reviewers are acknowledged for their helpful comments on the original manuscript.

References

- Allegre, C.J., Dupre, B., Négrel, Ph., Gaillardet, J., 1996. Sr–Nd–Pb isotopes systematics in Amazon and Congo River systems. Constraints about erosion processes. *Chem. Geol.* 131, 93–112.
- Anderson, P.E., Wasserburg, G.J., Ingri, J., 1992. The sources and transport of Sr and Nd isotopes in the Baltic Sea. *Earth Planet. Sci. Lett.* 113, 459–472.
- Benedetti, M.F., Menard, O., Noack, Y., Carvalho, A., Nahon, D., 1994. Water–rock interactions in tropical catchments: field rates of weathering and biomass impact. *Chem. Geol.* 118, 203–220.
- Ben Othmann, D., Luck, J.M., Tournoud, M.G., 1997. Geochemistry and water dynamics: application to short time-scale flood phenomena in a small Mediterranean catchment. I. Alkalies, alkali-earth and Sr isotopes. *Chem. Geol.* 140, 9–28.
- Berner-kay, E., Berner, R.A., 1987. *The Global Water Cycle. Geochemistry and Environment*. Prentice Hall, Englewood Cliffs, NJ (396pp).
- Blum, J.D., Erel, Y., Brown, K., 1994. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios of Sierra Nevada stream waters: implications for relative mineral weathering rates. *Geochim. Cosmochim. Acta* 58, 5019–5025.
- Bullen, T.D., Krabbenhoft, D.P., Kendall, C., 1996. Kinetic and mineralogic controls on the evolution of groundwater chemistry and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ in a sandy aquifer, northern Wisconsin, USA. *Geochim. Cosmochim. Acta* 60, 1807–1821.
- Crozat, G., 1979. Sur l'émission d'un aérosol riche en potassium par la forêt tropicale. *Tellus* 31, 52–57.
- Deckart, K., Feraud, G., Bertrand, H., 1997. Age of Jurassic continental tholeiites of French Guiana, Surinam and Guinea: implications for the initial opening of the Central Atlantic Ocean. *Earth Planet. Sci. Lett.* 150, 205–220.
- Drever, J.I., 1988. *The Geochemistry of Natural Waters*. 2nd ed. Prentice Hall, Englewood Cliffs, NY, 437pp.
- Drever, J.I., Hurcomb, D.R., 1986. Neutralization of atmospheric acidity by chemical weathering in an alpine drainage basin in the North Cascade Mountains. *Geology* 14, 221–224.
- Driscoll, N.W., Karner, G.D., 1994. Flexural deformation due to Amazon fan loading: a feedback mechanism affecting sediment delivery to margins. *Geology* 22, 1015–1018.
- Edmond, J.M., Palmer, M.R., Measures, C.I., Grant, B., Stallard, R.F., 1995. The fluvial geochemistry and denudation rate of the Guayana shield in Venezuela. *Geochim. Cosmochim. Acta* 59 (16), 3301–3325.
- Faure, G., 1988. *Principles of Isotope Geology*. Wiley, New York (589pp).
- Gaillardet, J., Dupre, B., Allegre, C.J., Négrel, Ph., 1997. Chemical and physical denudation in the Amazon river basin. *Chem. Geol.* 142, 141–173.
- Galloway, J.N., Gaudry, A., 1984. The composition of precipitation on Amsterdam Island, Indian Ocean. *Atmos. Environ.* 18, 2649–2656.
- Garrels, R.M., Mackenzie, F.T., 1967. Origin of the chemical composition of some springs and lakes. In: Stumm, W. (Ed.), *Equilibrium Concepts in Natural Water Systems. Advances in Geochemistry Series*, vol. 67, pp. 222–242.
- Gibbs, R.J., 1970. Mechanisms controlling world water chemistry. *Science* 170, 1088–1090.

- Gibbs, A.K., Barron, C.N., 1993. The Geology of the Guayana Shield. Oxford Monogr. Geol. Geophys. No. 22.
- Hieronimus, B., Godot, J.M., Boulegue, J., Bariac, T., Négrel, Ph., Dupré, B., 1995. Chimie du fleuve Tocantins et de rivières cotières de l'est du Para (Bresil): Colloques et Séminaires de l'ORSTOM, Grands Bassins Fluviaux, pp. 357–374.
- Huh, Y., Tsoi, M.Y., Zaitsev, A., Edmond, J.M., 1998. The fluvial geochemistry of the rivers of Eastern Siberia: I. Tributaries of the Lena River draining the sedimentary platform of the Siberian craton. *Geochim. Cosmochim. Acta* 62, 1657–1676.
- Iaea, 1981. In: Gat, J.R., Gonfiantini, R. (Eds.). Stable Isotope Hydrology. Deuterium and Oxygen-18 in the water cycle. Technical Report Series 210, 339pp.
- Lachassagne, P., Pinault, J.L., Baubron, J.C., Laporte, P., 2000a. Radon-222 emanometry: a relevant methodology for water well sitting in hard rock aquifer. *Water Resour. Res.* (in press).
- Lachassagne, P., Gandolfi, J.M., Laporte, P., Rampnoux, N., 2000b. High flowrate water well siting in hard rock aquifers. 2. Radon emanometry and geophysics for precise implementation. *Ground Water* (in press).
- Langmuir, C.H., Vocke, R.D., Hanson, G.N., Hart, S.R., 1978. A general mixing equation with application to Icelandic basalts. *Earth Planet. Sci. Lett.* 37, 380–392.
- Louvat, P., Allègre, C.J., 1997. Present denudation rates on the island of Reunion determined by river geochemistry: basalt weathering and mass budget between chemical and mechanical erosions. *Geochim. Cosmochim. Acta* 61, 3645–3669.
- Marot, A., 1989. Carte géologique à 1/500.000 du département de la Guyane, feuille sud. 2nd edition and explanatory notes. BRGM, Service Géologique National.
- Martinelli, L.A., Victoria, R.L., Strenberg, L.S.L., Ribeiro, A., Moreira, M.Z., 1996. Using stable isotopes to determine sources of evaporated water to the atmosphere in the Amazon Basin. *J. Hydrol.* 183, 191–204.
- Mast, M.A., Drever, J.I., 1990. Chemical weathering in the Loch Vale Watershed, Rocky Mountain National Park, Colorado. *Water Resour. Res.* 26 (12), 2971–2978.
- Maulé, C.P., Chanasyk, D.D., Muehlenbachs, K., 1994. Isotopic determination of snow-water contribution to soil water and groundwater. *J. Hydrol.* 155, 73–91.
- Meybeck, M., 1979. Concentrations des eaux fluviales en éléments majeurs et apports en solution aux océans. *Rev. Géol. Dyn. Géog. Phys.* 21, 215–246.
- Meybeck, M., 1983. Atmospheric inputs and river transport of dissolved substances. *IAHS Publ.* 141, 173–192.
- Meybeck, M., 1986. Composition chimique des ruisseaux non pollués en France. *Sci. Géol. Bull.* 39 (1), 3–77.
- Milési, J.P., Egal, E., Ledru, P., Vernhet, Y., Thieblemont, D., Cocherie, A., Tegye, M., Martel-jantin, B., Lagny, P., 1995. Les minéralisations du Nord de la Guyane française dans leur cadre géodynamique. *Chronique de la Recherche Minière* 518, 5–58.
- Négrel, Ph., 1997. Traçage des apports anthropiques sur un petit bassin versant: utilisation des rapports isotopiques du strontium. *CRAS*, 324, série II, 907–914.
- Négrel, Ph., 1999. Geochemical study of a granitic area — the Margeride mountains, France: chemical element behaviour and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ constraints. *Aquat. Geochem.* 5, 125–165.
- Négrel, Ph., Allègre, C.J., Dupré, B., Lewin, E., 1993. Erosion sources determined from inversion of major, trace element ratios and strontium isotopic ratio in riverwater: the Congo Basin case. *Earth Planet. Sci. Lett.* 120, 59–76.
- Négrel, Ph., Dupré, B., 1995. Temporal variations of strontium isotopic ratios of the Oubangui river basin: implications for the sources of material, Colloques et Séminaires de l'ORSTOM, Grands Bassins Fluviaux, pp. 181–198.
- Négrel, Ph., Deschamps, P., 1996. Natural and anthropogenic budgets of a small watershed in the Massif Central (France): chemical and strontium isotopic characterization in water and sediments. *Aquat. Geochem.* 2, 1–27.
- Négrel, Ph., Lachassagne, P., Laporte, P., 1997. Caractérisation chimique et isotopique des pluies de Cayenne (Guyane Française). *C.R. Acad. Sci.* 324, 379–386.
- Palmer, M.R., Edmond, J.M., 1992. Controls over the strontium isotope composition of river water. *Geochim. Cosmochim. Acta* 56, 2099–2111.
- Palvadeau, E., 1998. Géodynamique quaternaire de la Guyane française. Doctoral thesis, University of Brest, France.
- Pande, K., Sarin, M.M., Trivedi, J.R., Krishnaswami, S., Sharma, K.K., 1994. The Indus river system (India–Pakistan): major ion chemistry, uranium and strontium isotopes. *Chem. Geol.* 116, 245–259.
- Pantsar-kallio, M., Manninen, P.K.G., 1995. Determination of sodium, potassium, calcium and magnesium cations by capillary electrophoresis compared with ion chromatography. *Anal. Chim. Acta* 314, 67–75.
- Petelet, E., Luck, J.M., Ben Othman, D., Négrel, Ph., Aquilina, L., 1998. Geochemistry and water dynamics on a medium sized watershed: the Herault, S France. *Chem. Geol.* 150, 63–83.
- Probst, J.L., Mortatti, J., Tardy, Y., 1994. Carbon river fluxes and weathering CO_2 consumption in the Congo and Amazon river basins. *Appl. Geochem.* 9, 1–13.
- Sarin, M.M., Krishnaswami, S., Dilli, K., Somayajulu, B.L., Moore, W.S., 1989. Major ion chemistry of the Ganga–Brahmaputra river system: weathering processes and fluxes to the Bay of Bengal. *Geochim. Cosmochim. Acta* 53, 997–1009.
- Stallard, R.F., Edmond, J., 1987. Weathering chemistry and limits to dissolved inputs. *J. Geophys. Res.* 92, 8293–8302.
- Stueber, A.M., Pushkar, P., Hetherington, E.A., 1984. A strontium isotopic study of Smackover brines and associated solids, southern Arkansas. *Geochim. Cosmochim. Acta* 48, 1637–1649.
- Tardy, Y., Mortatti, J., Victoria, R., Martinelli, L., Ribeiro, A., Cerri, L., Piccolo, M., Leite de Moraes, J., Probst, J.L., Andreux, F., Volkoff, B., 1993. Hydroclimatology and biogeochemistry of the Amazon: 2. Geochemical cycles. *Chem. Geol.* 107, 411–414.
- Velbel, M.A., 1985. Geochemical mass balances and weathering rates in forested watersheds of the southern blue ridge. *J. Sci.* 285, 901–930.
- Zhang, J., Huang, W.W., Liu, M.G., Zhou, Q., 1990. Drainage basin weathering and major element transport of two large Chinese rivers (Huanghe and Changjiang). *J. Geophys. Res.* 95, 13277–13288.
- Zuddas, P., Seimbille, F., Michard, G., 1995. Granite–fluid interaction at near-equilibrium conditions: experimental and theoretical constraints from Sr contents and isotopic ratios. *Chem. Geol.* 121, 145–154.

COUPLING RADON EMANOMETRY AND GEOPHYSICS FOR HIGH FLOWRATE BOREHOLE IMPLEMENTATION IN HARDROCK AQUIFERS UNDER HUMID TROPICAL CLIMATE

LACHASSAGNE PATRICK*, RAMPNOUX NICOLAS**

*Brgm/Direction de la recherche - Département Hydrologie, Géochimie et transferts, 1039, Rue de Pinville, F-34000 Montpellier, Française

**Brgm/Guyane, Domaine de Suzini, Route de Montabo, Bp 552, F-97333 Cayenne Cédex, Guyane Française

Summary

The methodology of « radon emanometry » has been developed and scientifically validated in the late 80's for the localization of permeable discontinuities in basement rocks under temperate and dry tropical climates. New experimental data sets have been acquired under humid tropical climate in crystalline rocks with a thick weathered cover (French Guyana).

Coherent results have been obtained and have been validated by drilling. They show the interest of integrating radon emanometry within a three stages methodology for water well siting : first, localization of a few square kilometre prospection zone ; second, radon survey to exhaustively locate the radon anomalies and third, precise siting of boreholes with resistivity profiling performed over the most promising radon anomalies.

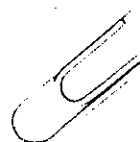
Key words

Groundwater, Hard Rock aquifer, weathered rocks, radon, resistivity profiling, French Guyana

Introduction

The methodology of « radon emanometry », initially derived from Uranium ore exploration techniques, has been developed and scientifically validated in the late 80's for the localization of permeable discontinuities in basement rocks (GUERIN, 1991 ; DAVID, 1992) and thus for the siting of water wells in such a geological context. This methodology has first been found efficient for geothermal and thermo-mineral water exploration and then for « cold water » applications, both under temperate (France) and dry tropical (Burkina Faso) climates (POINTET, 1992).

New experimental data sets have been recently acquired (LACHASSAGNE et al, 1997a and b) under humid tropical climate in crystalline rocks with a thick regolith cover (10th of meters) in French Guyana. In fact, this European region, belonging to the Amazonian area, has sanitary problems related to water supply. Because settlements are often located far away from any road (access only by dugout boat), adequate treatment of



surface water is technically and economically not feasible. Most villages that have to be supplied require « high flowrate » water wells, which means, in hard rock geological setting, long term productivity at least 5 m³/h (200 m³/j). This research programme was then initiated through a joint CEE - France - Guyana Region project, aiming to assess groundwater resource in the Guyana shield and to propose efficient methodologies for water well siting in such a context.

Radon emanometry

Radon is the only known radioactive gas (half life 3.82 day). Thus, it doesn't accumulate in the ground and it can easily be measured. Then, radon emanometry is a quite simple, two stages, technique :

1. sampling of soil gases is performed with a manual device constituted by a sampling metallic tube, flexible tubing, a special reactive flask and a manual vacuum pump (Figure 1),
2. radon content analysis is performed daily, on the field the camp, by placing the flasks into a scintillometer. This small size device can work with a portable generating set.

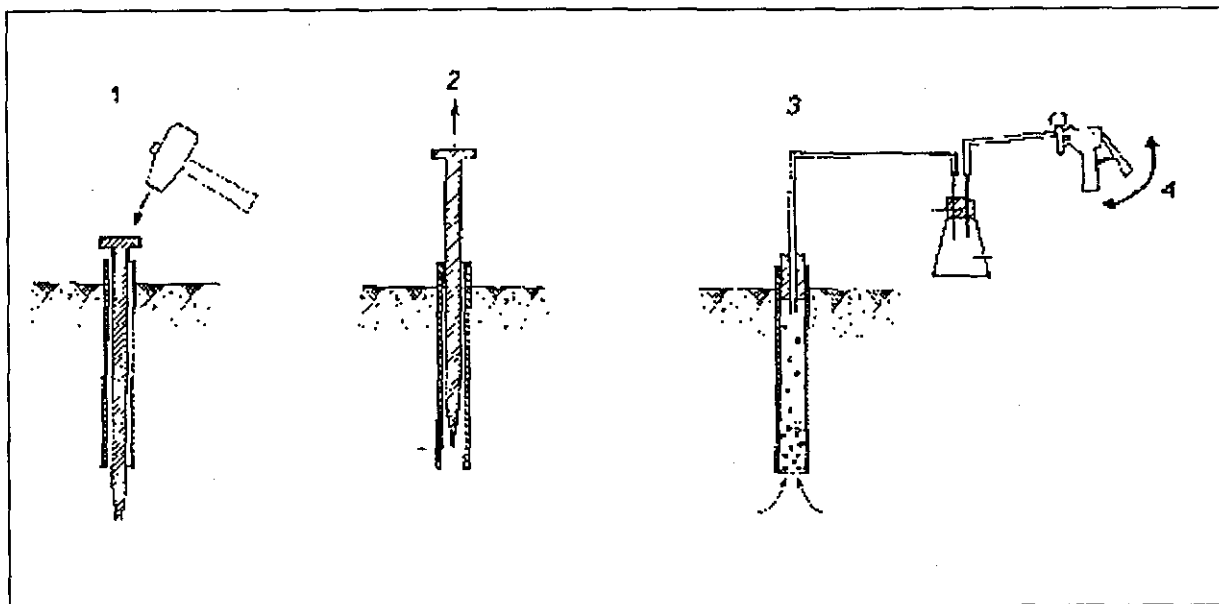


Fig. 1: Sampling of soil gases

The sampling mesh corresponds to a square of 75 to 100 m side size which covers, as exhaustively as possible, the prospected area. The mesh must be as regular as possible to perform good interpolation in order to draw accurate « radon map ». At the end of each sampling day, flasks content is analysed which allows to draw preliminary radon content maps. Then, the sampling mesh can be refined wherever radon anomalies are detected. Stations of reference are sampled daily to verify the stability of the radon signal.

After interpolation and contouring, radon anomaly maps (Figure 2) are inferred from such surveys.

Integration of radon emanometry in an hydrogeological survey

In the framework of the research project held in French Guyana, the radon emanometry technique has been integrated in a three stages downscaling methodology (LACHASSAGNE, RAMPNOUX, 1998). This

methodology allows a changing in scale, from the cartographic one to the precision necessary for an accurate water well siting:

1. Localization of the prospection zone : the first stage of the methodology is designed to delimit a few square kilometre zones (2 to 3 or 4 km²) on various criterion : technico-economical, geological, fractures setting (remote sensing delineation, actual tectonic stresses, etc.), etc.. In Guyana, technico-economical factors (ie vicinity of the village) are often the most important criterion. In a new research programme concerning Lozère Department (France), hard rock groundwater potentialities maps are designed at this stage, by cartographic information (weathered bedrock thickness, slope, lithology of bedrock, fractures and orientation of fractures, etc.) crossing through GIS (LACHASSAGNE et al., 1998),
2. Radon survey is then performed, as described in §2., in order to exhaustively localize the anomalies,
3. The third stage consists in geophysics : resistivity soundings (for profiling calibration) and then resistivity profiling are performed only on the most promising radon anomalies (that means anomalies with a fracturation looking shape and a high and well structured signal). Figure 2 shows such an anomaly, on an experimental site near Cayenne, which orientation is in good accordance with fracturation data. Resistivity profiling provides relatively precise information (with # 10 meters precision) for exploration well siting.

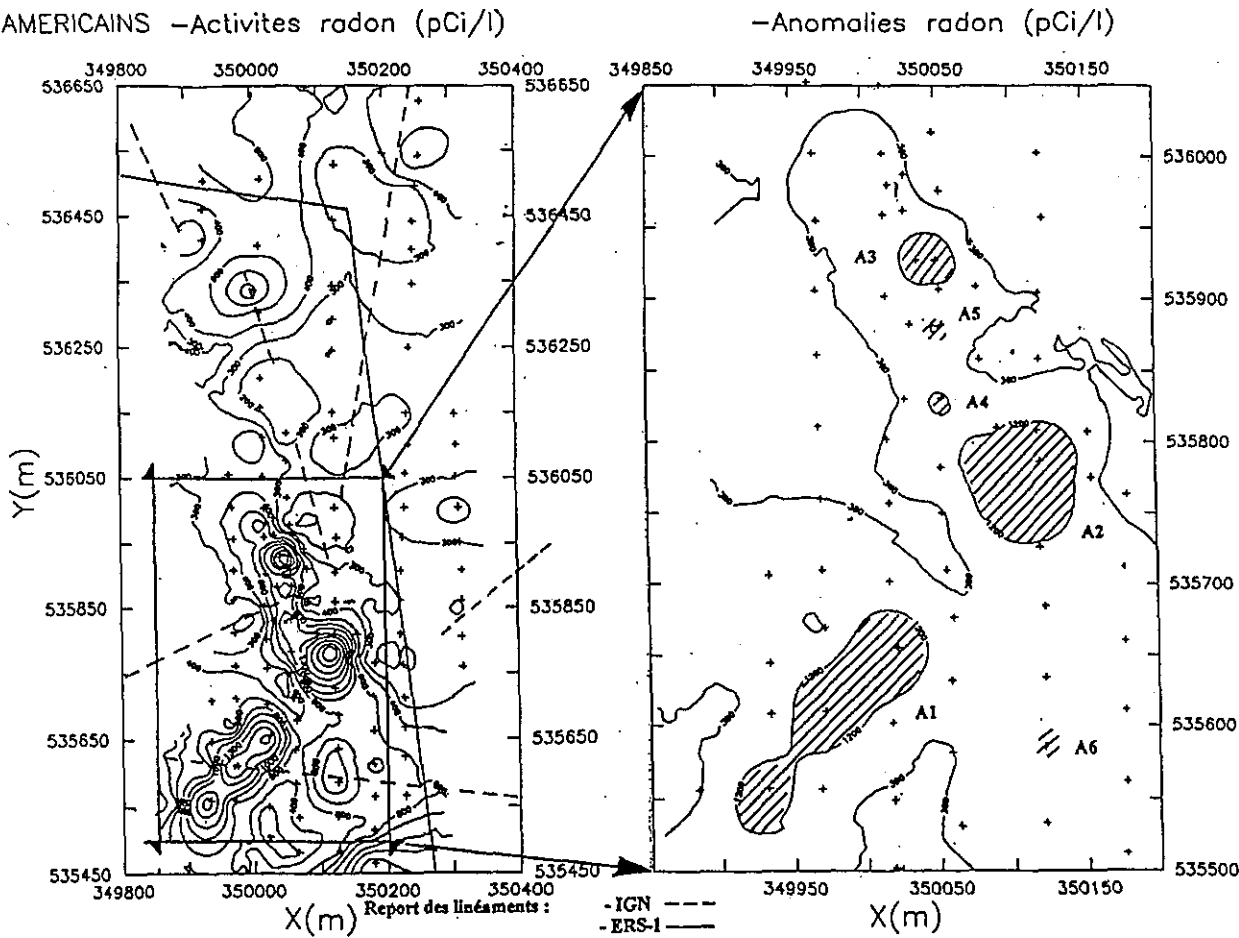


Fig. 2: Example of a radon anomaly map, Matoury Américains place, French Guyana (left) with zoom on the main anomaly area (right). Units : X, Y : meters ; radon unit : pico (10⁻⁹) Curie per litre

Results obtained in French Guyana

Seven radon survey have already been performed in French Guyana.

They showed that a significant radon signal can relatively easily been acquired by taking a few precautions (concerning essentially meteorology and above all pluviosity influence). Most of significant radon anomalies (Figure 2) are 200 to 300 m long and 50 to 75 m wide (thus, the choice of the sampling mesh is inferred from this experience). This quite large width of the anomalies id thought to be due to diffusion effect in relation with the thickness of the weathered bedrock, anomalies are quite wide. That means that, in such a context, the third stage of the methodology (geophysics stage) is very important for a good wells siting. Nevertheless, resistivity profiling can be only focused on radon anomalies (this is an important factor in forested areas like Guyana where geophysical profiling implies quite costly brushwood cleaning). In addition resistivity profiles can be accurately setup, perpendicularly to the structural anisotropy of the underlying fractures. This enables a better quality of the resistivity signal (Figure 3).

These experimental works show the interest of integrating radon emanometry within a more classical well siting strategy.

In addition, radon emanometry is well adapted to the context of tropical humid countries :

- the sampling and analysis devices are light ; they can easily be transported by taxi plane or dugout boat,
 - sampling can be performed by a technician and an unskilled worker, the later being hired in the village.
- Depending on field conditions, 20 to 40 samples can be collected each day. This is leading to an approximately 4 to 5 days duration survey by site or village,
- sampling doesn't imply important costly brushwood cleaning and thus both decreases the geophysics costs and increases its efficiency.

Experimental surveys are actually performed in order to explain the origin of radon through such a thick low permeability cover (the weathered bedrock is mainly clayey). These experiments are based both on radon time series analysis and on other soil gases measurements (PINAULT, BAUBRON, 1997). The first results suggest that, due to its short life time, the measured radon is produced in the soil (at least at a few meter depth). It moves upward by diffusion effect. Radon anomalies seems to be due to disturbance of this diffusion by advective flux of other gases (CO₂, methane, helium ?) that have them a deep origin.

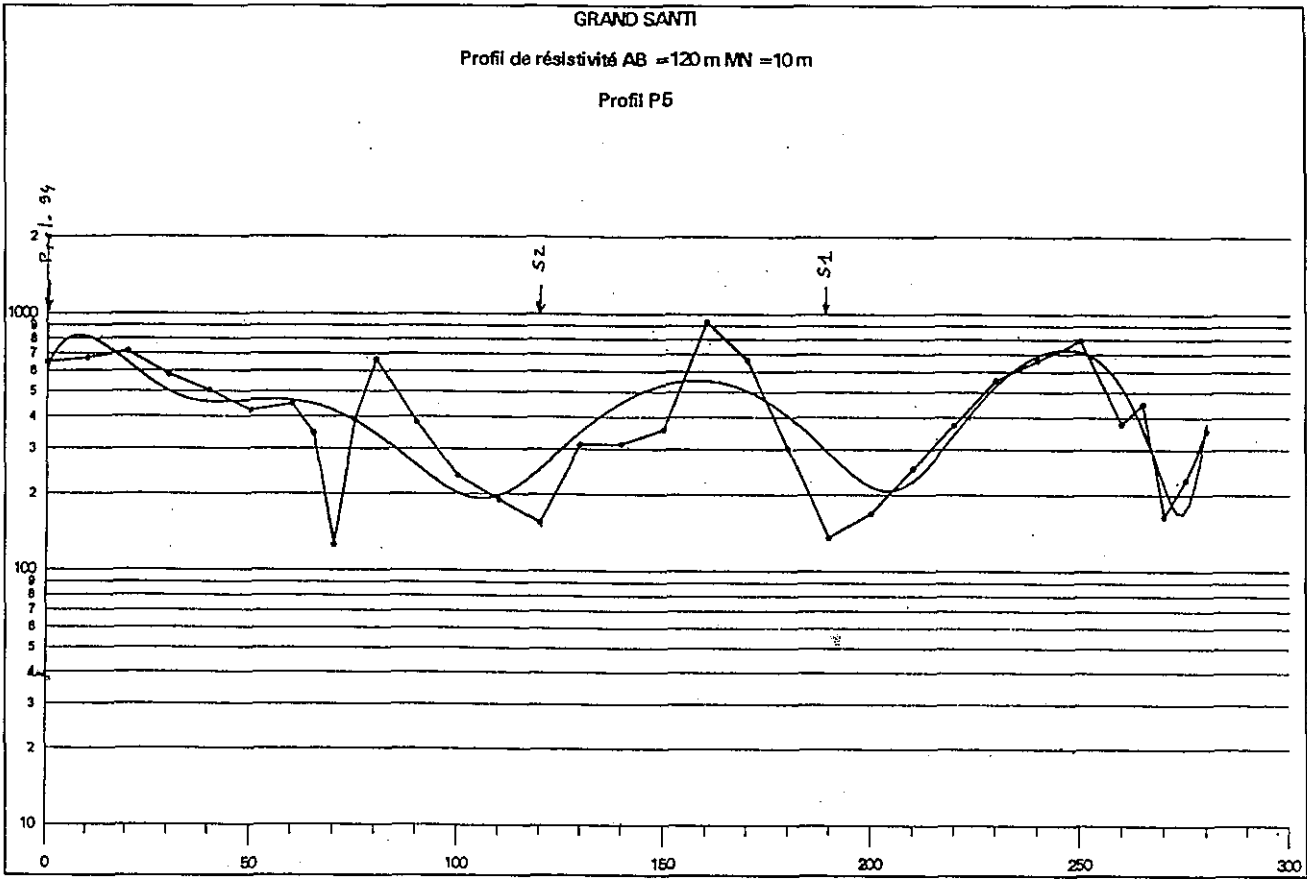


Fig. 3: Example of resistivity profiling performed perpendicularly to a radon anomaly (Grand Santi, French Guyana).
The anomaly, quite wide in this example, extends from X = 80 to X = 230 m.
The two well drilled at x = 120 m and X = 190 m provide respectively 8.5 and 9 m³/h
(as determined by 48 h pumping test.

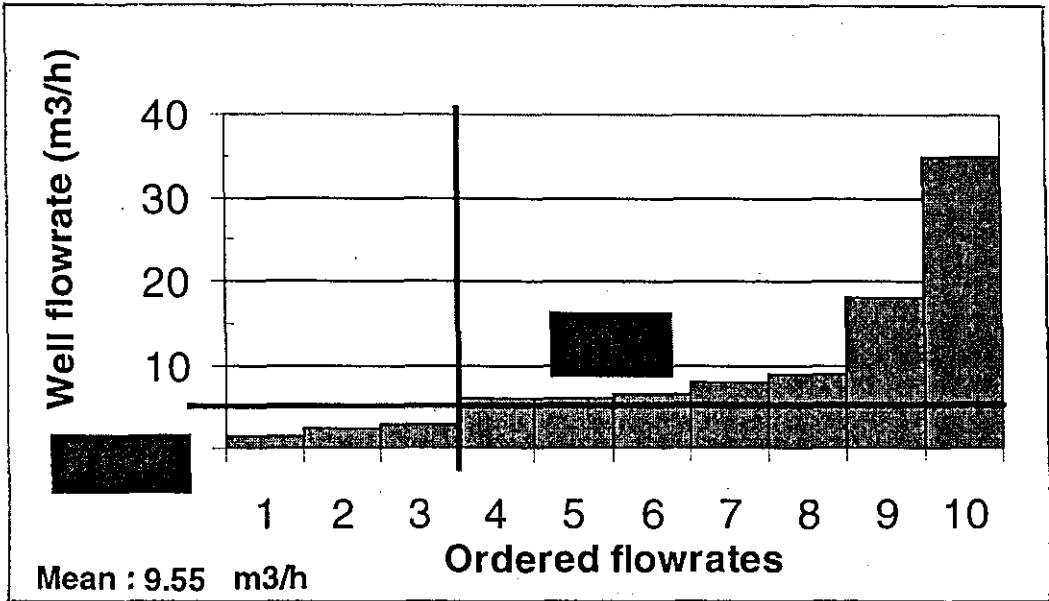


Fig. 4: First results obtained in French Guyana

First Results

The 10 first wells being drilled so far in Hard Rock aquifers in French Guyana, by using the methodology presented in this paper, show quite good results (Figure 4) : about two third of the wells provide long term (as determined by 48 hours pumping tests) yields that are over 5 m³/h.

References

- DAVID A. (1992): Influence des paramètres hydroclimatologiques sur les déplacements verticaux du radon-222 en zone non saturée.- Ph-D Thesis, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1992.- *Documents du BRGM n°236*, 1995.
- GUERIN F. (1991): Production et mécanismes de migration du radon-222 dans les milieux fissurés : application à la recherche des discontinuités perméables du socle cristallin.- Ph-D Thesis, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1991.- *Documents du BRGM n°242*, 1995.
- LACHASSAGNE P., BERARD P., CHERY L., DESPRATS J.F., DUPUY A., LE STRAT P. & WYNS R. (1998): Ressources en Eau de la Margeride Ouest. Bassin de la Truyère. Carte préliminaire des potentialités en eau souterraine du socle.- Conseil Général de la Lozère, Agence de l'Eau Adour Garonne.- *BRGM Report to be published (09/98)*.
- LACHASSAGNE P. & RAMPNOUX N. (1998): A three stages methodology, coupling radon emanometry and resistivity profiling, for large production rate water well siting in crystalline and volcanic hardrock aquifers, under humid tropical climate.- To be submitted to *Groundwater*, 1998.
- LACHASSAGNE P., CASTAING C., NEGREL Ph. & RAMPNOUX N. (1997a): Villages des fleuves de Guyane. Hydrogéologie du socle fracturé. Mise au point de méthodologies de prospection, exploitation et gestion des aquifères. Rapport d'avancement au 31 décembre 1996.- Conseil des Communautés Economiques Européennes, Conseil Régional Guyane, BRGM.- *Rapport BRGM R 39310*.
- LACHASSAGNE P., LAPORTE P., RAMPNOUX N. (1997b): Ile de Cayenne (Guyane). Hydrogéologie du socle fracturé. Mise au point de méthodologies de prospection, exploitation et gestion des aquifères. Rapport d'avancement au 31 décembre 1996.- Conseil des Communautés Economiques Européennes, Conseil Régional Guyane, BRGM.- *Rapport BRGM R 39311*.
- PINAULT J.L., BAUBRON J.L. (1997): Signal processing of diurnal and semi-diurnal variations in radon and atmospheric pressure : a new tool for accurate in situ measurements of soil gas velocity, pressure gradient, and tortuosity.- *Journal of Geophysical Research*, VOL. 102, NO. B8, PAGES 18,101-18,120, AUGUST 10, 1997.
- POINTET Th. (1992): L'eau des granites. Synthèse de l'étude d'exploitabilité des eaux souterraines en zone de socle au Burkina Faso.- *Rapport BRGM R33576*.

Caractérisation chimique et isotopique des pluies de Cayenne (Guyane française)

Philippe Négrel, Patrick Lachassagne et Pierre Laporte

C.R. Acad. Sci. Paris,
t. 324, série II a,
p. 379 à 386,
1997

Résumé Les précipitations journalières à Cayenne (Guyane française) ont été collectées entre janvier et octobre 1995 et ont été analysées pour les ions majeurs et les isotopes du milieu. L'anion dominant est systématiquement le chlorure, suivi par les sulfates ; nitrates et bicarbonates sont présents en quantités plus faibles. Pour les cations, l'ordre de prédominance n'est pas constant au cours du temps. La relation classique entre $\delta^2\text{H}$ et $\delta^{18}\text{O}$ sur les pluies mensuelles et les événements ponctuels en Guyane est une parfaite relation linéaire, dont l'équation est : $\delta^2\text{H} = 10,43 + 7,72 \delta^{18}\text{O}$; $R = 0,99$.

Mots clés : Eau de pluie, Guyane, France, Composition chimique, Isotopes stables.

P. N. : Département hydrologie
géochimie et transferts, Direction de
la recherche, BRGM, av. C-Guillemin,
BP 6009, 45060 Orléans cedex 2,
France ;

P. Lachassagne : Département
hydrologie géochimie et transferts,
Direction de la recherche, BRGM,
1039, rue de Pinville, 34000
Montpellier, France ;

P. Laporte : Service géologique
national, service géologique régional
Guyane, BRGM, route de Montabo,
domaine de Suzini, BP 552, 97333
Cayenne, Guyane française.

Abstract Chemical and isotopic characterization of rainwaters in Cayenne (French Guyana)

Daily rainfall in Cayenne (French Guyana) was collected between January and October 1995 and analyzed for major ions and environmental isotopes. Chloride is always the major anion and sulfate the second most prominent one. Nitrates and bicarbonates are also present but with lower contents. For cations, the order of predominance is not constant with time. The relationship between $\delta^2\text{H}$ and $\delta^{18}\text{O}$ on the monthly rainfall and punctual rainfall events is $\delta^2\text{H} = 10.43 + 7.72 \delta^{18}\text{O}$; $R = 0.99$.

Keywords: Rain water, French Guyana, France, Chemical composition, Stable isotopes.

**Abridged
English
Version**

WATER resources in French Guyana are poorly understood and the knowledge of groundwater circulation in the bedrock is of major importance for water supply. Groundwater characteristics result from the input of rainwater and water-rock interaction. Chemical and isotopic characterization of rainwater must be carried out before a geochemical study of groundwater can be used to determine its origin and exchange with the bedrock.

Rainwater was sampled in Cayenne-Suzini with a collector located 400 m from the sea. Monthly samples were systematically collected. Figure 1 shows monthly rainfall from January to October 1995 at both the Cayenne-Suzini weather station (data from Météo France) and our collector. The similarity of the two curves confirms the representativity of our sampling procedure.

The order of anions in the rainwater samples was $\text{Cl} > \text{SO}_4 > \text{HCO}_3 > \text{NO}_3$. For cations, the order was not constant. Chloride in rainwater comes entirely from seasalts, and Xi/Cl ion ratios (where Xi represents measured anions and cations) enable characterization of the sources of rainwater. The mean SO_4/Cl ratio, 0.17 ± 0.06 , is similar to that of seawater. The excess sulfate is determined using Cl content – assuming that Cl is exclusively of marine origin – and the SO_4/Cl ratio of seawater. The excess in SO_4 ranges from 6 to 43%, in agreement with commonly observed sulfate enrichment in coastal rainwaters (Galloway and Gaudry, 1984; Berner and Berner, 1987; Bonsang *et al.*, 1980). The mean NO_3/Cl ratio is 0.08 ± 0.08 and differs slightly from that of seawater. The great variability of this ratio indicates, however, an influence of atmospheric gases on NO_3 (Berner and

Note

présentée par
Zdenek Johan.

remise le 16 avril 1996,
acceptée après révision
le 16 décembre 1996.

Berner, 1987). The HCO_3^-/Cl ratio is at least one order of magnitude higher than that of seawater. The mean Na/Cl ratio is 0.48 ± 0.19 and differs slightly from that of seawater. The Ca/Cl ratio ranges from 0.02 (May, October) to 0.24 (January). The mean value is 0.08 ± 0.07 and differs significantly from that of seawater. As for Na, fractionation processes between Ca and Cl cannot be suggested and a terrestrial input of Ca dust must be considered. The mean Mg/Cl ratio is 0.06 ± 0.05 , similar to that of seawater. However, some Mg/Cl ratios are sufficiently higher than that of seawater to suggest, here again, a terrestrial input of Mg dust. The mean K/Cl ratio, 0.20 ± 0.20 , is one order of magnitude greater than that of seawater. This can be linked with vegetation, as shown by Crozat (1979).

We compared our $\delta^{18}\text{O}$ data to the IAEA

database for 1961-1975 and three observations can be made. In January and March, our values are the same as the mean values in the IAEA database. In April and May, our values fall within the range of values in the IAEA database. In February, June and July, our values fall outside of the range of values in the IAEA database. In all cases, our values are lower than those of the IAEA database. Our samples are richer in heavy isotopes and the difference increases between February and June. There is no correlation between $\delta^{18}\text{O}$ values and the mean air temperature. However, our data lie perfectly on the Yurtsever curve (1975) which groups 350 coastal rainwaters. The lack of correlation between these two parameters can be explained by the constancy of the air temperature which varies only by 7% (data from Météo France).

SITUATION DE L'ÉTUDE

La Guyane française (nord-est de l'Amérique du Sud) est à l'heure actuelle presque exclusivement alimentée en eau potable par des eaux de surface. La qualité du développement futur de ce département d'Outre-Mer passe par une diversification de ses sources d'approvisionnement en regard de la disponibilité des eaux de surface. Le BRGM mène un programme de recherche, dont l'objectif est de comprendre le fonctionnement hydrogéologique, ainsi que les modalités de valorisation des ressources en eau souterraine du socle guyanais. La caractérisation chimique et isotopique du signal « entrée » que représentent les précipitations constitue un préalable nécessaire à l'étude géochimique des eaux souterraines. Celle-ci est destinée à améliorer la connaissance des différents compartiments aquifères et la compréhension des modalités de leur recharge, des cheminements de l'eau souterraine et des échanges avec l'encaissant.

DESSCRIPTIF DE LA STATION ET MÉTHODE DE PRÉLÈVEMENTS

La campagne de prélèvements journaliers des pluies a débuté en janvier 1995 par l'installation d'un pluviomètre SPIEA (modèle météorologie nationale, à 1 m du sol) sur le site BRGM de Cayenne-Suzini, à 400 m du littoral, sur une surface dégagée de tout obstacle et à distance suffisante des objets environnants. Le pluviomètre collecte systématiquement la totalité des pluies et les échantillons sont stockés quotidiennement dans un jerrican en polyéthylène, préalablement lavé et contenant une couche d'huile de paraffine qui évite toute évaporation de l'échantillon. Le cumul de ces échantillons permet d'obtenir un échantillon mensuel représentatif de l'ensemble des pluies.

RÉSULTATS ET INTERPRÉTATIONS

1. Périodicité mensuelle en 1995

La figure 1 compare la pluviométrie mensuelle en 1995, entre la station Météo France

(Cayenne-Suzini) et le site BRGM. Les deux courbes sont en parfaite adéquation, exception faite de janvier et juin, où la quantité recueillie au BRGM est légèrement inférieure à celle mesurée par Météo France. La quasi-identité de ces deux courbes prouve que chaque échantillon analysé représente la totalité des pluies effectivement tombées au cours du mois considéré. Les données interannuelles de Météo France montrent la cyclicité des précipitations en Guyane : saison des pluies entre décembre et juin et saison sèche entre juillet et novembre. L'année 1995 se caractérise par un déficit pluviométrique important, de l'ordre de 30 %, par rapport à une année moyenne, principalement au cours de la saison des pluies.

2. Description du faciès chimique et isotopique des pluies mensuelles (tableau)

Le pH des échantillons mensuels présente une gamme de variation de 5,52 à 6,56 et un pH proche de celui de l'eau de mer n'est jamais observé. Un des prélèvements ponctuels est largement inférieur à cet intervalle (pH = 3,91). Cette anomalie est expliquée par une contamination par l'acide de lavage des flacons et est confirmée par une teneur supérieure à 10 ppm en NO_3 . L'ordre décroissant des abondances des anions est : $\text{Cl} > \text{SO}_4 > \text{HCO}_3 > \text{NO}_3$. Pour les cations, Na domine généralement, exception faite des mois de juillet, septembre et décembre, où $\text{K} > \text{Na}$. Les autres cations présentent des teneurs similaires les uns aux autres et Ca, Mg ou K peuvent aussi bien dominer après Na. Un seul échantillon (septembre) a une teneur en Si mesurable (100 ppb). Les $\delta^{18}\text{O}$ des eaux de pluies mensuelles varient entre -7,5 ‰ en juin et -2,2 ‰ en décembre et les $\delta^2\text{H}$ vont de -49,5 ‰ en juin à -0,1 ‰ en décembre.

3. Évolution temporelle des différentes espèces chimiques

La régression linéaire entre la teneur en Cl et la pluviométrie montre un coefficient de corrélation R de -0,58 statistiquement non significatif, car le seuil de signification est de

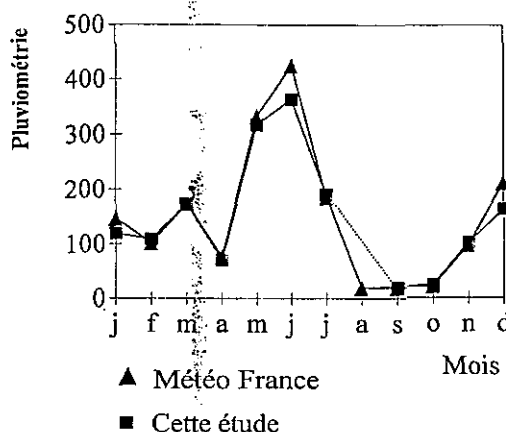


Fig. 1 Pluviométrie mensuelle en 1995 (données de Météo France).

1995 monthly rainfall (data from Météo France).

0,61 à 95 % de confiance. Cependant, les fortes teneurs en Cl correspondent à la pluviométrie la plus faible et les plus faibles valeurs à la pleine période de pluie (mai et juillet). La variabilité des concentrations en SO_4 et HCO_3 montre l'absence de lien direct entre les teneurs d'un échantillon mensuel et la pluviométrie (P), tandis que les teneurs en NO_3 évoluent de concert avec la pluviométrie ($\text{NO}_3 = 0,59 - 0,001 P$, $R = 0,66$).

L'évolution de la teneur en Na en fonction de la pluviométrie P fait ressortir une corrélation négative, du type : $\text{Na} = 3,50 - 0,01 P$, $R = -0,73$. Les trois autres cations ne sont pas corrélés avec la pluviométrie ($R = -0,41$ pour Ca, -0,58 pour K et -0,50 pour Mg). Pour K et Mg, R approche la valeur significative et une diminution de teneurs en pleine saison des pluies (mai-juin) est observée. Un seul échantillon en saison sèche présente une teneur en Si au-delà de la limite de détection, suggérant un apport de poussières continentales, seul vecteur de cet élément.

4. Rapports Xi/Cl

Le chlorure des eaux de pluie est considéré comme exclusivement d'origine marine (Meybeck, 1986, Berner et Berner, 1987), car il n'existe pas d'affleurement de roches salines, susceptible d'apporter une contribution en Cl à la pluie dans l'environnement du site étudié. Les rapports marins sont bien connus et nous utiliserons ceux donnés par Berner et

Tableau Résultats des analyses chimiques et isotopiques des pluies mensuelles prélevées à Cayenne. nd représente des paramètres non mesurables. Le pH est mesuré dès réception à Orléans. (HCO_3^-) a été mesuré par titration à HCl (méthode de Gran). Les ions inorganiques ont été mesurés en électrophorèse capillaire, en utilisant des étalons adaptés à l'échantillonnage compte tenu des faibles teneurs observées. Les isotopes stables ont été déterminés par spectrométrie de masse et sont exprimés en unité δ de déviation par rapport au standard (SMOW).

Results of chemical and isotopic analyses of the monthly rainwaters collected at Cayenne. nd represents non-measurable parameters. HCl titration and Gran's method were used for HCO_3^- . Inorganic ions were determined by capillary ion electrophoresis and stable isotopes by mass spectrometry and expressed in δ units (SMOW).

Échantillon	Pluvio- métrie	pH	HCO_3^-	Cl	SO_4	NO_3	Ca	Na	K	Mg	Si	$\delta^2\text{H}$	$\delta^{18}\text{O}$
	mm		ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	ppb		
Janvier	146,2	6,17	0,73	5,44	1,04	0	1,31	3,55	0,40	0,61	< 10	-5,1	-2,5
Février	101,5	6,4	3,93	6,95	0,17	0,19	0,33	3,93	1,14	0,68	< 10	-27	-4,9
Mars	173	6,2	1,27	4,53	0,64	0,19	0,25	2,46	0,29	0,37	< 10	-14,3	-3,4
Avril	76,4	6,12	1,32	7,36	1,12	0,22	0,67	2,61	0,74	0,42	< 10	-	-
Mai	332,6	6,12	0,098	2,47	0,5	0,095	0,05	0,87	0,21	0,06	< 10	-20,7	-4,2
Juin	426	5,74	0,68	1,06	0,26	0,22	0,05	0,34	0,06	0,05	< 10	-49,5	-7,5
Juillet	184,7	5,52	1,57	1,94	0,39	0,42	0,23	0,53	0,72	0	< 10	-33,2	-5,8
Août	19,4	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
Septembre	19,4	6,56	6,89	1,68	1,72	0,95	0,89	4,44	5,78	1,13	100	-0,1	-1,2
Octobre	21,8	6,03	3,33	6,5	1,04	0,23	0,15	2,40	1,77	0,18	< 10	-10,4	-2,3
Novembre	96,7	nd	nd	6,43	0,74	0,49	0,62	2,70	1,96	0,41	< 10	-12,6	-2,7
Décembre	212,1	nd	nd	4,34	nd	nd	0,53	1,64	2,43	0,04	< 10	-7,4	-2,2
03-Mai	—	5,64	0,56	3,98	0,95	0,21	0,13	1,42	0,14	0,10	< 10	-22,3	-4,6
03-Juin	—	3,91	nd	1,68	0,2	10,92	0,24	0,61	0,13	0,04	< 10	-44,5	-7,2
03-Déc	—	nd	nd	1,32	nd	nd	3,39	1,90	13,04	3,30	< 10	-15,7	-3,2

Berner (1987) et les rapports ioniques Xi/Cl , où Xi représente un anion ou un cation (à l'exception de Si), permettent de mieux caractériser les différentes sources nuageuses donnant les pluies.

Le rapport SO_4/Cl des pluies varie de 0,02 (février) à 0,25 (juin). Le rapport moyen sur l'année ($0,17 \pm 0,06$) est proche de l'eau de mer (0,14). L'origine exclusivement marine du chlorure et majoritairement marine des sulfates (Berner et Berner, 1987) explique cette ressemblance entre les rapports SO_4/Cl de l'eau de mer et la valeur moyenne obtenue sur les pluies de Cayenne. L'excès de SO_4 (Berner et Berner, 1987), calculé en utilisant la teneur en Cl des pluies et le rapport SO_4/Cl de l'eau de mer, donne la teneur théorique en SO_4 dérivée des aérosols marins. Ce paramètre varie entre 6 et 43 %, ce qui montre le net enrichissement des pluies en SO_4 . Seule la valeur du mois de février, négative, traduit un possible fractionnement entre Cl et SO_4 (Berner et Berner, 1987). De tels enrichissements

dans des pluies côtières sont classiques, et généralement attribués à l'oxydation, dans l'atmosphère, de gaz sulfurés réduits par les bactéries dans les environnements côtiers et estuariens (Galloway et Gaudry, 1984 ; Bonsang *et al.*, 1980). Le rapport NO_3/Cl des pluies varie de 0 (janvier) à 0,22 (juin, juillet). La moyenne, $0,08 \pm 0,08$ est peu différente de celle de l'eau de mer (0,06). Cependant, la grande variabilité des rapports NO_3/Cl (0-0,22) montre que les nitrates ne sont pas directement liés au chlorure. Leur origine est à rechercher dans les gaz de l'atmosphère pour les échantillons dont les rapports NO_3/Cl sont supérieurs à celui de l'eau de mer. Pour les échantillons dont les rapports NO_3/Cl sont inférieurs à celui de l'eau de mer, une perte de NO_3 est à envisager. En tout état de cause, NO_3 est majoritairement d'origine continentale et, bien que ses variations dans les pluies côtières soient importantes, l'océan ne contribue que faiblement aux apports. Le rapport HCO_3/Cl des pluies men-

suelles varie de 0,04 (mai) à 0,89 (septembre) et est au minimum supérieur d'un ordre de grandeur par rapport à celui de la mer (0,006). Le CO_2 de l'air en constitue l'origine principale (Berner et Berner, 1987). Le rapport Na/Cl des pluies mensuelles varie de 0,27 (avril, juillet) à 0,65 (janvier). La valeur moyenne, $0,43 \pm 0,14$ est peu différente de celle de l'eau de mer. Le rapport Ca/Cl varie de 0,02 (mai, octobre) à 0,24 (janvier), sans variations saisonnières marquées. La valeur moyenne, $0,08 \pm 0,07$, est relativement différente de celle de l'eau de mer (0,021). Aucune étude n'a pu montrer de fractionnement entre Ca et Cl et un apport de Ca d'origine continentale doit donc être envisagé pour expliquer les valeurs au-dessus de la moyenne marine. Ce calcium peut être lié à des apports de poussières continentales entre les pluies et issues de source(s) locale(s), ou à une circulation de particules carbonatées plus générale à l'échelle de l'atmosphère, comme l'ont déjà montré certains travaux (Ichikuni, 1978 ; Duce *et al.*, 1980 ; Suzuki et Tsunogai, 1988). Le rapport Mg/Cl varie de 0,01 (décembre) à 0,15 (septembre), avec une valeur moyenne de $0,06 \pm 0,05$, proche de celle de l'eau de mer (0,061). Cependant, plusieurs rapports Mg/Cl supérieurs à celui de l'eau de mer caractérisent, comme Ca, un enrichissement en Mg par des poussières continentales. Le rapport K/Cl varie de 0,05 (juin) à 0,74 (septembre), avec une valeur moyenne de $0,25 \pm 0,23$ qui diffère de celle de l'eau de mer d'un ordre de grandeur (0,02). Cette augmentation des rapports est à relier à l'émission d'aérosols par la végétation, aérosols très enrichis en K (Croizat, 1979).

5. Évolution des isotopes de l'eau

Les processus physiques les plus importants qui fractionnent les isotopes stables dans les pluies sont l'évaporation ou la condensation, au-dessus de l'océan. Au cours d'un même épisode pluvieux, la pluie apparaît de plus en plus appauvrie en ^{18}O et en deutérium. Ainsi, à une même station – par exemple au bord de la mer –, les pluies définissent généralement une relation linéaire, et la position sur cette droite ne dépend que de la

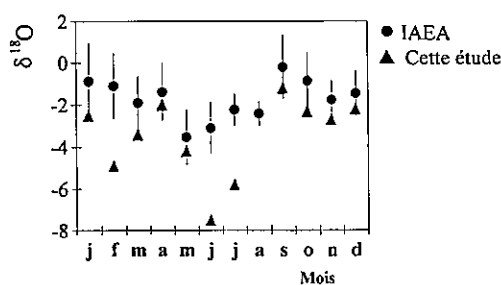


Fig. 2 Représentation des $\delta^{18}\text{O}$ des pluies mensuelles prélevées à Cayenne. Comparaison avec les données historiques de l'IAEA (valeurs moyennes et écarts types).

Plot of the $\delta^{18}\text{O}$ on the monthly rainwaters collected at Cayenne. Comparison with the IAEA data (mean values and standard deviations).

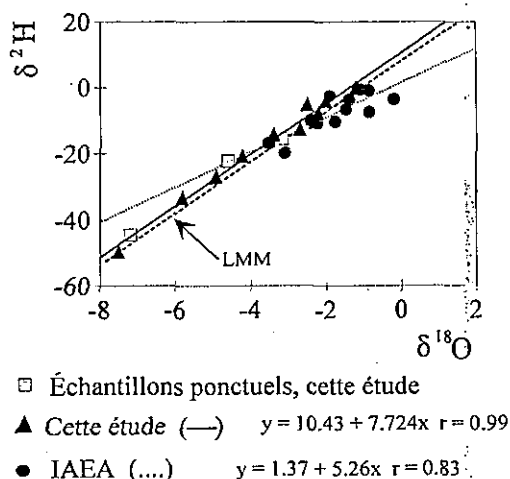
quantité de pluie précipitée entre le moment où la masse d'air est passée au-dessus de l'Océan et la dernière pluie tombée. La comparaison des valeurs obtenues aux données IAEA (valeur moyenne mensuelle et écart type sur la période 1961–1975) permet de distinguer trois types de comportements (fig. 2). En avril et mai, il y a adéquation entre cette étude et la moyenne IAEA. En janvier, mars, et septembre à décembre, la valeur est dans la gamme de variation donnée par l'IAEA. En février, juin et juillet, la valeur est inférieure à celles de l'IAEA.

L'absence de relation entre le rapport $\delta^{18}\text{O}$ et la température peut s'expliquer par la constance de ce dernier paramètre au cours de l'année (variabilité de 7 %, Météo France). Cependant, les données de cette étude se reportent parfaitement dans la courbe de Yurtsever (1975), qui montre que les variations isotopiques sont contrôlées par un effet de température.

La figure 3 illustre les relations entre $\delta^{18}\text{O}$ et $\delta^2\text{H}$ pour les précipitations recueillies en Guyane en 1995, les données de l'IAEA (1962–1975), ainsi que la ligne météorique mondiale LMM ($\delta^2\text{H} = 8 \delta^{18}\text{O} + 10$; Craig, 1961). L'ensemble des mesures effectuées en 1995 en Guyane définit une parfaite relation linéaire d'équation : $\delta^2\text{H} = 10,43 + 7,72 \delta^{18}\text{O}$; $R = 0,99$ proche de la LMM. Une corrélation différente ($\delta^2\text{H} = 1,37 + 5,26 \delta^{18}\text{O}$; $R = 0,83$) est obtenue avec les données historiques de l'IAEA. Cette différence peut s'expliquer par un effet de moyenne, car la régression obtenue sur nos données représente les précipitations de 1995, alors que la régression des données IAEA correspond à 13 années de suivi. Sur l'ensemble des échantillons analy-

Fig. 3 Relations entre les rapports $\delta^{18}\text{O}$ et $\delta^2\text{H}$ des pluies mensuelles prélevées à Cayenne.

Plot of the $\delta^{18}\text{O}$ and $\delta^2\text{H}$ ratios on the monthly rainwater samples collected at Cayenne.



sés, l'excès en deutérium (d) varie de 8 à 14,9 ‰ (moyenne de 11,4 ‰), suggérant une légère déviation par rapport à la droite météorique mondiale (d = 10 ‰).

6. Comparaison avec les données bibliographiques

Il est possible de comparer les données de Cayenne avec celles décrites dans la littérature pour des zones géographiquement proches. Les pH au cœur de l'Amazonie (4 à 5,7, Stallard et Edmond, 1981 ; Forti et Moreira-Nordemann, 1991) et en Guyane, (5,4 à 30 km à l'intérieur des terres, Grimaldi, 1988) sont légèrement inférieurs à ceux mesurés dans nos échantillons.

Les valeurs mondiales des pluies côtières sont de 6 ppm de Cl et de 4,83 ppm pour celles des côtes américaines (Berner et Berner, 1987) et sont totalement compatibles avec celles obtenues dans le cadre de cette étude ($4,98 \pm 2,29$ ppm). Pour les sulfates, la valeur mondiale est de 1,45 ppm et de 2,45 ppm sur les côtes américaines. Ces valeurs sont plus élevées que celles de Guyane ($0,76 \pm 0,5$ ppm). Les nitrates varient de 0,04 à 1,13 ppm sur les côtes américaines et de 0,06 à 3,35 ppm sur celles de l'hémisphère Nord (Berner et Berner, 1987). Les valeurs mesurées en Guyane sont du même ordre de grandeur ($0,28 \pm 0,28$ ppm).

Pour des zones géographiquement proches, Grimaldi (1988) trouve des teneurs en Cl de l'ordre de 0,4 ppm à 30 km à l'intérieur des terres en Guyane, associées à des teneurs en SO_4 de 0,2 ppm. A Yaou, à 200 km à l'intérieur des terres, les teneurs en Cl varient entre 0,31 ppm en saison humide et 0,82 ppm en saison sèche (Farah, 1994). De même, les teneurs en SO_4 et NO_3 varient respectivement entre 0,3 et 0,5 ppm et 0,05 et 0,4 ppm. Ces valeurs, beaucoup plus faibles que celles mesurées à Cayenne, traduisent l'abatement des aérosols marins par les pluies. Une diminution des teneurs en Cl dans les pluies et la fraction dissoute des rivières est également observée en Amazonie, depuis le littoral vers l'intérieur des terres (Forti et Moreira-Nordemann, 1991 ; Stallard et Edmond, 1981).

Une diminution semblable, mais sur un intervalle de distance beaucoup plus faible, a été observée en Afrique, par Négrel et al. (1993). Les sulfates et nitrates montrent généralement une évolution similaire, mais nettement moins marquée. Les bicarbonates ont été mesurés en moyenne à 0,43 ppm par Grimaldi (1988), contre $2,2 \pm 2,16$ ppm à Cayenne. Les teneurs en HCO_3 des pluies à Yaou et à Cayenne sont proches. Le sodium et le calcium des pluies marines varient respectivement de 0,4 à 130 ppm et de 0 à 4,8 ppm (Galloway et Gaudry, 1984 ; Losno et al., 1991 ; Berner et Berner, 1987). La compilation présentée par Berner et Berner (1987), pour les pluies côtières mondiales, donne une valeur en Na de 3,45 ppm et en Ca de 0,29 ppm et respectivement de 3,68 ppm et 0,58 ppm pour les côtes américaines. Les teneurs mesurées à Cayenne (Na $2,26 \pm 1,36$; Ca $0,42 \pm 0,39$) s'intègrent bien dans cet intervalle. Les fortes valeurs en Ca de certaines pluies guyanaises ont été expliquées plus haut. Pour Mg, les valeurs des pluies marines varient de 0,02 à 15,6 ppm et la valeur moyenne des pluies côtières mondiales est de 0,45 ppm. A nouveau, les pluies de Guyane ($0,35 \pm 0,35$ ppm) sont compatibles avec la valeur mondiale. Pour K, les pluies marines présentent des teneurs variant de près de 0 à 5 ppm, la valeur moyenne mondiale des

pluies côtières est de 0,17 ppm et de 0,24 ppm pour les pluies côtières moyennes aux États-Unis (Berner et Berner, 1987). La forte valeur des pluies guyanaises ($1,39 \pm 1,6$ ppm) peut s'expliquer par un effet végétatif (Croizat, 1979), comme nous l'avons vu précédemment.

En Amazonie, comme pour Cl, Na et Mg montrent une forte diminution des teneurs entre le littoral et l'intérieur des terres (Stallard et Edmond, 1981; Forti et Moreira-Nordemann, 1991). En revanche, Forti et Moreira-Nordemann (1991) montrent que Ca et K évoluent peu sur les 250 premiers kilomètres et chutent de manière plus importante entre 250 et 600 km. Ces auteurs montrent également de plus fortes teneurs en Ca et K que celles de Stallard et Edmond (1981), traduisant un apport continental pour Ca et une influence de la végétation pour K. Grimaldi (1988) trouve des teneurs en Ca, Mg, K et Na faibles par rapport aux pluies de Cayenne, ce qui traduit l'abatement des aérosols marins durant le trajet vers l'intérieur de la Guyane. A Yaou (Farah, 1994), les fluctuations de Na, de 0,76 ppm en saison sèche à 0,21 ppm en saison humide, sont inférieures à celles obtenues à Cayenne (ce travail) et supérieures à celles de Grimaldi (1988) en moyenne annuelle, ce qui indique une hétérogénéité spatiale et/ou temporelle des pluies. Le calcium est donné à 0,1-0,22 ppm sur l'année à Yaou, ce qui est équivalent à la

valeur de Grimaldi (1988) et légèrement inférieure à la valeur moyenne à Cayenne (0,42 ppm). Mg est donné à 0,1 ppm à Yaou (Farah, 1994), supérieur à la valeur de Grimaldi (0,05 ppm; 1988) et largement inférieur à la valeur de Cayenne (0,42 ppm). Cela confirme l'influence de poussières continentales à Cayenne. Finalement, K à Yaou varie de 0,12 à 0,2 ppm entre les saisons sèches et humides (Farah, 1994), ce qui est compatible avec la valeur de 0,15 ppm donnée par Grimaldi (1988), elle-même inférieure d'un ordre de grandeur par rapport à celle de Cayenne (ce travail), confirmant une influence de la végétation au niveau du point de collection des pluies.

CONCLUSION

L'étude annuelle des pluies prélevées à Cayenne permettra de disposer d'un référentiel, tant du point de vue chimique (éléments majeurs) qu'isotopique (isotopes stables), en vue d'améliorer la connaissance des hydrosystèmes de la Guyane et, en particulier, pour déterminer les modalités de la recharge des différents compartiments aquifères. Cette caractérisation de la pluviométrie a été précisée en 1996, à l'échelle de l'ensemble de la Guyane, par la mise en œuvre de transects perpendiculaires au littoral et complétée par des mesures isotopiques de strontium.

BONSANG, B., NGUYEN, B.C., GANDRY, A., LAMBERT, G. 1980. Sulfate enrichment in marine aerosols owing to biogenic gaseous sulfur compounds, *J. Geophys. Res.*, 85, p. 7410-7416.

BERNER-KAY, E. et BERNER, R.A., 1987. *The global water cycle. Geochemistry and environment*, Prentice Hall, 396 p.

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

CROZAT, G., 1979. Sur l'émission d'un aérosol riche en potassium par la forêt tropicale, *Tellus*, 31, p. 52-57.

DUCE, R.A., UNNI, C.K., RAY, B.J., PROSPERO, J.M. et MERRILL, J.T., 1980. Long range atmospheric transport of soil dusts from Asia to the tropical North Pacific, *Science*, 209, p. 1522-1524.

FARAH, S., 1994. Bilan de l'érosion chimique et mécanique dans un bassin forestier en milieu tropical humide. Prospect aurifère de Yaou, Guyane française. Rapp. BRGM R37993, 153 p.

FORTI, M.C. et MOREIRA-NORDEMAN, L.M., 1991. Rainwater and Throughfall Chemistry in a « Terra Firme » Rain forest: Central Amazonia, *J. Geophys. Res.*, 96, p. 7415-7421.

GALLOWAY, J.N. et GAUDRY, A., 1984. The composition of precipitation on Amsterdam Island, Indian Ocean, *Atmosph. Environ.*, 18, p. 2649-2656.

GRIMALDI, C., 1988. Origine de la composition chimique des eaux superficielles en milieu tropical humide : exemple de deux petits bassins versants sous forêt en Guyane française, *Sci. Géol. Bull.*, 41, n° 3-4, p. 247-262.

ICHIKUNI, M., 1978. Calcite as a source of excess Ca in rainwater, *J. Geophys. Res.* 83, C2, p. 6249-6252.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA).- Environmental isotope data.

LOSNO R., BERGAMETTI G., CARLIER P. et MOUVIER G., 1991. Major ions in marine rainwater with attention to sources of alkaline and acidic species, *Atmos. Environ.*, 25A, p. 763-770.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- MÉTÉO FRANCE. *Bulletin climatologique annuel*, 1993 ; 1994 ; 1995.
- MEYBECK, M., 1986. Composition chimique des ruisseaux non pollués de France, *Sci. Géol. Bull.*, 39, p. 3-77.
- NÉGREL, Ph., ALLÈGRE, C.J., DUPRÉ, B. et LEWIN, E., 1993. Erosion sources determined from inversion of major, trace élément ratios and strontium isotopic ratio in riverwater: the Congo Basin case, *Earth Planet. Sci. Lett.*, 120, p. 59-76.
- STALLARD, R.F. et EDMOND, J.M., 1981. Precipitation chemistry and the marine contribution to the dissolved load at the time of peak discharge, *J. Geophys. Res.*, 86, p. 9844-9858.
- SUZUKI, T., TSUNOGAI, S., 1988. Origin of calcium in aerosols over the Western North Pacific, *J. Atmos. Chem.*, 6, p. 363-374.
- YURTSEVER, Y., 1975. Worldwide survey of stable isotopes in precipitation, *Rep. Sect. Isotope Hydrol.*, IAEA, 40 p.