

Caractérisation des écoulements souterrains en milieu fissuré par approche couplée hydrologie-géochimie-hydrodynamisme : application au massif de l'Ursuya (Pays Basque, France)

Jessy Jaunat

► To cite this version:

Jessy Jaunat. Caractérisation des écoulements souterrains en milieu fissuré par approche couplée hydrologie-géochimie-hydrodynamisme : application au massif de l'Ursuya (Pays Basque, France). Sciences de la Terre. Université Michel de Montaigne - Bordeaux III, 2012. Français. NNT : 2012BOR30074 . tel-00778427v2

HAL Id: tel-00778427 https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00778427v2

Submitted on 20 Sep 2013

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers. L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITE MICHEL DE MONTAIGNE - BORDEAUX 3

ED 480 Montaigne Humanités

THESE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE BORDEAUX 3 Discipline : Science et Technologie Spécialité : Sciences de l'eau

Présentée par

Jessy JAUNAT

Caractérisation des écoulements souterrains en milieu fissuré par approche couplée hydrologiegéochimie-hydrodynamisme

Application au massif de l'Ursuya (Pays Basque, France)

Directeur de thèse : M. Philippe LE COUSTUMER

Co-directeurs de thèse : M. Alain DUPUY, Pr. Frédéric HUNEAU

Soutenue le 07 décembre 2012 devant la commission d'examen

M. René THERRIEN	Professeur, Université Laval, Québec	Président
M. Zbyněk HRKAL	Professeur, Charles University, Prague	Rapporteur
M. Patrick LACHASSAGNE	HDR, Resp. Env. et Ressources en Eau, Danone Eaux - France	Rapporteur
M. Philippe LE COUSTUMER	MCU HDR, Université Bordeaux 1	Examinateur
M. Alain DUPUY	MCU HDR, IPB - Université de Bordeaux	Examinateur
M. Frédéric HUNEAU	Professeur, Université de Corse Pascal Paoli, Corte	Examinateur
Mme. Hélène CELLE-JEANTON	MCU HDR, Université Blaise Pascal, Clermont-Ferrand	Invitée

Remerciements

Le temps est venu de faire un point sur plus de trois années bien remplies. Au début de cette thèse, je pensais avoir signé un contrat de travail de trois ans. J'ai très vite réalisé que ce serait tout à fait différent. « Le doctorat de recherche, est l'aboutissement d'un premier travail de recherche original, suivi de la rédaction d'une thèse et de sa soutenance devant un jury académique » (Wikipédia.org, 2012)... Oh toi, nouveau doctorant récemment inscrits en thèse et qui tombe par hasard sur ces quelques lignes, parce que tu prends encore le temps de lire les remerciements quand tu fais de la biblio, saches que ce que tu l'apprêtse à vivre n'est pas écrit dans cette définition. La réalisation de cette thèse a été pour moi, outre un apprentissage/perfectionnement de notions scientifiques, une aventure humaine, au cours de laquelle j'ai appris autant sur moi que sur l'hydrogéologie des milieux de socle. Une thèse, c'est également des gens qui vous entourent. A ces personnes, qui m'ont accompagnées pendant trois ans, depuis beaucoup plus pour d'autres, et pour encore des années j'espère, je dois maintenant dire merci. C'est donc avec une certaine appréhension que je m'apprête à écrire les dernières lignes de ce manuscrit, et à tourner la page d'une partie inoubliable de ma vie.

Je souhaite tout d'abord exprimer ma plus profonde reconnaissance à M. Alain Dupuy et à M. le Professeur Frédéric Huneau. Vous m'avez tous deux, chacun à votre manière, appris bien plus que des notions d'hydrodynamisme pour l'un et de géochimie pour l'autre. Merci de m'avoir fait partager vos expériences, vos connaissances, et de m'avoir ouvert les yeux sur le métier d'hydrogéologue, dans toutes les formes qu'il peut prendre. Travailler à vos côtés a été riche, scientifiquement et humainement.

Merci également à M. Philippe Le Coustumer pour avoir assuré la direction administrative de cette thèse et pour ses encouragements constants. Mme Hélène Celle-Jeanton, merci pour m'avoir soutenu dans des moments parfois difficiles. Merci également pour m'avoir tout appris sur l'origine des masses d'air et sur la chimie de la pluie ainsi que pour tes remarques constructives, sur ce manuscrit comme sur les articles qui l'accompagnent.

J'adresse mes remerciements les plus sincères à M. le professeur René Therrien pour m'avoir fait l'honneur de se déplacer depuis l'autre bout du monde pour présider ce jury de thèse. Merci également à M. Le professeur Zbyněk Hrkal et M. Patrick Lachassagne pour avoir accepté de juger ce travail. J'espère avoir l'occasion de vous croiser le plus souvent possible.

Je tiens également à remercier chaleureusement M. Michel Franceschi pour m'avoir tout appris au labo, et pour m'avoir autorisé à toucher au Dionex, et même parfois à le démonter... Pour le reste, j'y reviendrai. Merci également à M. François Larroque pour ses relectures et son opinion de modélisateur sur le dernier chapitre de ce manuscrit (et oui, il est calé ce modèle...). Merci également à François pour m'avoir tant fait marrer avec des blagues que je mettais parfois plusieurs heures à comprendre... Ce travail est le fruit d'une collaboration notamment avec le Conseil Général des Pyrénées-Atlantiques et l'Agence de l'Eau Adour-Garonne. Je tiens donc à remercier tout particulièrement ceux sans qui cette thèse ne serait pas. M. Henri Pellizarro, du CG64, merci pour m'avoir offert ce terrain de jeux exceptionnel qu'est le massif de l'Ursuya. M. Pierre Marchet, de l'AEAG, merci pour vos nombreux conseils au cours de ces travaux.

Les résultats acquis au cours de cette étude étant en grande partie issus de travaux sur le terrain, je tiens à remercier tous ceux qui m'ont accompagné sur site, sous la pluie ou sous le soleil (mais le plus souvent sous la pluie quand même...) et notamment les étudiants de master qui ont travaillé sans relâche pendant plusieurs semaines pour mener à bien les travaux de cartographie. Ces résultats constituent un élément majeur de cette thèse, et je me dois de remercier Yohana, Romain, Rémy, Aurore, Guillaume et Cécile pour leurs efforts.

Pendant plus de trois ans, j'ai donc passé beaucoup de temps sur le terrain, et quel terrain !!! En plus de ce manuscrit et des articles qui l'accompagnent, je pourrais envisager de rédiger un guide touristique du Pays Basque qui serait consacré aux alentours de l'Ursuya et du Baïgurra. J'y parlerais des Pottoks et des brebis qui vous accompagnent quand vous vous sentez seuls sous la pluie, des paysages merveilleux depuis le sommet de l'Ursuya, du Baïgurra ou de l'Artzamendi (rares endroits des Pyrénées d'où l'on peut observer à la fois le Pic du Midi d'Ossau, le Pic d'Anie, La Rhune, La Baie de Saint-Jean-de-Luz, le Port de forêt Landaise). Bayonne, les dunes et la J'yparlerais également du restaurant/bar/alimentation Ostatua à Macaye : une fois que l'on a osé y entrer, il est difficile d'en sortir. En tout cas, évitez d'y aller si vous devez travailler après. Je parlerais également de l'auberge Etchebarne à Mendionde (les meilleures frites que j'ai mangées de ma vie) et de son accueil exceptionnel. La fromagerie Agur à Hélette, le camping Chapital à Hasparren, l'hôtel Ursula à Cambo-les-Bains, les gites et chambres d'hôtes d'Itxassou... Mais finalement, je crois que je consacrerais le plus long chapitre aux habitants de ce pays. A eux, je tiens à attribuer mes plus sincères remerciements pour leur accueil plus que chaleureux et pour m'avoir fait me sentir un peu chez moi dans le Pays-Basque (et pour un bordelais, c'était pas gagné). Parmi ces habitants, je citerais ceux avec qui j'ai eu l'occasion de travailler, d'échanger, de boire un verre, de manger un bout de fromage, ou encore ceux qui *m'ont accordé un petit bout de terrain pour mes instruments de mesure : la famille Agesta à* Mendionde; M. Francois Bidegorry des services techniques de Cambo-les-Bains; Mme Sophie Bidegorry des services techniques de Hasparren ; M. Dominique Claverie, président du SIAEP de Macaye-Louhossoa; M. Jérome Elizagoïen, des services techniques de Mendionde; M. Jaureguiberry des services techniques de Macaye; M. Patrick Mastoumecq, des services techniques de Hasparren; M. Henri Fortis du CG64 à Cambo-les-Bains; M. Lucien Betbeder, Maire de Mendionde, M. Dubos, Directeur de la régie des eaux de Bayonne. Je finirais par Messieurs Jean Jacques Arguindeguy et Simond Jaussaud qui m'ont fait l'honneur de faire le déplacement jusqu'à Bordeaux pour assister à ma soutenance de thèse. Je vous en suis très reconnaissant.

Remerciements

Beaucoup de temps sur le terrain donc, mais également beaucoup de temps dans les murs de l'EGID, aujourd'hui ENSEGID. D'autres bons moments, et d'autres personnes à remercier pour leur accueil, leur bonne humeur, leurs conseils... Merci donc à l'ensemble du personnel de l'ENSEGID, enseignants-chercheurs, personnel administratif et technique, doctorants et post-doctorants. Alicia et Christine, que serait cette école sans vous ? Florence, pour ta gentillesse et ta disponibilité. Jean-Marie qui dirige de mains de maître tout ce petit monde. Marian, heureux de t'avoir retrouvé, on se revoit dans dix ans ? Franck...heu...Je commence par l'informatique ou par le reste ? Il faut bien dire que Franck est un être incompréhensible mais qui fait du bien. Tu resteras pour moi le seul type qui puisse devenir dingue de surf alors qu'il vient de s'acheter pour un mois de salaire de matos d'escalade mais que quand même l'accrobranche c'est ce qu'il y a de mieux du coup j'investis dans une slackline parce que pour passer le permis moto c'est mieux d'avoir un camping-car mais en fait je préfère habiter à Audenge. Ou à Libourne. Ou à Talence. Ou à Arveyres...Chapeau l'artiste. Franck, ta gentillesse n'a d'égale que ton humour, et je ne me lasserais jamais de nos discussions de psychologie de comptoir autour d'une bouteille, ou de deux, ou de trois, ou de... En fait, ça dépend si Michel est là. Michel, sans qui je n'aurais jamais réussi à faire la moindre analyse. Au-delà de ça, mon ancien prof de chimie est devenu un ami, et rien que pour cela, cette thèse valait le coup. Merci donc à vous deux pour votre amitié. Surtout ne changez rien.

L'ENSEGID, c'est aussi un bon nombre de doctorants. Aux nouveaux (Nazeer, Morgan, Alex, Johan, ceux que j'oublie), que la force soit avec vous, ne lâchez rien, ça vaut le coup. A ceux dont la fin approche (Jimmy, Amélie, Greg, Fanny, Ben, Estefania, Yohana, Jec, ceux que j'oublie), que la force soit avec vous, ne lâchez rien, ça vaut le coup. A vous tous, sachez que les moments passés à vos côtés resteront gravés à jamais, et je les espère encore nombreux. Parmi ces doctorants, une relation particulière s'établie avec les colocataires de bureaux. Dans l'ordre chronologique : Olivier et Yohana. Comment ne pas m'arrêter sur ces deux personnages qui ont partagé ma vie pendant plus d'un an chacun à leur tour. Olivier, tu es juste devenu une personne indispensable pour moi. Même à quelques centaines de kilomètres, c'est bon de savoir qu'il y a quelqu'un sur qui on peut compter. En plus en Audi ça va plus vite. Yohana, ce fut un bonheur de partager ton quotidien. Nous avons eu l'occasion de partager nos joies et nos doutes pendant tout ce temps, et cela nous a rapproché. Merci pour ton aide au quotidien, merci pour ce sourire qui me mettait chaque matin de bonne humeur. Ton amitié a pour moi une valeur inestimable. Maintenant, tu vas pouvoir apprendre à parler français comme il faut, et pas le français de Jessy... Enfin, merci à tous ceux qui n'ont fait que passer, mais qui en ont profité pour laisser une trace ineffaçable. Bruno (mon maître d'escalade, qui parcourt le monde maintenant), Christophe (tabernacle, tu nous manque ici), Cyril et Jehanne (vous vous souvenez de la compétition lancée lors de votre dernier départ ? De notre côté, on va enfin pouvoir y bosser dur maintenant), Adrien (mon maçon du cœur...). Tant d'amis rencontrés au cours de cette aventure. Mais comment ne pas remercier également les amis de longue date, sans qui je n'aurais jamais persévéré à la fac (même si les soirées étudiantes y sont pour beaucoup, d'accord). Sandrine, Johana, Mallefond, Nico le fou, Rabin, Ambroise, Pierre Robert, le collectif des pères siffleurs et de l'antidote réuni, Sam et Steph, j'ai vécu avec vous les plus folles années de ma vie.

Je ne me rappelle pas de tout, mais ce dont je suis sûr, c'est que vous resterez pour toujours dans mon cœur. Les quelques moments passés avec vous pendant ma thèse me permettaient de m'évader et de quitter pour quelques heures le monde des aquifères fissursé, et ça fait du bien. J'espère que nos chemins continueront de se croiser le plus souvent possible (c'est bon, vous avez lu ce qui vous concerne, vous pouvez fermer). Un grand merci aussi à Solina et Olivier, rencontrés il y a peu, mais qui sont déjà des amis proches. Des voisins comme ça, on en rêve. Merci pour votre aide (surtout pour le déménagement...) et votre soutien dans la construction de notre nouvelle vie. Il nous reste quand même une dernière chose à faire ensemble à Bordeaux : on se le fait quand ce Pont d'Aquitaine ???

Venons-en à la personne qui a eu la patience de me supporter pendant ces années, et particulièrement ces derniers mois. Merci Béné, d'avoir supporté mes sautes d'humeur, mes baisses de moral, mes répétitions, mon absence. Merci d'avoir été là pour moi, je te suis infiniment reconnaissant. Ton écoute, ton soutien, m'ont permis d'aller au bout. Heureusement que je t'ai trouvé au début de cette thèse, sans toi, certains moments auraient été bien plus difficiles à supporter. Je suis également assez fier d'être parvenu à te faire comprendre certains rudiments de l'hydrogéologie. Je n'oublierai jamais ces quelques journées que tu as passées avec moi sur le terrain, et je te revois encore te vautrer dans la boue, ou au milieu des ronces, toujours avec le sourire. Ce sourire qui fait que, chaque soir, je suis heureux de te retrouver. Une nouvelle vie commence pour nous deux, et après tout ça, elle ne peut qu'être radieuse.

Enfin, les personnes qui m'ont entouré depuis trente ans maintenant. Il est des familles dans lesquelles les liens qui unissent leurs membres sont indescriptibles et plus forts que tout. La mienne fait partie de celles-là. Je tiens à exprimer l'émotion que m'a procuré la présence et les encouragements de ma grand-mère, mes oncles, tantes, cousins, cousine, qu'ils viennent du Canada, de Toulouse, de Gaillagos (je ne suis pas sûr de moi là) des Eglisottes et Chalaures ou de Cestas. Merci à vous tous.

Mon grand frère, seule personne (non encadrants ou jury) à avoir lu ce manuscrit dans son intégralité. Alors là, je m'incline... Lire 330 pages, de façon attentive, en prenant des notes et en faisant des remarques, en comprenant peut-être la moitié de ce qui y est écrit... C'est un challenge que je n'oserai pas relever. Finalement, tu as commencé le travail par me faire faire des additions et des dictées il y a deux décennies, et tu finis avec la relecture de ma thèse... Je te remercie encore pour tout ce que tu as toujours fait pour moi.

Je finirai par ceux qui m'ont conduits jusque-là, à qui je dédie cette thèse. Papa, maman, si j'ai écrit ces pages, c'est grâce à vous, et c'est surtout pour vous. Cette thèse est pour moi le moyen de vous remercier pour votre soutien et de vos encouragements tout au long de ma vie.

<u>Ezína, ekínez egína</u>

Proverbe basque

Résumé

Les aquifères fracturés sont un enjeu majeur de l'hydrogéologie actuelle. Ils constituent une ressource essentielle pour de nombreuses populations. Le massif de l'Ursuya (France, 64), en est une illustration. Constitué de formations métamorphiques fracturées, il est intensément exploité pour l'alimentation en eau potable. Une approche multidisciplinaire a permis la compréhension du fonctionnement de ce système. Les résultats obtenus constituent une avancée dans la connaissance des aquifères discontinus et offrent des pistes pour une gestion raisonnée de cette ressource.

Le signal d'entrée est caractérisé dans sa composante quantitative et qualitative. Le suivi des paramètres climatiques permet d'estimer la lame d'eau participant à la recharge de l'aquifère. La caractérisation isotopique de l'eau précipitée met ensuite en évidence une origine majoritairement atlantique des masses d'air, responsables des précipitations sur le nord-ouest du Pays Basque. Des circulations atmosphériques sur la péninsule Ibérique, l'Europe du Nord et la région méditerranéenne sont cependant responsables de certains événements pluvieux. La composition chimique de l'eau de pluie, résultant de ces origines, est caractérisée par une faible acidité et par des concentrations en éléments anthropiques parfois élevées.

L'hydrochimie des eaux souterraines est étudiée conjointement avec des données de temps de séjour acquises par l'interprétation des concentrations en ³H, CFC et SF₆. Les caractéristiques physico-chimiques, les temps de séjours mesurés (moins de 10 ans à plus de 50 ans) et les phénomènes de mélanges associés permettent de proposer un modèle conceptuel des écoulements souterrains. Celui-ci met en exergue le rôle prépondérant du profil d'altération développé dans les milieux cristallins (de la surface vers la profondeur : altérites, roche fissurée et roche saine), du point de vue de la minéralisation de l'eau comme de celui des modalités d'écoulement.

Une approche quantitative est finalement proposée. Du point de vue hydrodynamique, l'hétérogénéité spatiale est importante $(10^{-4} \text{ m s}^{-1} < \text{K} < 10^{-8} \text{ m s}^{-1})$. Les altérites offrent une capacité de stockage et de régulation de la recharge. Un modèle numérique synthétise et valide ces résultats. Les simulations montrent de fortes interactions entre les réseaux d'écoulements superficiel et souterrain et de faibles impacts de l'exploitation actuelle sur les flux d'eau souterraine. Les évolutions climatiques ne modifieront pas significativement les écoulements durant les prochaines décennies. Une diminution des débits des sources et des cours d'eau est toutefois probable. Ce modèle numérique et l'ensemble des résultats obtenus serviront de base pour une gestion raisonnée de la ressource en eau de l'aquifère de l'Ursuya.

Mots clés : Aquifère fracturé, Profil d'altération, Signal d'entrée, Ions majeurs, Isotopes stables, Temps de séjour, Modèle numérique, Pays Basque.

Abstract

Hard-rock aquifers are one of the major challenges for the current hydrogeology. These fractured formations are intensively exploited for drinking water supply becoming an essential resource for many people. The metamorphic massif of Ursuya (France, 64) is one of this strategic aquifer. A multidisciplinary approach has led to understand the functioning of this system. The results help to progress in the knowledge of discontinuous media and they provide supports for a rational management of this resource.

The input signal is characterized by both quantitative and qualitative methods. Monitoring of climate parameters is used to estimate the amount of aquifer recharge. Isotopic characterization of rainwater highlights the principal Atlantic origin of air masses which are responsible of precipitation on the north-western Basque Country. Some rainfall events are also due to atmospheric circulation over the Iberian Peninsula, the Northern Europe and the Mediterranean region. The chemical composition of rainwater, resulting from these origins, is characterized by a low acidity and sometimes by high concentrations of anthropogenic elements.

The hydrochemistry of groundwater is studied in conjunction with residence time data. These are acquired by the interpretation of ³H, CFCs and SF₆ concentrations. The chemical characteristics, the measured residence times (less than 10 years to over than 50 years) and the associated mixing processes allow the achievement of a conceptual model of groundwater flow. It points out the role of the weathering profile (from the surface to the depth : weathered layer, fractured rock and fresh bedrock) from the point of view of the mineralization as well as the flowpaths.

A quantitative approach is finally proposed. Boreholes studies show highly heterogeneous hydrodynamic properties $(10^{-4} \text{ m s}^{-1} < \text{K} < 10^{-8} \text{ m s}^{-1})$. Weathered materials provide a storage capacity and a smoothing of the recharge variations, these results are synthesized and validated by a numerical model. The simulations show strong interactions between the surface flow network and the water table. It also highlights the low impact of the current groundwater exploitation on the aquifer and that climate change will not significantly modify the groundwater flows in the coming decades. Nevertheless, a decrease of the springs and streams flow is probable. This numerical model and all these results constitute the basis for a rational management of water resources from the Ursuya aquifer.

Key words : Hard-rock aquifer, Weathered profile, Input signal, Major ions, Stable isotopes, Residence time, Numerical model, Basque Country.

Table des matières

Résumé	7
Abstract	8
Table des matières	11
Liste des figures	
Liste des tableaux	
Avant propos	
Introduction	
Chapitre I. Cadre général de l'étude et méthodologie employée	
1. Situation geographique	
1.1. Les Pyrénées	
1.2. Le Pays Basque et le massif de l'Ursuya	
2. Cadre geologique et structural	
2.1. Grands traits structuraux de la chaîne pyrénéenne	
2.2. L'originalité du Pays Basque dans le système Pyrénéen	
2.3. Géologie du massif de l'Ursuya	40
2.4. Cadre structural du massif de l'Ursuya	43
3. Caracterisation climatique du pays basque	45
3.1. Les précipitations	
3.2. La température atmosphérique	47
3.2.1. Température moyenne	47
3.2.2. Evolution de la température atmosphérique	48
4. Cadre hydrogeologique	49
4.1. Rappels sur les aquifères en milieux discontinus	49
4.2. Précision de l'analyse structurale à des fins hydrogéologiques	50
4.2.1. Définitions	50
4.2.2. Apports de la photo-imagerie	52
4.2.3. Conclusions sur la cartographie structurale	58
4.3. Profil d'altération type	58

4.4. Ex	tension des formations superficielles sur le massif de l'Ursuya	60
4.4.1.	Cartographie des horizons	60
4.5. Ca	onclusions sur la cartographie des lithologies de surface	64
5. Strate	gie d'etude	65
5.1. Ex	ploitation de l'eau souterraine sur le massif de l'Ursuya	65
5.2. Me	éthodologie mise en œuvre	
5.2.1.	Acquisition de données	
5.2.2.	Méthodes analytiques	75
Chapitre II	. Caractérisation du signal d'entrée	77
1. Quant	tification du signal d'entree	
1.1. Es	timation de la lame d'eau précipitée	
1.2. Es	timation de l'évapotranspiration	
1.2.1.	Définitions et méthodes de calcul	
1.2.2.	Données disponibles	
1.2.3.	Evaluation de l'évapotranspiration et de la pluie efficace	
1.2.4.	Critiques et précisions sur le bilan hydrique	
1.3. Bi	lan hydrologique	95
2. Carac	terisation isotopique et physico-chimique des precipitations	97
2.1. Fo	ormation des précipitations	97
2.2. Ac	quisition de la composition isotopique de l'eau de pluie	
2.2.1.	Fractionnement isotopique	
2.2.2.	Relation $\delta^{18}O - \delta D$ et excès en deutérium	
2.2.3.	Facteurs contrôlant la composition isotopique	
2.3. Ac	quisition de la minéralisation de la pluie	101
2.3.1.	Rainout/washout	101
2.3.2.	Origine des éléments dissous	
2.4. Ca détermin de recha	aractérisation du signal d'entrée des aquifères dans le Pays Basque ation des paramètres contrôlant la composition chimique et isotopiqu rge	Français : ıe des eaux 104
2.4.1.	Contrôle des données	105
2.4.2.	Origine des masses d'air	
2.4.3.	Variations annuelles des compositions isotopiques	112

2.4	4.4.	Origine des éléments chimiques dans les eaux de recharge	112
2.4	4.5.	Origine géographique des éléments	118
2.5.	Bila	n sur la composition isotopique et chimique des précipitations	120
Chapitr	e III	Caractérisation physico-chimique des eaux souterraines	et
détermi	natio	on des temps de séjour	121
1. Ap	pport	s des isotopes stables: precisions sur les modes de recharge	122
1.1.	Une	e recharge actuelle et locale	123
1.2.	Une	e recharge préférentiellement automnale et hivernale	124
1.3.	Gra	dient altitudinal	125
2. Ra	appel	s sur la qualite et le temps de transit des eaux souterraines	126
2.1.	Géo	ochimie des eaux souterraines en milieux fissurés	126
2.2.	Dat	ation des eaux souterraines	127
2.3.	Rap	ppels sur l'utilisation des traceurs atmosphériques	128
2.3	3.1.	Origine du ³ H, des CFCs et du SF ₆	128
2.3	3.2.	Connaissance des concentrations atmosphériques	129
2.3	3.3.	La méthode de datation par le ³ H, les CFCs et le SF ₆	131
2.3	3.4.	Les modèles d'interprétation	135
2.3	3.5.	Paramètres pouvant modifier l'âge apparent	138
3. Do	onnee	es geochimiques et datation des eaux souterraines pour determiner	· les
differe	nts m	ilieux d'ecoulements le long du profil d'alteration d'un aquifere fractu	re 144
 3.1.	Rési	ultats du suivi physico-chimique et des mesures de 2az dissous	145
3.1	1.1.	Variabilité spatiale des paramètres physico-chimiques	145
3.1	1.2.	Variabilité temporelle de la qualité de l'eau souterraine	151
3.1	1.3.	Estimation des températures de recharge et de l'excès d'air	163
3.1	1.4.	Evaluation des temps de résidence	164
3.2.	Dise	cussion autour de la minéralisation et des temps de séjour	167
3.2	2.1.	Acquisition de la minéralisation	167
3.2	2.2.	Relation entre les interactions eau-roches et les âges apparents	175
3.2	2.3.	Mise en évidence des différents chemins d'écoulements	177
3.3.	Mis	e en place d'un modèle d'écoulement conceptuel	181
4. Bi	lan	-	184

Cha	apitre IV	V. Vers une vision quantitative : caractérisation hydrogéologique
et n	nodélisat	tion hydrodynamique
1.	Caract	terisation hydrodynamique
	1.1. Ess	sais de pompages186
	1.1.1.	Résolution des essais de pompages186
	1.1.2.	Résultats
	1.1.3.	Bilan191
	1.2. Dic	agraphies de productivité192
	1.2.1.	Diagraphies réalisées
	1.2.2.	Résultats des diagraphies de productivité
	1.2.3.	Bilan
	1.3. Ch	roniques piézométriques196
	1.3.1.	Forage Ip2
	1.3.2.	Forage Osp9197
	1.3.3.	Forages Pe4 et Pe5 199
	1.3.4.	Bilan
	1.4. And	alyses corrélatoires
	1.4.1.	Principe des analyses corrélatoires simples et croisées
	1.4.2.	Analyses corrélatoires simples
	1.4.3.	Analyses corrélatoires croisées
	1.5. En	résumé
2.	Modeli	isation hydrodynamique
	2.1. Raj	ppels sur la modélisation numérique hydrodynamique en milieu fissuré 206
	2.2. Ela	aboration du modèle numérique de l'aquifère de l'Ursuya
	2.2.1.	Méthodologie utilisée
	2.2.2.	Discrétisation spatiale
	2.2.3.	Conditions aux limites
	2.2.4.	Discrétisation temporelle
	2.2.5.	Points d'observations
	2.2.6.	Prélèvements
	2.2.7.	Alimentation

2.	.3.	Simulation en régime permanent	
	2.3.	1. Processus de calibration et validation	
	2.3.	2. Paramètres hydrodynamiques implémentés	
	2.3.	3. Bilan quantitatif et piézométrie restituée	
2.	.4.	Simulations en régime transitoire	
	2.4.	1. Processus de calibration et interprétation	
	2.4.	2. Incidence des prélèvements sur la piézomètrie	
2.	.5.	Impact des évolutions climatiques sur les écoulements souterrains	
	2.5.	1. Les évolutions climatiques envisagées	
	2.5.	2. Données climatiques utilisées	
	2.5.	3. Simulations prévisionnelles	
	2.5.	4. Bilan	
2.	.6.	En résumé	
V. Co	oncl	usions	
1.	Syn	these des resultats	
1.	.1.	Cartographie	
1.	.2.	Signal d'entrée	
1.	.3.	Hydrochimie	
1.	.4.	Hydrodynamique	
1.	.5.	Modélisation numérique	
1.	.6.	Bilan	
2.	Pre	conisations pour une gestion raisonnee de la ressource	
2.	.1.	Recherche de nouvelles ressources	
2.	.2.	Protection de la qualité de la ressource	
2.	.3.	Gestion quantitative de la ressource	
2.	.4.	Bilan sur les préconisations	
3.	Per	spectives d'etude	
3.	.1.	Géophysique	
3.	.2.	Hydrométrie	
3.	.3.	Signature isotopique	
3.	.4.	Modélisation numérique	
3.	.5.	Bilan	

Références bibliographiques	
Références électroniques	
Table des annexes	287
Table des annexes	

Liste des figures

Figure I-1. Carte géographique de la chaîne des Pyrénées (carte issue de http://www.randonnee-en-pyrenees.com)
Figure I-2. Zones structurales des Pyrénées(adapté de Mattauer et Henry, 1974)
Figure I-3. Carte géographique des Pyrénées Atlantiques et localisation du massif de l'Ursuya (carte issue de http://www.routard.com)
Figure I-4. Carte géographique du massif de l'Ursuya (extrait de la carte IGN 1345 OT) 36
Figure I-5. Schéma structural des Massifs Basques (adapté de Peybernès et al., 2003) 39
Figure I-6. Carte géologique du massif de l'Ursuya (adapté de Boissonnas et al., 1974) 41
Figure I-7. Linéaments répertoriés sur la carte géologique 1/50 000 d'Iholdy n°1027 (Boissonnas <i>et al.</i> , 1974)
Figure I-8. Diagrammes d'orientation des linéaments répertoriés sur la carte géologique 1/50 000 d'Iholdy n°1027 (d'après Boissonnas <i>et al.</i> , 1974)
Figure I-9. Précipitations mensuelles moyennes, minimums et maximums enregistrées à Cambo-les-Bains entre 1964 et 2009
Figure I-10. Températures mensuelles moyennes, minimums et maximums enregistrées à Cambo-les-Bains entre 1964 et 2009
Figure I-11. Evolution de la température atmosphérique moyenne annuelle à Cambo-les-Bains entre 1964 et 2009
Figure I-12. Méthode d'interprétation du MNT53
Figure I-13. MNT (éclairage azimut 315°) et linéaments répertoriés
Figure I-14. Insertion des nouveaux linéaments55
Figure I-15. Diagrammes d'orientations de l'ensemble des linéaments répertoriés
Figure I-16. Densité de linéaments par unité de surface et connectivité des linéaments
Figure I-17. Schéma simplifié des aquifères sur socle cristallin (d'après Wyns et al, 2004 Dewandel <i>et al.</i> , 2006 et Lachassagne <i>et al.</i> , 2011)
Figure I-18. Faciès d'altérites, de zone de transition et d'horizon fissuré
Figure I-19. Localisation des points d'observation d'affleurements (extrait de la carte IGN 1345 OT)
Figure I-20. Cartographie des lithologies observées à la surface du massif de l'Ursuya 63
Figure I-21. Localisation des émergences à la surface du massif de l'Ursuya (extrait de la carte IGN 1345 OT)

Figure I-22. Localisation des points de contrôle (extrait de la carte IGN 1345 OT)
Figure I-23. Coupes lithologiques et techniques des ouvrages investigués
Figure II-1. Comparaison des pluviométries hebdomadaires et mensuelles enregistrées au pluviomètre Mendurria et à la station météorologique Ursuya entre mai 2010 et décembre 2011
Figure II-2. Pluviométrie mensuelle et hebdomadaire enregistrée sur le massif de l'Ursuya entre juillet 2009 et juin 2011
Figure II-3. Températures moyennes journalières, hebdomadaires et mensuelles mesurées sur le massif de l'Ursuya entre juillet 2009 et juin 2012
Figure II-4. Diagramme de fréquence des vents enregistrés sur le massif de l'Ursuya entre juillet 2009 et juin 2012
Figure II-5. ETP mensuelle calculée sur le massif de l'Ursuya entre juillet 2009 et juin 2012
Figure II-6. Diagramme ombrothermique du massif de l'Ursuya (moyennes mensuelles entre juillet 2009 et juin 2012 ; ETR calculée sur la base d'une RFU de 100 mm)
Figure II-7. Devenir des précipitations efficaces (adapté de Chow et al., 1988)
Figure II-8. Principales sources de composés chimiques dans l'atmosphère (d'après Celle, 2000)
Figure II-9. Corrélation entre les concentrations cationiques et anioniques totales
Figure II-10. Relation δ^{18} O - δ^2 D dans les eaux de pluies prélevées entre février 2010 et décembre 2011 (n = 112) et droite de régression correspondante (Droite Météorique Locale) et Droite Météorique Mondiale
Figure II-11. Retro-trajectoires typiques des masses d'airs provenant des quatre secteurs définies
Figure II-12. Relation δ^{18} O - δ^2 D des eaux de pluies prélevées en fonction de l'origine des masses d'air entre février 2010 et décembre 2011 et droite météorique correspondante 111
Figure II-13. Variation temporelle des δD et $\delta^{18}O$ dans les eaux de pluies prélevées entre février 2010 et décembre 2011
Figure II-14. Ratio ($[NO_3^-]$) / ($[NO_3^-]$ + $[nssSO_4^{2^-}]$), acidité d'origine et mesurée, facteur d'acidité (FA), potentiel d'acidification (PA), potentiel de neutralisation (PN), ratio PA/PN et facteurs de neutralisation (FN) des différents cations dans les eaux de pluie entre février 2010 et décembre 2011 (n = 175)
Figure III-1. Relation δ^{18} O vs δ D dans les eaux souterraines et dans les eaux de pluies 124
Figure III-2. Gradient altitudinal du δ^{18} O dans les eaux souterraines du massif de l'Ursuya 125
Figure III-3. Exemples de compositions d'eaux souterraines dans des formations silicatées (Appelo et Postma, 2005)

Figure III-4. Concentrations mensuelles en tritium enregistrées dans l'eau de pluie à Ottawa et Thonon-les-Bains (données GNIP ; IAEA/WMO)
Figure III-5. Concentrations atmosphériques en CFCs et SF ₆ en Amérique du Nord (Plummer al., 2006)
Figure III-6. Schéma des modèles d'écoulement piston et exponentiel (Maloszewski et Zuber, 1996)
Figure III-7. Diagramme de concentrations CFC_x/CFC_y et SF_6/CFC_x et courbes des modèles associés (adapté de Plummer <i>et al.</i> , 2003)
Figure III-8. Evolution de la concentration à l'équilibre dans l'eau du CFC-11, CFC-12 et CFC-113 en fonction de la température de recharge (Ayraud, 2005)
Figure III-9. Conductivité électrique moyenne des eaux de sources et de forages 145
Figure III-10. Diagrammes de Piper basés sur la minéralisation moyenne des eaux de sources et des eaux de forages
Figure III-11. Diagrammes de Stiff des eaux de forages et des eaux de sources149
Figure III-12. Diagrammes de Schöeller Berkaloff basés sur la minéralisation moyenne des eaux de sources et des eaux de forages
Figure III-13. Variations temporelles de la conductivité électrique des eaux de sources et de forages et pluviométrie hebdomadaire
Figure III-14. Variations temporelles du pH des eaux de sources et de forages et pluviométrie hebdomadaire
Figure III-15. Variations temporelles de la température des eaux de sources et de forages et pluviométrie hebdomadaire
Figure III-16. Variations temporelles des concentrations en bicarbonates, chlorures et nitrates des eaux de sources et de forages et pluviométrie hebdomadaire
Figure III-17. Variations temporelles des concentrations en calcium, magnésium et sodium des eaux de sources et de forages et pluviométrie hebdomadaire
Figure III-18. Concentrations en gaz dissous et estimation des températures de recharge et de l'excès d'air des eaux souterraines
Figure III-19. Concentrations en ³ H mesurées dans les eaux souterraines du massif de l'Ursuya et dans les eaux de pluies à Dax
Figure III-20. Histogramme des concentrations en Na^+ , Mg^{2+} , Cl^- et NO_3^- dans les eaux souterraines (et écart types correspondants) mis en parallèle avec les concentrations de la pluie efficace
Figure III-21. Résultats des diagraphies de qualité de l'eau effectuées dans les forages Osp9 et Pe4
Figure III-22. Box plots présentant la conductivité électrique des eaux souterraines en fonction de la lithologie à l'émergence

Figure III-23. Box plots présentant les concentrations moyennes en Cl ⁻ , NO ₃ ⁻ , HCO ₃ ⁻ , Na ⁺ , Mg^{2+} , et Ca ²⁺ des eaux souterraines en fonction de la lithologie à l'émergence
Figure III-24. Conductivité électrique et concentrations moyennes en Mg ²⁺ en fonction de l'âge apparent
Figure III-25. Ages apparents des eaux souterraines émergeants des altérites et de la roche fissurée et captées par les forages
Figure III-26. Modèle conceptuel des écoulements souterrains dans les altérites et les gneiss et paragneiss du massif de l'Ursuya. Des détails sont donnés dans le texte
Figure IV-1. Rabattements observés et simulés
Figure IV-2. Résultats des diagraphies de productivité dans les forages non exploités 193
Figure IV-3. Chroniques piézométriques et pluviométriques enregistrées entre juillet 2009 et juillet 2012
Figure IV-4. Corrélogramme simple des niveaux piézométriques
Figure IV-5. Corrélogramme simple des précipitations
Figure IV-6. Corrélogramme croisé de la pluviométrie et des niveaux piézométriques 204
Figure IV-7. Différentes approches de modélisation des aquifères discontinus (adapté de Cook, 2003)
Figure IV-8. Maillage du modèle numérique211
Figure IV-9. Géométrie du modèle numérique
Figure IV-10. Epaisseurs des couches du modèle
Figure IV-11. Localisation des points d'observation
Figure IV-12. Volumes prélevés dans les cinq forages exploités
Figure IV-13. Zones de recharge
Figure IV-14. Lame d'eau de recharge affectée par zones pour la période de juillet 2009 à juillet 2010
Figure IV-15. Hauteurs piézométriques calculées et observées, droite de régression (y = $1,0016 \text{ x} - 0,0024$; r ² = 0,99) et intervalle de confiance à 95 %
Figure IV-16. Cartes de perméabilités
Figure IV-17. Charges hydrauliques calculées en régime permanent
Figure IV-18. Chroniques piézométriques mesurées et calculées
Figure IV-19. Niveaux observés et simulés dans les cours d'eau Urrutia et Urcuray
Figure IV-20. Niveaux observés et simulés dans les cours d'eau Costaitsia, Etchéandia et Basseboure
Figure IV-21. Niveaux observés et simulés dans les cours d'eau Louhossoa, Lattiaénéa et Heyderrea

Figure IV-22. Différence entre les charges simulées en phase d'exploitation et au repos 243
Figure IV-23. Evolution de la concentration atmosphérique en CO ₂ suivant les différents scénarios envisagés (adapté de IPCC, 2000)
Figure IV-24. Estimations des précipitations et de l'évapotranspiration potentielle annuelles sur le secteur étudié, selon les scénarios de prédiction A2 et B1 entre 2000 et 2050
Figure IV-25. Niveaux piézométriques simulés dans les forages Osp9, Ip2, Pit11, Ar3 et Ar5 entre 2005 et 2050 en fonction des prévisions climatiques établies à partir des scénarios A2 et B1
Figure IV-26. Niveaux piézométriques simulés dans les forages Pe4, Pe5, Osp5 et Pit16 entre 2005 et 2050 en fonction des prévisions climatiques établies à partir des scénarios A2 et B1
Figure IV-27. Flux sortants du modèle simulés entre 2005 et 2050 en fonction des prévisions climatiques établies à partir des scénarios A2 et B1
Figure V-1. Approche pluridisciplinaire pour la caractérisation des aquifères fracturés 258

Liste des tableaux

Tableau I-1. Localisation de la station météorologique utilisée
Tableau I-2. Pluviométrie annuelle et mensuelle enregistrée à Cambo-les-Bains de 1964 à 2009
Tableau I-3. Températures moyennes annuelles et mensuelles enregistrées à Cambo-les-Bainsentre 1964 et 2009
Tableau I-4. Résumé de l'ensemble des points de contrôle 69
Tableau I-5. Caractéristiques des bassins versants contrôlés 72
Tableau I-6. Récapitulatif des points de prélèvements 74
Tableau II-1. Pluviométrie moyenne, minimum et maximum mensuelle et annuelle enregistréesur le massif de l'Ursuya entre juillet 2009 et juin 201280
Tableau II-2. Paramètres météorologiques moyens mesurés entre juillet 2009 et juin 2012 86
Tableau II-3. Moyennes mensuelles et annuelles des ETR et des précipitations efficaces calculées entre juillet 2009 et juin 2012 en considérant une RFU de 100 mm et de 50 mm 91
Tableau II-4. Bilan hydrologique annuel pour les 7 cours d'eau contrôlés 95
Tableau II-5. Nombres d'évènements pluvieux (N), hauteurs de précipitations (H)enregistrées, moyennes pondérées (Moy. pond.) et écarts types des teneurs en isotopes stablesen fonction des trajectoires des masses d'air109
Tableau II-6. Moyennes pondérées et écarts types des ions majeurs des eaux de pluie prélevées en fonction des secteurs d'origine des masses d'air
Tableau II-7. Contribution des sources marines et non marines et facteurs d'enrichissements des ions majeurs des eaux de pluie prélevées vis-à-vis de l'eau de mer
Tableau II-8. Analyse en composante principale appliqué sur les concentrations en ions majeurs de l'ensemble des eaux de pluie prélevées
Tableau III-1. Teneurs moyennes en isotopes stables des eaux souterraines du massif de l'Ursuya
Tableau III-2. Coefficients spécifiques des CFC – 11, CFC – 12 (Warner et Weiss, 1985), CFC – 113 (Bu et Warener, 1995) et SF6 (Bullister <i>et al.</i> , 2002) pour le calcul de K_{H} 134
Tableau III-3. Récapitulatif des principaux paramètres pouvant influencer la datation des eaux souterraines par les CFCs-SF ₆ (adapté de Ayraud, 2005 et Plummer <i>et al.</i> , 2006)
Tableau III-4. Moyennes des paramètres physico-chimiques et des concentrations en ionsmajeurs mesurés dans les eaux de sources et de forages suivis146
Tableau III-5. Concentrations en gaz dissous et en tritium

Tableau III-6. Age apparent, MRT et proportions d'eau récente et ancienne calculées suivantles trois modèles de mélanges appliqués et choix du modèle166
Tableau III-7. Classification des points de prélèvements en fonction des caractéristiquesgéologiques observées et des analyses physico-chimiques effectuées
Tableau III-8. Différences de concentrations en éléments terrigènes entre les eaux issues des altérites et celles issues de la roche fissurée
Tableau IV-1. Caractéristiques des essais de pompages effectués
Tableau IV-2. Résumé des résultats des essais de pompages 190
Tableau IV-3. Mesures de diagraphies de production
Tableau IV-4. Résumé des résultats de diagraphies de productivité
Tableau IV-5. Caractéristiques des chroniques piézométriques 197
Tableau IV-6. Epaisseur des horizons issus des coupes lithologiques des sondages
Tableau IV-7. Revue bibliographique pour une estimation des épaisseurs des différentshorizons du profil d'altération en milieu cristallin
Tableau IV-8. Revue bibliographique pour une estimation des perméabilités des différentshorizons du profil d'altération en milieu cristallin
Tableau IV-9. Bilan entre les écoulements de surface mesurés et simulés
Tableau IV-10. Résultats de calage en régime transitoire et chroniques piézométriques disponibles
Tableau IV-11. Comparaisons des niveaux simulés et observés dans les cours d'eau

Avant propos

Ce projet résulte d'une sollicitation du Conseil Général des Pyrénées-Atlantiques dans le cadre de la mise en place d'un plan de gestion des eaux souterraines du massif cristallin de l'Ursuya. Il a bénéficié du soutien financier du Conseil Général des Pyrénées-Atlantiques *via* une subvention FEDER (Fond Européen de Développement Régional). L'Agence de l'Eau Adour-Garonne et le Conseil Régional d'Aquitaine ont également contribué au financement de cette étude. Enfin, l'ensemble des acteurs de la ressource en eau sur le massif de l'Ursuya (la régie des eaux de Bayonne, la régie des eaux de Hasparren, le SIAEP de Mendionde-Bonloc, le SIAEP de Macaye-Louhossoa et la mairie de Cambo-les-Bains) ont contribué à la réussite de ce projet en permettant l'accès à leurs installations et en proposant des sites d'implantation pour les divers appareillages de mesure.

Les résultats issus de ces recherches ont été disséminés et valorisés par le biais de deux articles publiés ou soumis à des revues internationales et par la présentation des travaux dans six conférences internationales :

Publications :

J. JAUNAT, F. HUNEAU, A. DUPUY, H. CELLE-JEANTON, V. VERGNAUD-AYRAUD, L. AQUILINA, T. LABASQUE, et P. LE COUSTUMER, 2012. Hydrochemical data and groundwater dating to infer differential flowpaths through weathered profiles of a fractured aquifer, Applied Geochemistry, 27, 2053-2067, doi: 10.1016/j.apgeochem.2012.06.009.

J. JAUNAT, H. CELLE-JEANTON, F. HUNEAU, A. DUPUY, et P. LE COUSTUMER, 2012, soumis. Characterization of the input signal to aquifers in the French Basque Country : emphasis on parameters influencing the chemical and isotopic composition of recharge waters, Journal of Hydrology.

Liste de conférences :

J. JAUNAT, F. HUNEAU, A. DUPUY, et H. CELLE-JEANTON, 2010. Etude hydrogéologique du massif cristallin de l'Ursuya (France, Pays-Basque), 23ème Réunion des Sciences de la Terre, Bordeaux, France.

J. JAUNAT, F. HUNEAU, A. DUPUY, H. CELLE-JEANTON, M. FRANCESCHI et P. LE COUSTUMER, 2011. Insight into groundwater flow within a crystalline aquifer. Case study of the Ursuya Mount, Northern Basque Country (France), International Symposium on Isotopes in Hydrology, Marine Ecosystems, and Climate Change Studies, Monaco.

J. JAUNAT, F. HUNEAU, A. DUPUY, P. LE COUSTUMER, et M. FRANCESCHI, 2012. Flow conditions, geochemistry and residence time of groundwater from a gneissic aquifer. Case study of the Ursuya Mount, Northern Basque Country (France). GwFR'2012. International Conference on Groundwater in Fractured Rocks ; Pragues ; République Tchèque.

J. JAUNAT, F. HUNEAU, A. DUPUY, et P. LE COUSTUMER, 2012. Rainwater chemistry and isotopic content in the French Basque Country. EGU General Assembly 2012, Vienne, Austria

J. JAUNAT, A. DUPUY, F. HUNEAU et P. LE COUSTUMER, 2012. Coupling of geochemical and hydrodynamic tools for the numerical modelling of a fractured aquifer. Case study of Ursuya massif (Southwestern France). IAH 2012 Congress, Niagara Falls, Canada

J. JAUNAT, F. HUNEAU, A. DUPUY, H. CELLE-JEANTON, V. VERGNAUD-AYRAUD, L. AQUILINA, T. LABASQUE, et P. LE COUSTUMER, 2012. Hydrochemical data and groundwater dating to infer differential flowpaths through weathered profiles of a fractured aquifer. GDAT 2012, Rennes, France

Introduction

Si la ressource en eau est généralement considérée comme renouvelable, l'accroissement rapide de la population, l'extension des cultures irriguées et le développement industriel influencent fortement la quantité d'eau disponible pour les populations. Face à ces pressions anthropiques toujours croissantes, une gestion quantitative et qualitative rationnelle des ressources en eaux est au cœur des préoccupations actuelles et un enjeu majeur pour les décennies à venir. Cette gestion efficace nécessite une bonne compréhension du fonctionnement des réservoirs sollicités, qu'il s'agisse d'eaux souterraines ou de surface.

Parmi les réservoirs souterrains, le fonctionnement des aquifères de socle constitue une problématique d'intérêt croissant depuis les années 1960. Outre la faible productivité de ce type d'aquifère, leur caractère hétérogène a longtemps été considéré comme rédhibitoire visà-vis de la prédiction de leurs propriétés hydrodynamiques à l'échelle locale comme à l'échelle du bassin versant (Lachassagne et al., 2008). Autrefois considérés comme des substratums imperméables, ces milieux cristallins ont par la suite été exploités en réponse à différents facteurs (Singhal, 2008) : l'absence de ressources alternatives en zone intertropicale notamment, des périodes de sécheresses au début des années 1970 au Sahel et en 1976 dans l'ouest de la France (notamment en Bretagne ; Ayraud, 2005), ou encore le développement de la technique de forage du marteau-fond-de-trou. Ainsi, en réponse à l'augmentation de la demande, à la dégradation de la qualité des eaux de surface et grâce aux progrès techniques, l'exploitation des aquifères fracturés s'est avérée être une bonne alternative (Glynn et Plummer, 2005). Même si de nombreux progrès ont été réalisés quant à la compréhension du fonctionnement des aquifères discontinus, la caractérisation des écoulements souterrains dans ces milieux reste un enjeu primordial pour l'hydrogéologie. Cette connaissance est un prérequis indispensable pour une gestion raisonnée à long terme de la ressource en eau souterraine des milieux de socle.

Parmi les ressources en eau disponibles et exploitées dans le Pays Basque français, le massif cristallin de l'Ursuya est l'une des principales. Le département des Pyrénées-Atlantiques prélève 70 % de son eau potable dans les réservoirs souterrains. Néanmoins, ce secteur géographique fait face à une demande en eau importante en constante augmentation induite par la croissance démographique du territoire. Celle-ci était en effet de 28 % pour le département entre 1968 et 2009, et de 50 % en moyenne pour les communes concernées par la présente étude (www.recensement.insee.fr ; 2012). Même si le territoire dispose d'importants réservoirs d'eau souterraine, leur répartition n'est pas homogène. Le Conseil Général, en partenariat avec l'Agence de l'Eau Adour-Garonne, s'est donc fixé comme objectif de renforcer et de sécuriser la production de cette ressource en mettant en place, en liaison avec les collectivités, une série de politiques, à moyen et long terme, destinées à garantir à tous l'accès à une eau de qualité à un coût abordable (www.cg64.fr, 2012).

L'aquifère fissuré de l'Ursuya, fournit l'eau potable de plus de 50 000 habitants avec une production moyenne de 5000 m³ j⁻¹ *via* 101 sources et 5 forages exploités par quatre collectivités. Dans ce contexte de multiplicité d'exploitants, sur une ressource unique encore bien préservée, il est indispensable de connaître précisément les potentialités de la nappe et ses évolutions saisonnières. Il semble également primordial de préciser la qualité de l'eau, ses modes d'acquisition et les impacts anthropiques qu'elle subit. Seule une connaissance détaillée du comportement de la ressource, face aux divers prélèvements et pressions, permettra une gestion rationnelle de cet aquifère vital pour de nombreuses communes de l'ouest des Pyrénées-Atlantiques.

Le cadre de cette étude est donc double. L'approche multidisciplinaire proposée permettra tout d'abord de développer la compréhension du fonctionnement des aquifères de socle en général. Ensuite, l'ensemble des résultats acquis dans cet objectif de recherche constituera une base capitale pour la gestion de l'aquifère de l'Ursuya, qui souffre aujourd'hui d'un manque de connaissances sur les caractéristiques des écoulements souterrains en présence.

Les objectifs précis de cette étude sont donc les suivants : préciser les potentialités aquifères du site d'un point de vue qualitatif et quantitatif et en déterminer les variations spatiales et saisonnières ; comprendre l'origine et les modes de circulation de l'eau souterraine ; proposer un outil de gestion évolutif permettant une exploitation rationnelle de la ressource.

La démarche adoptée pour atteindre ces objectifs est retracée dans les quatre parties constitutives de ce mémoire.

Le premier chapitre permet dans un premier temps de replacer le site d'étude dans son contexte géographique. Les implications géologiques de la position du massif de l'Ursuya aux pieds des Pyrénées sont ensuite détaillées, les formations métamorphiques constituant l'aquifère étant fortement liées à la mise en place de cette chaîne de montagne. La caractérisation climatique du Pays Basque français est subséquemment abordée. Le cadre hydrogéologique est également défini dans ce premier chapitre. Après de brefs rappels sur les aquifères développés en milieux discontinus, des résultats acquis au cours de cette étude sont d'ores et déjà présentés. L'analyse structurale effectuée et la cartographie du profil d'altération en surface sont en effet des pré-requis aux méthodologies utilisées par la suite. La stratégie d'étude, les techniques d'investigations et les méthodes analytiques mise en œuvre sont finalement décrites.

Le second chapitre traite du signal d'entrée de l'aquifère, du point de vue quantitatif tout d'abord, puis qualitatif ensuite. Dans un premier temps, la lame d'eau précipitée au cours de l'étude, ainsi que l'ensemble des paramètres climatiques enregistrés sont détaillés et utilisés pour déterminer les précipitations efficaces. Celles-ci sont ensuite combinées avec des données limnimétriques pour établir un bilan hydrologique annuel. Celui-ci met en évidence certains aspects du fonctionnement hydrogéologique de l'aquifère qui seront précisés par la suite.

Dans un second temps, les caractéristiques isotopiques et physico-chimiques de l'eau précipitée sont détaillées. Les pré-requis concernant la formation de l'eau de pluie et les facteurs contrôlant sa composition isotopique et physico-chimique sont rappelés. Les résultats présentés ont fait l'objet d'une publication soumise à la revue « Journal of Hydrology ». Ils permettent de déterminer la provenance des masses d'air à l'origine des précipitations sur le Pays Basque Français ainsi que l'origine des éléments chimiques qui les composent. Cette définition de la composition de l'eau de pluie sur le site d'étude sera utilisée dans le chapitre suivant afin de mieux cerner les modes de circulation de l'eau dans le sous-sol.

Le troisième chapitre s'intéresse à la composition isotopique et physico-chimique de l'eau souterraine ainsi qu'à son temps de séjour. Des précisions sur le mode de recharge de l'aquifère sont tout d'abord apportées par la comparaison du signal isotopique des eaux précipitées avec celui des eaux souterraines. La géochimie des eaux souterraines en milieux fissurés et l'utilisation des traceurs atmosphériques pour la détermination des temps de séjour sont ensuite détaillées. Les résultats mettent en exergue une forte variabilité spatiale et une faible variabilité temporelle des paramètres physico-chimiques. La détermination de l'âge apparent des eaux souterraines et des modes d'acquisition de la minéralisation permettent de comprendre les raisons de cette hétérogénéité géographique. Ces résultats illustrent finalement les différents milieux d'écoulement souterrains et permettent la mise en place d'un schéma conceptuel heuristique du fonctionnement de l'aquifère. Ce chapitre a fait l'objet d'une publication parue dans la revue « Applied Geochemistry ».

Le quatrième chapitre propose une vision quantitative de l'aquifère. Les résultats des investigations au sein des forages et l'interprétation des variations piézométriques naturelles permettent de préciser les propriétés hydrodynamiques et les potentialités aquifères des horizons captés. Ces données sont dans un second temps utilisées pour la réalisation d'un modèle numérique hydrodynamique en trois dimensions de l'aquifère. L'élaboration du modèle numérique est détaillée pas à pas afin de justifier le choix des différents paramètres implémentés. Les résultats des simulations en régimes permanents et transitoires sont utilisés afin de valider la cohérence du modèle, de préciser les modalités d'écoulements au sein de l'aquifère et d'estimer l'influence des prélèvements actuels sur la nappe exploitée. Ce modèle est enfin utilisé à des fins prévisionnelles, *via* des simulations sur la période 2000-2050, s'appuyant sur des prévisions de pluviométrie et d'évapotranspiration. Le modèle ainsi réalisé servira de base à une gestion optimale de l'aquifère de l'Ursuya. Il se veut évolutif et pourra être alimenté par toute nouvelle connaissance utile acquise sur le massif de l'Ursuya.

En conclusion, nous retrouvons le cadre double de cette étude. Des propositions d'aide à la gestion de l'aquifère sont apportées. L'ensemble des résultats acquis permet en effet aux gestionnaires de cibler leurs efforts. En accompagnement de ces préconisations, les résultats principaux sont synthétisés et des pistes pour la poursuite de ce projet et/ou pour sa transposition sur un système analogue sont proposées.

Chapitre I. Cadre général de l'étude et méthodologie employée

Cette première partie est consacrée à la présentation du cadre de l'étude. Après avoir décrit la situation géographique régionale, nous préciserons les grands traits de la géologie (stratigraphique et structurale) des Pyrénées, des Massifs Basques et du massif de l'Ursuya. Cette description s'appuiera à la fois sur la littérature existante mais également sur des données acquises au cours de cette étude. Le contexte climatique sera ensuite abordé avant de présenter le contexte hydrogéologique, des aquifères fracturés d'une part, du massif de l'Ursuya d'autre part. Enfin, nous présenterons les différentes méthodologies mises en œuvre au cours de l'étude. Les points de mesures des divers paramètres seront localisés et nous présenterons les différentes méthodes analytiques utilisées.

1. SITUATION GEOGRAPHIQUE

1.1. Les Pyrénées

La chaîne des Pyrénées représente une véritable barrière géographique, séparant la Péninsule Ibérique au sud du reste de l'Europe continentale au nord, constituant ainsi une frontière naturelle entre l'Espagne et la France (Figure I-1). Elle est limitée par le Bassin Aquitain au nord et par celui de l'Ebre versant espagnol. Elle est à cheval sur trois régions et six départements français, d'est en ouest : le Languedoc-Roussillon (Pyrénées-Orientales et Aude), Midi-Pyrénées (Ariège, Haute-Garonne et Hautes-Pyrénées), et l'Aquitaine (Pyrénées-Atlantiques). Côté espagnol, elle traverse quatre communautés autonomes et sept provinces, d'est en ouest : la Catalogne (Gérone, Barcelone et Lérida), l'Aragon (Huesca et Saragosse), la Navarre (communauté composée d'une seule province du même nom) et le Pays Basque espagnol (Guipuscoa).

La chaîne des Pyrénées s'étend sur une longueur de 450 km suivant une direction est-ouest, de la mer Méditerranée (Cap de Creus) au golfe de Gascogne (Cabo Higuer). Les reliefs les plus importants se situent au voisinage de la frontière franco-espagnole. Culminant à 3404 mètres d'altitude au pic d'Aneto, au cœur de la chaîne, les Pyrénéens gardent de l'altitude en direction de l'est et du Puigmal (2913 m) et du Canigou (2785 m) avant de s'abaisser brusquement dans les Albères (1256 m au pic du Neulos) pour plonger dans la mer Méditerranée au Cabo Creus. Leur abaissement topographique vers l'ouest est un peu plus graduel, les massifs du pic du Midi d'Ossau (2885 m), du pic d'Anie (2504 m) et de la Rhune (900 m) ménagent une transition plus douce en direction de la Côte Basque (Canérot, 2008).

Du nord vers le sud, les Pyrénées présentent trois unités morphostructurales (Figure I-2) :

- La zone nord pyrénéenne septentrionale (zone 2 sur la Figure I-2), caractérisée par une progression régulière dans les reliefs. Des basses collines au nord, on passe à une zone de collines moyennes à hautes, pour finir par des moyennes montagnes pouvant atteindre plus de 2000 m de haut (Pic de Moulle de Jaut, 2050 m). Cette zone, essentiellement sédimentaire, est marquée par de nettes variations altitudinales d'est en ouest. Le socle paléozoïque traverse la couverture à plusieurs endroits avec les massifs satellites nord-Pyrénéens. C'est notamment le cas du massif de l'Ursuya, objet de cette étude.
- Plus au sud, on trouve la Haute Chaîne Primaire ou zone axiale (zone 3 sur la Figure I-2), constituée d'un matériel hercynien. C'est une zone de hautes montagnes où l'on retrouve les plus hauts sommets (le Vignemale à 3298 m, le Mont Perdu à 3355 m ou encore le Pic d'Aneto à 3404 m).
- La zone sud pyrénéenne méridionale (zone 4 sur la Figure I-2), présente une morphologie très différente, avec deux espaces distincts séparés par une dépression bien marquée, le synclinal de l'Aragon. Au nord de cette vaste gouttière, la sierra intérieure est une zone de moyenne à haute montagne avec des altitudes pouvant atteindre 2900 m.



Figure I-1. Carte géographique de la chaîne des Pyrénées (carte issue de http://www.randonnee-en-pyrenees.com)



Figure I-2. Zones structurales des Pyrénées (zones 1 à 5 décrites dans le texte ; adapté de Mattauer et Henry, 1974)

L'avant-pays est caractérisé par des reliefs relativement doux, dont l'altitude moyenne ne dépasse pas 400 m. Au nord de la chaîne, cette zone correspond à la partie méridionale du Bassin Aquitain (zone 1 sur la Figure I-2) et au sud à la partie septentrionale du bassin de l'Ebre (zone 5 sur la Figure I-2). Comme nous le verrons dans le paragraphe 2.1, ces différentes unités se distinguent également du point de vue structural.

Le cadre de l'étude se situe au nord-ouest de la chaîne des Pyrénées, dans le département des Pyrénées-Atlantiques (64). Il fait partie de l'ensemble des massifs Basques qui seront décrits dans le paragraphe 2.2 et est situé dans la zone nord pyrénéenne. Les Figures I-1 et I-2 permettent de le localiser.

1.2. Le Pays Basque et le massif de l'Ursuya

Le département des Pyrénées-Atlantiques est divisé en deux provinces socioculturelles bien distinctes, le Pays Basque français et le Béarn. Le Pays Basque français est lui-même divisé historiquement en trois provinces. Il s'agit d'est en ouest de la Soule, de la Basse-Navarre et du Labourd. Le domaine étudié appartient au Labourd, province la plus occidentale du Pays Basque français (Figure I-3).

La région du Labourd comprend deux ensembles morphologiques distincts (Razin, 1989) :

- Une zone de piémont au nord, recouvrant les « collines du flysch » et le littoral. Elle apparaît comme une vaste étendue faiblement vallonnée, dont le point le plus haut est la colline Sainte-Barbe (150 m) ;
- Une zone montagneuse au sud, correspondant aux « montagnes de la Nivelle », dont la plus élevée et la plus caractéristique est la montagne de la Rhune (900 m).



Figure I-3. Carte géographique des Pyrénées Atlantiques et localisation du massif de l'Ursuya (carte issue de http://www.routard.com)

Le massif de l'Ursuya, objet de cette étude, correspond au premier relief important de ce dernier ensemble depuis le nord, marquant topographiquement le début de la chaîne pyrénéenne. D'une superficie avoisinant 45 km², il culmine à 670 m au Mont Ursuya (Figure I-4). Il s'étend selon une forme elliptique sur une dizaine de kilomètres d'est en ouest et sur cinq kilomètres du nord vers le sud entre les communes de Hasparren (au nord), Cambo-les-Bains (au nord-ouest), Itxassou (à l'ouest), Louhossoa (au sud-ouest), Macaye (au sud), Mendionde (au sud-est) et Bonloc (à l'est).


Figure I-4. Carte géographique du massif de l'Ursuya (le trait noir représente les limites de la zone d'étude ; extrait de la carte IGN 1345 OT)

2. CADRE GEOLOGIQUE ET STRUCTURAL

2.1. Grands traits structuraux de la chaîne pyrénéenne

La chaîne pyrénéenne est orientée N110°E et est compartimentée en trois grands ensembles géologiques. La Haute Chaîne compose le cœur des Pyrénées, elle est entourée des zones Nord et Sud-Pyrénéenne elles-mêmes entourées des Bassins Aquitain au nord et de l'Ebre au sud (Figure I-2) :

- Le bassin de l'Ebre s'est développé grâce à un important remplissage sur le flanc sudouest des Pyrénées durant l'Oligo-Miocène, alors que le Bassin Aquitain est une succession de terrains autochtones d'âges Mésozoïque et Cénozoïque, présentant des pendages faibles et monoclinaux vers le nord.
- La Zone Sud-Pyrénéenne (zone 4 sur la Figure I-2) est composée de formations sédimentaires d'âges crétacé et tertiaire, glissées de la Zone Axiale et décollées vers le sud. Cette unité Sud-Pyrénéenne s'est déplacée vers le sud, et chevauche l'avant-pays molassique de l'Ebre dans la région des Sierras Marginales (Razin, 1989).
- La Haute Chaîne, ou Zone Axiale (zone 3 sur la Figure I-2), constituée essentiellement de terrains d'âge paléozoïque, constitue l'axe orographique de la chaîne. Elle est limitée au nord par la Faille Nord-Pyrénéenne et au sud par la Faille Sud-Pyrénéenne. Elle constitue la ligne de suture des plaques tectoniques européenne et ibérique. Les hauts sommets sont taillés dans les roches d'âges Dévonien à Carbonifère, matériaux principalement métamorphiques et granitiques. Les terrains du Primaire sont recouverts par des calcaires de plate-forme du Crétacé supérieur, où l'on trouve des intrusions d'origine magmatique.
- La Zone Nord-Pyrénéenne (zone 2 sur la Figure I-2) chevauche l'avant-pays aquitain le long du Chevauchement Frontal Nord-Pyrénéen. Au sud, la Faille Nord-Pyrénéenne sépare la plaque européenne de la plaque ibérique. Elle est composée par « le pays des flyschs » au nord caractérisé par des reliefs doux et au sud par des chaînons calcaires et dolomitiques plus élevés en altitude entrecoupés de creux constitués de formations marneuses.

2.2. L'originalité du Pays Basque dans le système Pyrénéen

Les Pyrénées basques occupent une position particulière, à la jonction entre le domaine océanique du golfe de Gascogne qui s'enfonce par subduction sous la marge nord-espagnole, et la chaîne intracontinentale émergée des Pyrénées. Elles correspondent à la zone de contact entre les marges continentales sud-européenne et nord-ibérique (Razin, 1989).

La continuité vers l'ouest des structures pyrénéennes classiques est toujours débattue à l'heure actuelle. Il s'opère en effet en Pays-Basque une désorganisation structurale importante liée principalement à l'existence d'une discontinuité crustale NNE-SSW transverse à la chaîne : la faille de Pamplona (Muller et Roger, 1977) ou « transformante de Pamplona » (Ducasse et al., 1986), aussi appelée, selon les auteurs « ligne des diapirs navarrais » ou « ligne Elisondo-Estella » (Feuillee et Rat, 1971), ou encore « transversale basque » ou « basco-landaise » (Schoeffler, 1982; Richard, 1986). Cette discontinuité apparue durant l'orogenèse hercynienne, a joué un rôle paléogéographique et tectonique majeur depuis le Jurassique terminal jusqu'à l'Oligo-Miocène, fin de la tectogenèse pyrénéenne (Rat, 1988 ; Razin, 1989 ; Turner, 1996, Larrasoña et al., 2003). Elle s'est comportée comme une faille d'extension au cours du Mésozoïque avant d'être impliquée dans la compression tertiaire, responsable du soulèvement de la chaîne pyrénéenne (Larrasoña et al., 2003). Son implication dans la mise en place des Massifs Basques au cours de la compression tertiaire n'est pas encore parfaitement définie et est toujours largement débattue (Muller et Roger, 1977 ; Engeser et Schwentke, 1986; Rat, 1988; Razin, 1989; Turner, 1996; Larrasoña et al., 2003). Toutefois, cet accident profond coïncide en surface avec l'affleurement des massifs paléozoïques basques ou Massifs Basques qui occupent une position satellite décalée vers le nord par rapport à la zone primaire axiale et son prolongement occidental.

Les Massifs Basques correspondent à une mosaïque de blocs paléozoïques et triasiques imbriqués, recouverts localement de formations néocrétacées de faciès variés (plate-forme, pente, bassin profond). Ces blocs sont séparés par des contacts tectoniques et/ou des bandes de terrain mésozoïques très déformées (Razin, 1989). Les principaux éléments individualisés par Muller et Roger (1977), sont les massifs de Mendibelza-Igounce, des Aldudes, des Cinco Villas-La Rhune, d'Iparla-Artzamendi, du Baygoura-Jara et de l'Ursuya (Figure I-5). Ces trois derniers massifs sont rassemblés dans la littérature sous le nom de Massifs du Labourd.

Une unité tectonique originale, dénommée par Lamare, en 1936, « la nappe des marbres » (Figure I-5), s'intercale entre les massifs hercyniens des Cinco Villas-La Rhune au nord, et des Aldudes au sud (Peybernès *et al.*, 2003). Pour Mathey *et al.* (1999), l'important métamorphisme de la zone des marbres traduirait la présence d'une discontinuité crustale profonde dit « accident de Calamo » assimilée à la séparation des plaques ibérique et européenne. Certains auteurs admettent ainsi une continuité en profondeur (Muller et Roger, 1977) ou en surface (Souquet et al, 1977) entre la faille Nord-Pyrénéenne et l'accident de la nappe des marbres. Cependant, la diminution de l'intensité tectono-magmatique et la disparition progressive du métamorphisme vers l'ouest pose la question de la continuité de cet accident profond (Razin, 1989).



Figure I-5. Schéma structural des Massifs Basques (adapté de Peybernès *et al.*, 2003)

Cette structuration s'est donc développée dans un contexte compressif, lors de la collision des plaques européenne et ibérique. D'après Razin (1989), la déformation de ce domaine nord-occidental des Pyrénées résulte du charriage vers le nord des unités nord-pyrénéennes sur la marge aquitaine. Cet édifice tectonique se caractérise par l'existence d'un chevauchement nord-pyrénéen basal, faiblement incliné vers le sud, qui recoupe le socle paléozoïque sous la zone des Massifs Basques. La faille de Pamplona dont le tracé semble coïncider avec l'axe du Labourd (NNE-SSW), aurait joué un rôle majeur dans la déformation de cette partie des Pyrénées. Elle correspond en fait à un système de failles qui, lors de la tectogénèse tertiaire, guida l'avancée plus rapide des blocs Paléozoïques du massif du Labourd (dont fait partie celui de l'Ursuya) par rapport à celui des Cinco-Villas.

Le massif de l'Ursuya étant l'objet de la présente étude, nous nous intéresserons exclusivement à celui-ci dans la suite de ce document.

2.3. Géologie du massif de l'Ursuya

Le massif de l'Ursuya est principalement composé de matériaux métamorphiques précambriens (Figure I-6) dont les formations sont décrites en détail, ci-après. Les limites de la zone étudiée correspondent globalement à la définition géographique du massif. Du point de vue géologique, les limites sud-est diffèrent quelque peu :

- On trouve au nord des marnes et calcaires du Jurassique et du Crétacé.
- A l'est, la limite du massif coïncide avec le passage des gneiss métamorphiques de l'Ursuya avec les micaschistes et les brèches métamorphiques constitutives du Pic de Garralada récemment décrits par Jammes *et al.* (2009).
- Au sud-est, la topographie est particulièrement marquée par un accident important d'axe SW-NE joignant Louhossoa à Mendionde, en passant par Macaye. D'un point de vue géologique, le secteur au sud de cette barrière est considéré comme appartenant au massif de l'Ursuya. Cependant, le secteur d'étude nous intéressant n'étant développé qu'au nord de cette limite, cette vallée topographique a été utilisée comme limite à la zone d'étude. D'autre part, les matériaux rencontrés au-delà de cette barrière diffèrent quelque peu de ceux affleurant sur le massif de l'Ursuya proprement dit *via* une tectonique d'écaillage (Boissonnas *et al.*, 1974).
- Au sud-ouest, l'accident de Louhossoa est décrit dans la littérature comme limite entre les massifs de l'Ursuya et celui du Baïgura.
- Enfin, la rivière de la Nive et ses alluvions sus-jacentes à des marnes et flysch crétacé nous ont permis d'établir la limite ouest du secteur d'étude.

Le massif *stricto sensu* est constitué principalement de gneiss et paragneiss alumineux présentant un degré de métamorphisme très fort, largement décrit par Boissonnas *et al.* (1974). Les affleurements sont rares et surtout très altérés, sauf sur le sommet et dans les profondes entailles d'érosion. Deux ensembles de formation bien distincts ont cependant été identifiés (Figure I-6) :

- Des gneiss basiques (a1ζ sur la Figure I-6), aussi appelés gneiss kinzigitiques car on peut les rapprocher des kinzigites décrites dans d'autres massifs anciens des Pyrénées (Boissonnas *et al.*, 1974). Ils représentent les terrains les plus métamorphiques observés dans ce secteur. Ces gneiss sont à plagioclase calcique, clino et/ou orthopyroxène, avec ou sans biotite rouge. Les compositions évoquent d'anciens gabbros ou norites. Les gneiss kinzigitiques du Mont Ursuya sont caractérisés par l'abondance de grenats centimétriques et souvent aussi par celle de la sillimanite. Certaines de ces roches s'avèrent extrêmement riches en quartz et à peu près dépourvues de feldspaths. Ces gneiss kinzigitiques reposent visiblement sur les paragneiss a2ζ.
- Les paragneiss à biotite, indifférenciés (a2ζ sur la Figure I-6), constituent un ensemble assez monotone et puissant (Boissonnas *et al.*, 1974). Le gneiss type est à quartz, oligoclase, biotite et sillimanite, souvent aussi à grenat. On rencontre également la cordiérite, l'orthose et parfois la muscovite secondaire.



Figure I-6. Carte géologique du massif de l'Ursuya (adapté de Boissonnas *et al.*, 1974 ; légende structurale disponible sur la Figure I-7)

Ces deux formations principales s'accompagnent en outre de matériaux Cambro-Ordoviciens et de roches éruptives développées sur le secteur objet de la présente étude (Figure I-6) :

- Ainsi, à l'ouest de la zone d'étude on trouve quelques affleurements de formation • détritique (K-0a sur la Figure I-6) datée de la base du Cambro-Ordovicien. Très diversifiées lithologiquement, elles se présentent avec des couleurs d'altération bien contrastées, dont l'association est souvent caractéristique. Les roches les plus représentées sont des gneiss arkosiques. On trouve également des gneiss à épidote, des amphiboles, des micaschistes et des gneiss à silicates calciques. Ce Paléozoïque de base était, avant le métamorphisme, un ensemble de pélites et de grès plus ou moins arkosiens, avec des intercalations de marnes et de calcaires (Boissonnas et al., 1974). Des intercalations remarquables sont à noter. En particulier, on constate la présence de cipolins (C sur la Figure I-6) accompagnant parfois cette formation détritique. Ces cipolins représentent les termes les plus purs de la sédimentation carbonatée calcique. Ces calcaires métamorphiques s'intercalent en lentilles dans la série et sont largement cristallisés. Ils ont été exploités dans les Massifs Basques jusqu'à quasi-épuisement pour une utilisation dans les fours à chaux. Cependant, même si des affleurements remarquables sont visibles dans ce secteur géographique, il n'en est rien sur le massif de l'Ursuya. Boissonas et al. (1974) n'en font mention sur la feuille d'Iholdy qu'à l'extrémité sud-ouest de la zone qui nous intéresse. Nous verrons pourtant que la présence de cipolins en profondeur peut-être avérée au cœur du massif et que cela a des conséquences importantes sur les écoulements souterrains et plus particulièrement sur la géochimie des eaux (Chapitre 3).
- Des roches éruptives apparaissent également au sein de ce massif cristallin. On trouve ainsi, à l'est du massif de l'Ursuya des diorites quartzites à biotite et grenat (η sur la Figure I-6). Cette roche, qui paraît être associée au complexe inférieur des gneiss basiques, est massive et homogène et formée de quartz, de plagioclase calcique et de biotite. Enfin, les pegmatites (**P** sur la Figure I-6) représentent un aspect très connu de la géologie locale. Certaines lentilles étaient en effet exploitées sur le massif du Baïgoura. Ces pegmatites, observables en particulier au sud-ouest du secteur étudié, sont potassiques et riches en biotite.

L'ensemble de ces matériaux, et particulièrement les gneiss et les paragneiss constituant majoritairement le massif de l'Ursuya, sont le lieu de circulations d'eaux souterraines importantes, elles-mêmes soumises à une forte exploitation pour l'alimentation en eau potable. Nous verrons que, dans ce type de milieux, les écoulements en question sont largement contrôlés par la présence de discontinuités (failles, fractures, fissures, linéaments), mais également par la mise en place de matériaux issus de l'altération des roches décrites cidessus. Les données initiales concernant ces deux aspects ainsi que les précisions apportées au cours de ces travaux sont présentées dans les paragraphes qui suivent.

2.4. Cadre structural du massif de l'Ursuya

Même si la complexité structurale de la zone d'étude ne permet pas de reconstituer avec rigueur la chronologie des déformations, il semble évident que la structuration du massif peut-être attribuée essentiellement à la tectonique hercynienne et au métamorphisme général qui l'accompagne (Boissonnas *et al.*, 1974). Cependant, une évolution post-hercynienne et anté-pyrénéenne a bien été démontrée, en particulier grâce à l'accident de Louhossoa qui parait postérieur aux grands chevauchements hercyniens. Les phases tectoniques pyrénéennes sont quant à elles marquées par l'avancée du massif cristallin de l'Ursuya, à la faveur de la faille de Pamplona (Boissonnas *et al.*, 1974).

L'ensemble de ces phénomènes résulte en une densité de linéaments particulièrement importante et en une forte fracturation des matériaux en présence. La Figure I-7 permet d'observer une tendance globale majoritairement NO-SE dans l'orientation des accidents structuraux du massif de l'Ursuya.



Figure I-7. Linéaments répertoriés sur la carte géologique 1/50 000 d'Iholdy n°1027 (Boissonnas et al., 1974)

Cette orientation préférentielle est confirmée par les diagrammes d'orientation (Figure I-8) réalisés d'après les données fournies par la carte géologique d'Iholdy (Boissonas *et al.*, 1974). Les linéaments montrent en effet une orientation préférentielle comprise entre N 100° et N 120°. Si l'on ne considère que les failles normales avérées, cette orientation préférentielle (N 120°) est encore plus nette. On constate également l'existence d'un pôle perpendiculaire orienté N 20° à N 30°. Ces résultats sont parfaitement concordants avec les contextes géologiques et structuraux au sein desquels le massif de l'Ursuya s'est développé. En effet, à une échelle globale, ces caractéristiques structurales sont proches de celles de la chaîne des Pyrénées, elle-même présentant une orientation globale N 120° (entre autres Mattauer et Henry, 1974 ; Canérot, 2008). Nous verrons dans le paragraphe 4.2 qu'à une échelle plus fine, ces observations peuvent être différentes.



Figure I-8. Diagrammes d'orientation des linéaments répertoriés sur la carte géologique 1/50 000 d'Iholdy n°1027 (d'après Boissonnas *et al.*, 1974)

3. CARACTERISATION CLIMATIQUE DU PAYS BASQUE

Les données de température et de pluviométrie utilisées dans ce chapitre sont issues des bases de données de Météo France. Les coordonnées géographiques de la station météorologique dont proviennent ces données sont présentées dans le Tableau I-1. Cette station, située à Cambo-les-Bains est la plus proche de la zone d'étude et les chroniques enregistrées entre 1964 et 2009 permettent de dresser un bilan du contexte climatique du secteur. L'objectif de ce paragraphe étant de préciser le contexte climatique de l'étude de façon globale, nous ne présenterons pas ici les données mesurées au cours de l'étude directement sur le massif de l'Ursuya. Ces dernières seront précisément décrites dans le chapitre 2.

Nom de la station	Indicatif Météo France	Coordonnées (Lambert II ; km) X Y		Altitude (m NGF)	Distance au Mont Ursuya (km)
Cambo-les-Bains	64160001	298,2	1825,0	69	4,5

Tableau I-1. Localisation de la station météorologique utilisée

3.1. Les précipitations

Les données de pluviométrie sont essentielles à la compréhension du fonctionnement des aquifères. La pluie représente en effet le signal d'entrée des systèmes hydrologiques. Les chroniques de pluviométrie à notre disposition sur la station de Cambo-les-Bains présentent quelques périodes au cours desquelles les précipitations n'ont pas été enregistrées : du 01/02/1964 au 01/03/1964, du 01/04/1983 au 01/12/1983 et du 01/07/1994 au 30/06/1996. Les années 1964, 1983 et 1994 à 1996 ne sont donc pas prises en compte dans les calculs ayant servi à déterminer les données présentées ci-après.

D'après le bilan pluviométrique présenté dans le Tableau I-2, il pleut en moyenne plus de 1600 mm par an sur la région du massif de l'Ursuya. Cette valeur élevée s'explique à la fois par la proximité de l'Océan Atlantique qui amène de nombreuses perturbations mais aussi par les reliefs pyrénéens qui jouent le rôle de barrière climatique. Au cours des 4 décennies mesurées, l'année 1989 a été la plus sèche avec une pluviométrie de 1195 mm et l'année la plus humide à été observée en 1974 avec près de 2000 mm de précipitations.

Le climat dans cette région du Sud-ouest se caractérise par une pluviométrie importante tout au long de l'année, avec des hauteurs de précipitations moyennes de l'ordre de 100 mm pour les mois les plus secs (juillet et août ; Tableau I-2 et Figure I-9). Le printemps est très pluvieux, particulièrement le mois de mai avec une pluviométrie moyenne de 162 mm. Enfin, l'hiver est logiquement la période la plus humide de l'année. Le maximum est atteint au mois de décembre avec une précipitation moyenne de 191 mm à Cambo-les-Bains entre 1964 et 2009.

	Pluviométrie	Pluviométrie m	ninimum	Pluviométrie maximum	
	moyenne (mm)	Hauteur (mm)	Année	Hauteur (mm)	Année
Annuelle	1626	1195	<u>1989</u>	1994	<u>1974</u>
Janvier	155	27	<u>1990</u>	353	<u>1978</u>
Février	145	6	<u>1993</u>	356	<u>1986</u>
Mars	140	31	<u>2008</u>	296	<u>1978</u>
Avril	130	6	<u>1982</u>	289	<u>2008</u>
Mai	162	56	<u>2003</u>	337	<u>1990</u>
Juin	115	7	<u>1976</u>	346	<u>1977</u>
Juillet	99	16	<u>1975</u>	242	<u>1992</u>
Août	94	14	<u>1986</u>	178	<u>1965</u>
Septembre	119	1	<u>1977</u>	311	<u>1965</u>
Octobre	144	1	<u>1969</u>	446	<u>1976</u>
Novembre	161	38	<u>1988</u>	391	<u>1992</u>
Décembre	191	45	<u>2007</u>	378	<u>2005</u>

Tableau I-2. Pluviométrie annuelle et mensuelle enregistrée à Cambo-les-Bains de 1964 à 2009



Figure I-9. Précipitations mensuelles moyennes, minimums et maximums enregistrées à Cambo-les-Bains entre 1964 et 2009

3.2. La température atmosphérique

3.2.1. Température moyenne

Concernant la température, les chroniques enregistrées à la station de Cambo-les-Bains sont complètes de 1964 à 2009. Les données présentées ici prennent donc en compte l'ensemble de ces années. Les températures moyennes sont calculées à partir des données journalières, elles mêmes correspondant à la demi somme des deux températures extrêmes journalières : (Tmin+Tmax)/2.

	Température	Température m	uinimum	Température maximum	
	moyenne (° C)	(°C)	Année	(°C)	Année
Annuelle	14,1	13,3	<u>1972</u>	15,6	<u>2008</u>
Janvier	8,6	4,7	<u>1991</u>	13,1	<u>2001</u>
Février	8,6	3,9	<u>1985</u>	13,9	<u>1966</u>
Mars	9,5	5,4	<u>2005</u>	14,4	<u>1981</u>
Avril	11,4	7,9	<u>1984</u>	17,5	<u>2001</u>
Mai	13,6	8,8	<u>1986</u>	21,2	<u>1973</u>
Juin	16,8	12,2	<u>1984</u>	22,8	<u>1976</u>
Juillet	19,4	16,5	<u>1992</u>	24,0	<u>1971</u>
Août	20,5	18,6	<u>1977</u>	25,3	<u>2006</u>
Septembre	20,1	15,9	<u>1972</u>	21,4	<u>2003</u>
Octobre	17,3	10,9	<u>1974</u>	19,6	<u>1987</u>
Novembre	13,7	8,3	<u>1971</u>	14,3	2006
Décembre	9,9	5,4	<u>1975</u>	12,6	<u>2006</u>

 Tableau I-3. Températures moyennes annuelles et mensuelles enregistrées à Cambo-les-Bains entre 1964 et 2009

Entre 1964 et 2009, la température atmosphérique annuelle moyenne enregistrée à Camboles-Bains est de 14,1 °C (Tableau I-3) avec un maximum atteint en 2008 (15,6 °C) et un minimum en 1972 (13,3 °C). Le mois d'août est le plus chaud avec une moyenne de 20,5 °C et janvier et février sont les plus froids avec des moyennes de 8,6 °C (Tableau I-3 et Figure I-10). On constate que les températures atmosphériques moyennes mensuelles du secteur étudié descendent rarement en dessous de 5 °C (janvier 1991 et février 1985 ; Tableau I-3) et ne dépassent les 25°C qu'en août 2006. Comme pour les précipitations, la proximité de l'Océan Atlantique est responsable de ces températures tempérées. Le climat du Pays Basque occidental est donc clairement océanique.



Figure I-10. Températures mensuelles moyennes, minimums et maximums enregistrées à Cambo-les-Bains entre 1964 et 2009

3.2.2. Evolution de la température atmosphérique

Dans le contexte de changement climatique annoncé, et compte tenu des données à notre disposition, il a été possible d'évaluer l'évolution de la température atmosphérique dans le secteur étudié. Ces modifications climatiques ont des conséquences directes sur la gestion des ressources en eaux souterraines (Waggoner, 1990 ; Alley, 2001 ; Hrkal *et al.*, 2009). En effet, le réchauffement progressif enregistré au cours des deux dernières décennies a eu un effet marqué sur la reconstitution des stocks aquifères par les précipitations atmosphériques. Bien que les précipitations moyennes ne diminuent pas de manière significative, le taux plus élevé d'évaporation (du fait de l'augmentation de la température) provoque une diminution conséquente de la recharge des eaux souterraines (Rey, 2007). En Europe, l'augmentation annuelle de l'évaporation depuis le milieu des années 1980 est estimée à 5 mm an⁻¹ (Hrkal *et al.*, 2009).

Les données présentées sur la Figure I-11 montrent l'évolution de la température atmosphérique annuelle depuis les 4 dernières décennies à Cambo-les-Bains. La droite de régression calculée sur les températures moyennes annuelles montre une augmentation de la température atmosphérique de l'ordre de 0,032 °C par an soit 1,5 °C en 50 ans. Ce résultat est parfaitement concordant avec ceux présentés par Rey en 2007 dans le Béarn (+ 0,032 °C par an soit 1,6 °C sur 50 ans).



Figure I-11. Evolution de la température atmosphérique moyenne annuelle à Cambo-les-Bains entre 1964 et 2009

4. CADRE HYDROGEOLOGIQUE

4.1. Rappels sur les aquifères en milieux discontinus

Les milieux fracturés correspondent à des systèmes développés au sein de roches cristallines, métamorphiques ou schisteuses très peu perméables (de Marsilly, 2004). Ils sont regroupés sous le terme « hard rock » en anglais, terme qui inclue, à la différence du français, les milieux calcaires karstiques. Les ressources en eau souterraine dans les milieux de socle sont généralement faibles en terme de débit disponible (moins de quelques centaines de L h^{-1} à quelques dizaine de m³ h⁻¹) comparé aux milieux poreux (Courtois *et al.*, 2010 ; Dewandel *et* al., 2011; Lachassagne et al., 2011). C'est pourquoi, jusque dans les années 1960, ces milieux étaient peu exploités pour l'alimentation en eau potable, hormis dans des habitats dispersés via des sources de débordement. Les régions de socles représentent pourtant 1/3 de la superficie de la France (Massif Central, Vendée, Bretagne, Vosges, Ardennes, Maures, Estérel, Corse, Haute Chaîne des Pyrénées), la majeure partie du bouclier africain et 20 % des terres émergées à travers le monde (Krasny et Hrkal, 2003 ; Maréchal et al, 2003 ; de Marsilly, 2004; Singhal, 2008). Les aquifères fracturés sont bien adaptés pour l'approvisionnement en eau potable de populations dispersées et de villes de taille faible à moyenne. Ces ressources ont largement contribué au développement économique et au bienêtre de populations exposées à des climats arides ou semi-arides où les ressources en eau de surface sont limitées. En Inde par exemple, les ressources en eau issues d'aquifères fissurés sont pour partie responsables de la révolution verte qui a permis l'autosuffisance alimentaire du pays (Swaminathan, 2007; Mukherji, 2008). Pourtant, les travaux menés sur ces milieux n'ont pas toujours un objectif de développement de la ressource.

Aujourd'hui, les aquifères de socle sont étudiés dans sept buts principaux (Berkowitz, 2002 ; Singhal, 2008) :

- l'approvisionnement en eau pour l'alimentation et l'irrigation ;
- la connaissance des migrations de polluants au sein des fractures ;
- l'exploitation du gradient thermique naturel et de ses anomalies pour l'utilisation en géothermie ;
- la recherche de réservoirs de gaz et de pétrole ;
- le stockage de déchets nucléaires ;
- la construction de cavités souterraines pour le stockage d'eau, d'huile, de gaz et le passage de tunnels ;
- des problèmes d'ordre géotechniques comme la stabilité de versant montagneux ou les infiltrations au sein de barrages ou de tunnels.

Si l'on s'affranchi des matériaux d'altération développés à la surface des roches dures (aspect qui sera développé paragraphe 4.3), les circulations d'eau souterraine dans les aquifères fissurés sont liées à la présence de discontinuités au sein du milieu. Ces discontinuités (failles, fractures, fissures, schistosité) sont distribuées sur une large échelle de longueurs, s'étalant typiquement du micron au kilomètre. Elles constituent ce que l'on appelle la porosité secondaire, en opposition à la porosité primaire (porosité de matrice) prédominante dans les aquifères poreux, mais très faible pour les aquifères fissurés (Larsson, 1987). En milieu de socle, les écoulements souterrains se font principalement par le biais de fractures et fissures, grâce au contraste de perméabilité généralement très élevé existant entre les blocs de la roche saine et le réseau de fracturation (Berkowitz, 2002). De nombreux travaux sur le terrain et en laboratoire ont démontré l'existence des chemins de circulations préférentiels au sein de fractures et fissures ou encore des réseaux que forment ces discontinuités (Neretnieks *et al.*, 1982 ; Magowe et carr, 1999 ; Berkowitz, 2002). La compréhension des écoulements souterrains dans ce type de milieu passe donc par une première approche qui consiste à caractériser ces discontinuités de la façon la plus précise possible.

4.2. Précision de l'analyse structurale à des fins hydrogéologiques

4.2.1. Définitions

Les différents types de discontinuités que nous allons étudier ici sont souvent regroupés sous le terme de linéament. Selon Hobbs (1904) un linéament correspond à une ligne significative du paysage, ayant un tracé rectiligne ou curviligne, causée par des joints ou des failles, et qui relève de l'architecture du substratum géologique. Pour Scanvic (1993), il s'agit d'un accident linéaire marqué dans la topographie, celui-ci pouvant révéler l'alternance de roches de duretés différentes ou bien la présence de failles ou fractures. Foucault et Raoult (2009) définissent le terme de linéament comme un alignement structural long de plusieurs kilomètres correspondant à un accident de l'écorce terrestre.

La définition a évolué selon les applications (Yao, 2009). Ainsi, Moore et Holliday (1975) donnent une définition s'appuyant sur la reconnaissance des linéaments les plus actifs d'un point de vue hydrogéologique : ceux qui participent au réseau de drainage superficiel, les plus nets (contrastés ou marqués par un relief), longs et continus.

Le réseau de discontinuités est donc un des pilliers du comportement des circulations souterraines dans les milieux fissurés. Les éléments essentiels à caractériser pour chaque discontinuité sont les suivants (Cruchet, 1983 ; Gourgand, 1983 ; Singhal et Gupta, 1999 ; Berkowitz, 2002 ; Cook, 2003) :

- orientation dans l'espace (direction, pendage);
- continuité ;
- ouverture ;
- présence ou non de remplissage ;
- propriété des parois rocheuses (forme, rugosité).

L'estimation aussi précise que possible de ces paramètres est un bon moyen d'approcher les caractéristiques des systèmes aquifères. Malheureusement, certaines de ces caractéristiques sont difficilement accessibles. Ainsi, l'ouverture, le remplissage et les propriétés des parois rocheuses nécessitent un accès direct aux linéaments. Ces données ne pourront donc pas être abordées ici.

Outre la caractérisation des linéaments un à un, la définition du réseau qu'ils forment est essentielle. La distribution des linéaments est un aspect fondamental pour permettre la circulation de fluides au sein de l'aquifère (Berkowitz, 2002). La définition du réseau de linéaments est un outil largement utilisé pour localiser des zones potentiellement productives en eaux souterraines puisqu'une relation directe est souvent établie entre la productivité d'un forage et sa distance à un linéament et plus particulièrement sa distance à l'intersection de plusieurs linéaments (Siddiqui et Parizek, 1971 ; Mabee *et al.*, 1994 ; Edet *et al.*, 1998 ; Magowe et Carr, 1999 ; Chandra *et al.*, 2006 ; Sander, 2007 ; Yao, 2009). Le réseau de linéament sera donc principalement défini par sa densité et sa connectivité.

Afin d'apporter plus de précision à l'analyse structurale présentée au paragraphe 2.4, nous nous sommes appuyés sur l'analyse stéréoscopique des photographies aériennes (photographies IGN noir et blanc 1/30 000 de la campagne de 2000) et plus particulièrement sur un MNT (Modèle Numérique de Terrain) particulièrement précis (pas de 5 m) produit par Intermap technologies grâce à l'utilisation de la méthode ISFAR (Interferometric Synthetic Aperture Radar). Ce MNT présente la particularité d'exclure les bâtiments, la végétation et l'ensemble des éléments pouvant modifier la vision de la topographie naturelle. Ainsi, l'image représentée correspond exclusivement à la topographie réelle du terrain.

4.2.2. Apports de la photo-imagerie

4.2.2.1. <u>Cartographie du réseau de discontinuité</u>

Les linéaments peuvent être cartographiés à partir de photographies aériennes ou de plus en plus à partir d'images issues de la télédétection (Magowe et Carr, 1999 ; Taylor et Howard, 2000 ; Castaing *et al.*, 2002 ; Cook, 2003 ; Yao, 2009 ; Koita, 2010). Nous avons vu dans le paragraphe précédent qu'un linéament est souvent marqué par une dépression topographique. Un alignement de végétation ou des lignes de couleurs claires ou sombres sur le sol sont autant d'indices de la présence de linéaments. Le massif de l'Ursuya étant largement recouvert par la végétation, nous nous sommes principalement appuyés sur les marqueurs topographiques pour cartographier le réseau de linéaments. Le MNT à notre disposition associé à un logiciel de type SIG (Système d'Information Géographique) a été un outil particulièrement performant. La Figure I-12 présente la méthode que nous avons utilisée pour établir cette cartographie.

Afin d'observer avec précision le marquage des discontinuités dans la topographie, nous avons modifié l'axe de la source de luminosité par tranche de 90°. Grâce à ce procédé, les incisions dans le terrain ont pu être observées et systématiquement relevées pour alimenter une base de données. En fonction de la direction de l'éclairage, certains éléments apparaissant comme peu crédibles n'ont pas été cartographiés. De même, les photographies aériennes nous ont permis de valider ou non certaines observations. Le résultat de cette cartographie est présenté sur la Figure I-13.

La cartographie des linéaments par traitement d'images satellitaires peut cependant être source de biais et d'erreurs (Brunner *et al.*, 2007 ; Sander, 2007). Nous admettons que ce relevé est une simplification de la réalité influencée par l'opérateur. Cependant, nous avons fait le choix du levé visuel et manuel plutôt que de recourir à une procédure automatique (Deb *et al.*, 2008) dans laquelle le discernement serait exclu. Dans un premiers temps, la cartographie a été établie sans tenir compte des données préalablement disponibles sur la carte géologique afin d'exclure toute influence dans l'interprétation des images étudiées. La Figure I-14 (en haut) présente l'ensemble des linéaments répertoriés par photo-interprétation. Par comparaison avec celles répertoriées sur la carte géologique (Figure I-6), nous n'avons conservé que les discontinuités nouvellement répertoriées (Figure I-14 ; en bas).

Finalement, parmi 193 linéaments répertoriés par photo interprétation, la moitié était déjà listée sur la carte géologique. Nous avons donc établi l'existence d'un réseau de linéaments deux fois supérieur en terme de nombre de discontinuités. En terme de longueur cumulée, la carte géologique faisait état de 116,2 km de discontinuités au total. Après ajout des linéaments relevés par l'analyse du MNT et des photographies aériennes, nous avons établi une longueur cumulée de linéament de 183,1 km soit une augmentation de 57,6 %.



Figure I-12. Méthode d'interprétation du MNT



Figure I-13. MNT (éclairage azimut 315°) et linéaments répertoriés





4.2.2.2. <u>Orientation des linéaments</u>

En terme d'orientations, les deux pôles preferentiels observés sur la carte géologique (Figure I-8) sont également marqués lorque l'on considère l'ensemble des linéaments répertoriés, mais ils sont beaucoup moins bien différenciés. En règle générale, dans un milieu donné, les réseaux de failles consistent en deux ou trois familles de directions, en fonction du contexte tectonique. Au contraire, les réseaux de linéaments divers peuvent se répartir selon de nombreuses familles d'orientations (Berkowitz, 2002), ce qui explique les nombreuses orientations préferentielles observées sur la Figure I-15 (principalement N 20°, N 60° à N 70°, N 90° à N 120°). Les systèmes de linéaments sont souvent denses et bien connectés du fait des nombreuses familles d'orientations, au contraire des sytèmes de failles présentant des orientations préferentielles bien marquées et par conséquent une connectivité amoindrie (Berkowitzk, 2002).



Figure I-15. Diagrammes d'orientations de l'ensemble des linéaments répertoriés

4.2.2.3. <u>Densité et connectivité des linéaments</u>

Comme nous l'avons vu en introduction de ce paragraphe, l'orientation n'est pas le seul élément caractérisant un réseau de linéaments. La connaissance de sa densité et de sa connectivité est également primordiale. En 1999 Singhal et Gupta proposent une méthode simple pour décrire et représenter la densité des linéaments. Cette technique consiste à compter la longueur totale de linéaments par unité de surface. De la même façon, la connectivité est représentée en comptant le nombre d'intersections entre deux linéaments par unité de surface. La Figure I-16 (en haut) représente la densité de linéaments par unité de surface sur le massif de l'Ursuya. On constate distinctement que la précision apportée à la cartographie des linéaments entraîne une densité plus importante sur de nombreux secteurs. De la même façon, la carte de connectivité (Figure I-16 ; en bas) représente le nombre d'intersections de linéaments par mailles de 100 m². Ces cartes permettent de mettre en évidence une densité de linéaments globalement moyenne à forte. En revanche, leur connectivité semble limitée, mis à part dans certains secteurs isolés.



Figure I-16. Densité de linéaments par unité de surface (en haut) et connectivité des linéaments (en bas ; mailles de 100 m²)

4.2.3. Conclusions sur la cartographie structurale

Selon l'idée de la forte probabilité de présence d'eau souterraine là où la densité de linéaments est grande, ces cartes peuvent indiquer des zones supposées favorables à l'exploitation de l'eau souterraine (Cook, 2003; Chandra et al., 2006; Yao, 2009). Cependant, cette hypothèse doit être nuancée. En effet toutes les fractures présentes dans les formations géologiques ne sont pas actives. En moyenne, 20 % des fractures participent à l'écoulement global d'un réseau fracturé (Castaing et al., 2002). Les études sur la productivité des puits en milieux cristallin font souvent le constat que malgré un grand nombre de discontinuités interceptées par un ouvrage, seulement une ou deux sont conductrices (Berkowitz, 2002). De ce fait, même si un secteur apparaît comme fortement fracturé, il ne sera pas forcément très productif. Comme nous l'avons précisé en introduction de ce paragraphe, certains paramètres n'ont pas pu être caractérisés au cours de cette étude, en particulier l'ouverture et le remplissage des discontinuités. Ces deux éléments conditionnant la capacité d'un linéament à contenir et/ou à conduire de l'eau, les cartes présentées ci-dessus ne peuvent être utilisées qu'à titre d'illustrations et en aucun cas à des fins d'exploitation. D'autre part, sur le terrain, quelques dizaines de mètres peuvent faire la différence entre forage productif et forage sec (Sander, 2007).

Seul le milieu fracturé a été pris en compte jusqu'ici. Hors, il existe un horizon sus-jacent à ce niveau fissuré qui, lorsqu'il est saturé peut constituer un réservoir aquifère important. Il va être question de ce niveau altéritique dans les paragraphes qui suivent.

4.3. Profil d'altération type

La présence de fissures, fractures et failles conduit à une hétérogénéité importante du milieu. L'évolution géologique conduit néanmoins à distinguer, de la surface vers la profondeur, un profil d'altération type des milieux de socle. Des résultats récents (Chilton et Smith-Carington, 1984 ; Chilton et Foster, 1995 ; Wyns *et al.*, 2004 ; Dewandel , 2006 ; Courtois *et al.*, 2010 ; Lachassagne *et al.*, 2011) ont mis en évidence l'existence de ce profil d'altération type. Il s'agit de trois horizons ayant chacun leurs propriétés propres (Figure I-17). De la surface vers la profondeur on trouve :

Des altérites ou arènes, argileuses ou argilo-sableuses, développées en surface sur plusieurs mètres à plusieurs dizaines de mètres d'épaisseur lorsque le profil est complet. Ces matériaux sont issus de la décomposition prolongée de la roche mère (Courtois *et al.*, 2010). Très meubles car bien altérées, elles peuvent atteindre une porosité efficace importante (5 % à 30 % d'après White *et al.*, 2001 ; Wyns *et al.*, 2004 ; Dewandel *et al.*, 2006 ; Yao, 2009 ; Courtois *et al.*, 2010) en fonction de la lithologie de la roche mère. En revanche, leur conductivité hydraulique est généralement faible (10⁻⁶ m s⁻¹ à 10⁻⁵ m s⁻¹ d'après Acworth, 1987 ; Houston et Lewis, 1988 ; Dewandel *et al.*, 2006). Par conséquent, quand elles sont saturées en eau, les altérites constituent un compartiment peu perméable mais capacitif. Cet horizon d'altération joue donc un rôle principal de stockage des ressources en eau (Durand, 2005 ; Dewandel *et al.*, 2006).

- Entre la roche saine imperméable et les altérites de surface, on observe un horizon intermédiaire appelé horizon fissuré. L'origine des fissures est souvent attribuée à la décompression (Davis et Turk, 1964; Acworth, 1987). De nouveaux résultats démontrent que cet horizon constitue en fait la première étape d'altération de la roche saine (Lachassagne et al., 2001; Wyns et al., 2004; Dewandel et al., 2006; Lachassagne et al., 2011), au cours de laquelle certains minéraux, particulièrement la biotite (Tieh et al., 1980; Dewandel et al., 2006), sont transformés au contact de l'eau en chlorite puis en argiles gonflantes. L'augmentation du volume qui résulte de cette altération produit des contraintes à l'intérieur de la roche, ce qui provoque une fissuration subhorizontale dans le cas d'une roche homogène. Plus l'altération progresse, plus l'espacement entre les fissures se rétrécit (progression de bas en haut sur le profil), jusqu'à atteindre un écart de la taille des minéraux, où la roche commence alors à s'aréniser (Durand, 2005). Ce processus engendre une densité de fissures de plus en plus faible de la surface vers la profondeur (Houston et Lewis, 1988; Howard et al., 1992; Marechal et al., 2003; Marechal et al., 2004; Wyns et al., 2004; Courtois et al., 2010). Cet horizon présente une conductivité hydraulique plus élevée que les altérites et forme la partie transmissive de l'aquifère (Dewandel et al., 2006). Quand la couche d'altérites est totalement ou partiellement érodée ou insaturée, cet horizon fissuré, qui peut atteindre une puissance de plusieurs dizaines de mètres, assume également la fonction capacitive de l'aquifère composite (Wyns et al., 2004). C'est cet horizon qui est majoritairement capté par les forages en milieux cristallins.
- L'horizon le plus profond correspond à la roche saine, non altérée. Cette couche peut être localement perméable quand des fractures tectoniques sont présentes. Les propriétés hydrauliques de ces fractures ont été largement étudiées dans de nombreux travaux (Pickens, 1987 ; Walker *et al.*, 2001). Même si ces fractures tectoniques peuvent présenter une perméabilité comparable à celle de l'horizon sus-jacent, dans la majorité des contextes leur densité en profondeur est très faible. Dans le cadre de la caractérisation de ressources en eau exploitables, du fait des difficultés techniques pour atteindre ces fractures, cet horizon peut-être considéré comme imperméable (Marechal *et al.*, 2004).



Figure I-17. Schéma simplifié des aquifères sur socle cristallin (d'après Wyns et al, 2004 ; Dewandel *et al.*, 2006 et Lachassagne *et al.*, 2011)

Ces compartiments forment ensemble un aquifère composite au sein duquel les propriétés aquifères seront les meilleures dans les secteurs où les trois compartiments sont présents pour combiner leurs propriétés : capacitive pour les altérites et transmissive pour la zone fissurée et les fractures tectoniques (Lachassagne *et al.*, 2001).

Les trois compartiments décrits ci-dessus sont présents à la surface du massif de l'Ursuya. La cartographie de l'extension de ces différents horizons en surface nous permettra de comprendre et de préciser les modes d'écoulement potentiels au sein de l'aquifère étudié.

4.4. Extension des formations superficielles sur le massif de l'Ursuya

4.4.1. Cartographie des horizons

Les altérites se caractérisent sur le terrain par une grande friabilité. Elles constituent les formes d'érosion les plus planes dans le paysage. L'horizon fissuré, intermédiaire entre les altérites et la roche saine, se présente sous la forme d'un faciès de roche dure au sein duquel de nombreuses fissures sont visibles. La zone de contact (appelée zone de transition par la suite) entre ces deux horizons peut atteindre plusieurs mètres d'épaisseur. Elle se reconnait sur le terrain par un aspect feuilleté et une friabilité intermédiaire entre la zone fissurée et les altérites (Figure I-18). Enfin, la roche mère se reconnait, quand elle est visible, par une quasiabsence de discontinuités.



Figure I-18. Faciès d'altérites, de zone de transition et d'horizon fissuré (coordonnées en m, Lambert II)

Afin de déterminer l'extension de ces différents horizons à la surface du massif de l'Ursuya, d'importantes campagnes de terrain ont été réalisées. Cette cartographie s'est faite en plusieurs étapes. La première a consisté en un relevé des lithologies observables à l'affleurement. 425 points d'observations ont ainsi été relevés, leur répartition sur l'ensemble du secteur étant la plus homogène possible et fonction de l'accessibilité et de la présence ou non d'affleurements exploitables (Figure I-19). La prise en compte d'indices supplémentaires nous à ensuite permis de déterminer les lithologies de certains secteurs difficiles à cartographier. Ainsi, les formes d'érosion relativement planes correspondent en général à la présence d'altérites, et les ruptures de pentes à la zone de transition. Enfin, les coupes techniques de forages disponibles sur le secteur nous ont aidées à confirmer ou à préciser nos observations sur quelques secteurs.

Le résultat de cette cartographie est présenté Figure I-20. L'horizon fissuré est largement représenté dans les parties les plus hautes du massif (à partir de 350 m NGF), ainsi que dans les vallées les plus incisées. Dans la vallée de La Joyeuse (ouest du massif), l'érosion est telle que la roche mère se retrouve par endroit à l'affleurement. Les altérites se répartissent ensuite entre 100 et 350 m NGF et la zone de transition est logiquement répartie entre les altérites et l'horizon fissuré.



Figure I-19. Localisation des points d'observation d'affleurements (extrait de la carte IGN 1345 OT)



Figure I-20. Cartographie des lithologies observées à la surface du massif de l'Ursuya (extrait de la carte IGN 1345 OT)

4.5. Conclusions sur la cartographie des lithologies de surface

Il convient ici de préciser les limites de cette étude cartographique. En effet, compte tenu de la répartition des points d'observations (Figure I-19) les limites de lithologie peuvent parfois être incertaines. C'est par exemple le cas du secteur en amont de La Nive (extrémité ouest du massif), au sein duquel la végétation est très dense et les affleurements rares. Cependant, la prise en compte de la topographie et des données de forage nous conforte dans l'idée que la représentativité de cette carte est réaliste.

En revanche, le paramètre épaisseur est particulièrement difficile à appréhender sur le massif de l'Ursuya. En effet, la zone de contact entre les altérites et la zone de transition ou entre la zone de transition et l'horizon fissuré est très rarement observable et les différents horizons jamais visibles dans toute leur puissance. D'autre part, l'hétérogénéité de ces épaisseurs ajoute une difficulté supplémentaire. Les données de forages nous indiquent en effet des épaisseurs d'altérites variant de 4 m à 41 m avec une moyenne de 14 m et un écart-type de 9 m (valeurs basées sur les données issues de 41 sondages réalisés entre 1994 et 2000).

Nous verrons dans les chapitres suivants que cette cartographie apporte une information primordiale pour la compréhension du fonctionnement de l'aquifère du massif de l'Ursuya. En effet, la présence ou l'absence de matériaux d'altération va en partie contraindre les modes d'écoulement ainsi que les paramètres physico-chimiques de l'eau souterraine.

5. STRATEGIE D'ETUDE

5.1. Exploitation de l'eau souterraine sur le massif de l'Ursuya

Les eaux souterraines du massif de l'Ursuya font l'objet de prélèvements importants pour l'alimentation en eau potable. Deux collectivités et deux Syndicats Intercommunaux d'Alimentation en Eau Potable (SIAEP) captent les eaux de 101 sources et de 5 forages :

- Hasparren : 19 sources, 3 forages, 1 prise d'eau de surface ;
- Bayonne : 79 sources et 2 forages ;
- SIAEP de Macaye-Louhossoa : 2 sources ;
- SIAEP de Mendionde-Bonloc : 1 source.

Au total, un maximum de 9000 m^3 jour⁻¹ peut être extrait du système, pour une moyenne voisine de 5000 m^3 jour⁻¹. En plus de ces 101 sources captées, 89 autres émergences ont été répertoriées. La répartition géographique de ces sources est présentée sur la Figure I-21.

Entre 1994 et 2003, 43 forages ont été réalisés afin de répondre à l'augmentation de la demande en eau potable due à une croissance démographique importante dans ce secteur du Pays Basque. Parmi ces ouvrages, 34 ne présentaient pas un débit d'exploitation suffisant et ont été rebouchés. Actuellement, seulement 9 forages sont toujours présents sur le massif, dont 5 sont exploités. 4 ont été conservés comme point d'eau de secours. Les forages toujours existants sont localisés sur la Figure I-22. Malheureusement, peu d'investigations hydrodynamiques ont été réalisées. Les perméabilités mesurées varient entre 2×10^{-7} m s⁻¹ et 1×10^{-1} m s⁻¹, les coefficients d'emmagasinement varient entre 9×10^{-5} et 1×10^{-2} et les transmissivités entre 1×10^{-5} m s⁻² et 4×10^{-3} m s⁻² (Armand et Dusseau, 1997; Armand et Triscos, 1997; Armand et Triscos, 1999; Fiquet *et al.*, 2000; Chevalier-Lemire et Armand, 2006a; Chevalier-Lemire et Armand, 2006b). Ces valeurs et l'hétérogénéité qui s'en dégage sont caractéristiques des milieux fissurés (Taylor et Howard, 2000; Maréchal *et al.*, 2004; Dewandel *et al.*, 2005).

De nouveaux essais de pompages ont été effectués au cours de cette étude au sein des forages non exploités ainsi que des investigations diagraphiques (digraphies de flux, vidéo et diagraphies physico-chimiques de l'eau). Les résultats seront présentés au sein des chapitres 3 et 4.



Figure I-21. Localisation des émergences à la surface du massif de l'Ursuya (extrait de la carte IGN 1345 OT)



Mt Ursuya

Sci

Station hydrométrique

: Source suivie

: Forage non exploité

: Forage exploité

ossoa

-ouhossoa

Ŧ

Figure I-22. Localisation des points de contrôle (extrait de la carte IGN 1345 OT)

Cambo

-Bai es-l e4

txassou

5.2. Méthodologie mise en œuvre

5.2.1. Acquisition de données

L'ensemble des appareils de mesure installé sur le massif de l'Ursuya est répertorié dans le Tableau I-4 et la Figure I-22.

5.2.1.1. <u>Contrôle des niveaux piézométriques et des volumes prélevés</u>

Au sein des 4 forages non exploités (Tableau I-4, et Figures I-22 et I-23), des sondes Diver (Schlumberger Water Services) enregistrent la pression de l'eau au dessus du capteur au pas de temps horaire. Associés à des capteurs de pression atmosphérique, ces enregistreurs nous permettent de facilement calculer le niveau piézométrique dans le puits par compensation barométrique. Il s'agit des forages Pe4, Pe5, Osp9 et Ip2bis. Ce dernier sera dénommé Ip2 par la suite. Les niveaux maximum et minimum journaliers sont automatiquement enregistrés dans les forages exploités par Hasparren (OSP5, Pit11 et Pit16). Les volumes captés sont également enregistrés de façon journalière. Pour les ouvrages exploités par Bayonne (Ar3 et Ar5), les niveaux et les volumes captés sont mesurés une fois par semaine. Les volumes individuellement captés au sein de chaque source ne sont pas connus. En effet, les captages datant du début du 20^{eme} siècle, leur configuration ne permet pas de connaître les débits. D'autre part, dans de nombreux captages, une partie de l'eau retourne dans le milieu naturel *via* le trop plein de l'ouvrage et ne rejoint donc pas le réseau d'eau potable. De ce fait, seuls les volumes totaux captés sont mesurés en bas de vallée.

5.2.1.2. Investigations ponctuelles du milieu souterrain

La présence de forages non exploités sur le site d'étude nous a permis de mener des investigations supplémentaires, afin d'acquérir des informations sur les milieux et les modes d'écoulements au sein de l'aquifère. Des diagraphies et des essais de pompages ont donc été effectués au sein de ces ouvrages.

La technique de reconnaissance de forages dénommée diagraphie est apparue en 1927. Elle définit l'ensemble des enregistrements en continu de paramètres physique et/ou chimiques en fonction de la profondeur (Ellis et Singer, 2007). Ces paramètres, étroitement reliés à la géologie, constituent une aide précieuse à la description lithologique des formations traversées par le forage mais également à l'observation des différents milieux d'écoulements influençant la physico-chimie de l'eau souterraine. Au cours de cette étude, deux types de diagraphies ont été employés afin de préciser les caractéristiques des écoulements souterrains. Il s'agit des diagraphies qualité de l'eau et des diagraphies de production. Les diagraphies de l'eau (température, pH, conductivité) sur toute la hauteur de la colonne d'eau. Les diagraphies de production concernent la mesure du flux et/ou du débit au sein de la colonne captante d'un ouvrage d'exploitation. La mesure de la vitesse de circulation de l'eau permet, en l'absence de sollicitations, d'apprécier les échanges au sein du forage et de localiser les niveaux productifs. A pompage constant, la diagraphie de débit permet d'apprécier l'importance de ces niveaux et de quantifier leur contribution à l'alimentation de l'ouvrage (Pouchan, 1963).

	Nom	Commune	Coordonnées mmune (Lambert II, km)		Z	Equipement	Paramètre mesuré	Périodicité/pas de temps de mesure	
			X	Y	(m NGF)				
69	Urrutia	Hasparran	301,6	1825,9	140		Hauteur d'eau, débit		
	Urcuray	Hasparren	300,3	1825,4	81	_			
	Basseboure	e Cambo	298,6	1824,8	57	 Stations hydrométriques 			
	<i>Heyderrea</i> Cambo	Califoo	298,1	1824,0	39			Horaire	
	Lattiaénea	Itxassou	298,3	1820,6	78				
	Louhossoa	Louhosson	300,4	1820,0	106				
	Etchéandia	Lounossoa	300,9	1819,8	105				
	Costaitsia	Macaye	301,8	1820,2	132				
	Mendurria	Mendionde	306,1	1824,3	264		Pluviométrie	Journalier	
	Ursuya	Hasparren	302,0	1823,3	570	Station météorologique	Ensemble des paramètres climatiques, ions majeurs et isotopes stables des eaux précipitées	Paramètres climatiques : 10 minutes Prélèvements : 2 jours	
	Ar3	Ugenerron	301,6	1824,3	252		Volume exploité, niveau piézométrique	Habdomadaira	
	Ar5	Hasparren	301,6	1824,1	273	Forages exploités		Hebdoilladalle	
	Pit11		302,6	1824,0	288			Journaliers	
	Pit16	Hasparren	302,4	1824,1	309				
	Osp5		303,9	1824,6	180				
	Pe4		299,2	1822,5	219	Forages non			
	Pe5	Cambo	299,3	1822,4	226			Horaires	
	Ip2bis		299,4	1824,1	157	exploités	Niveaux piézométriques		
	Osp9	Hasparren	303,6	1824,4	195	L			

Tableau I-4. Résumé de l'ensemble des points de contrôle



Chapitre I. Cadre général de l'étude et méthodologie employée

Figure I-23. Coupes lithologiques et techniques des ouvrages investigués

Au cours du mois de juillet 2010, des diagraphies qualité de l'eau ont donc été réalisées au sein des forages Pe4, Pe5, Ip2 et Osp9 (Figures I-22 et I-23). Afin de nous affranchir des phénomènes de stagnation de l'eau au sein de l'ouvrage, la colonne d'eau a été renouvelée trois fois avant de réaliser les mesures proprement dites. Au cours des mois de juillet et octobre 2011, des diagraphies de productivité naturelle et en pompage ont été effectuées par la société Hydro Assistance.

La réalisation d'essais de pompages permet de déterminer les paramètres hydrodynamiques (emmagasinement et perméabilité notamment) d'un certain volume d'aquifère, ce volume dépendant du temps de pompage, des caractéristiques mêmes du système mais également de la disposition des ouvrages testés. Des essais de pompages ont donc été effectués au sein des quatre ouvrages non exploités (Figures I-22 et I-23) ou cours du mois de juillet 2010, conjointement avec les diagraphies de qualité. Ces essais ont été effectués à débit constants. Compte-tenu de la position des ouvrages, seuls Pe4 et Pe5 ont permis d'observer les variations piézométriques dans un forage voisin, et de s'affranchir des effets de puits pouvant influencer les observations aux puits de pompages. Le rabattement induit par le pompage et la remontée ont été contrôlés manuellement et suivis au pas de temps de 5 secondes *via* des capteurs de pression.

De nombreuses méthodes permettent d'interpréter les résultats d'un essai de pompage, les plus classiques étant celles de Theis (pour un aquifère confiné) ou de Jacob (pour un aquifère libre). Cependant, compte tenu du contexte particulier de l'aquifère du massif de l'Ursuya, ces méthodes ne sont pas toujours adaptées. En effet, les équations développées au départ pour des aquifères homogènes ne décrivent pas de façon adéquate les circulations au sein de milieux discontinus (Kruseman et Ridder ; 2000). Dans les aquifères fracturés, le problème principal vient du fait que le réseau de fracture développé au sein du système n'est pas précisément connu. Par conséquent, l'analyse d'essais de pompages dans ce contexte est un outil précieux pour l'identification des modes de circulations hydrauliques qui peuvent s'effectuer au travers des fractures et fissures, de la matrice rocheuse, ou encore des niveaux poreux traversés par le forage.

Finalement, l'analyse des résultats de ces essais consistera à trouver un modèle théorique connu qui représentera au mieux les variations piézométriques observées en réponse aux sollicitations. Compte tenu des courbes de rabattements obtenues au cours des essais de pompages effectués, deux modèles théoriques semblent approcher au mieux les caractéristiques hydrogéologiques des secteurs étudiés :

- le concept de double porosité développé par Warren et Root en 1963 pour des aquifères fracturés uniformément (forages Ip2 et Pe5) ;
- le modèle développé par Hantush en 1956 pour des aquifères semi-confinés (PE4, Osp9).

Les résultats de ces investigations ainsi que les caractéristiques et conditions d'applications des deux modèles d'interprétation utilisés sont détaillées dans le chapitre 4.
5.2.1.3. <u>Stations hydrométriques</u>

Des capteurs de pression (Baro-Diver, Schlumberger Water Services) ont été installés à l'exutoire de l'ensemble des cours d'eau émergeant sur le massif. Ces enregistreurs nous permettent ainsi de contrôler les variations de hauteur d'eau au cours des trois cycles hydrologiques de mesure et de préciser l'ampleur des écoulements de surface. Malheureusement, des contraintes techniques nous ont conduits à abandonner quatre de ces stations. Finalement, huit stations de mesures nous permettent de maîtriser l'ensemble des écoulements de la partie ouest du massif (Figure I-22 et Tableau I-4). Les caractéristiques des bassins versants contrôlés sont données dans le Tableau I-5.

Tableau 1-5. Caracteristiques des bassins versants controles									
Station de	Superficie du	Ordre	Longueur du	Altitude	Pente moyenne				
mesure	bassin versant	(classification	cours d'eau	maximum	$(m \ km^{-1})$				
	(km^2)	de Strahler)	principal (km)	(m NGF)					
Urrutia	0,4	1	1,1	305	155				
Urcuray	13,4	2	4,2	513	101				
Basseboure	1,1	1	1,63	242	108				
Heyderrea	2,9	2	3,8	355	81				
Lattiaénea	1,1	1	1,9	266	100				
Louhossoa	1,7	2	1,6	277	100				
Etchéandia	1,9	1	3,9	397	81				
Costaitsia	8,2	2	3,9	568	109				

Tableau I-5.	Caractéristio	ues des bas	ssins versants	contrôlés

Les hauteurs d'eau enregistrées au pas de temps horaire peuvent être converties en débits *via* les courbes de tarages établies au cours de cette étude. De nombreuses mesures de débits ont en effet été effectuées grâce à un courantomètre numérique acoustique (OTT ADC), afin de relier les hauteurs d'eau aux volumes écoulés sur les sections étudiées. Les mesures de débit et les courbes de tarages établies sont disponibles en annexe A.

5.2.1.4. <u>Station météorologique et prélèvement des eaux précipitées</u>

Afin d'évaluer les conditions climatiques précises du massif de l'Ursuya, une station météorologique a été installée en 2009 au cœur du massif (station « Ursuya » sur la Figure I-22 et dans le Tableau I-4). Les différents capteurs enregistrent au pas de temps de 10 minutes l'ensoleillement, la pression atmosphérique, l'humidité relative et la température de l'air, la vitesse et la direction du vent et la pluviométrie. Ces paramètres nous permettront notamment de déterminer avec précision la lame d'eau précipitée participant réellement à l'alimentation de l'aquifère par détermination de l'évapotranspiration (Chapitre 2). Un pluviomètre de contrôle a été installé en 2010 à l'est du massif (Figure I-22 et Tableau I-4), afin d'observer la variabilité potentielle de pluviométrie sur l'emprise du massif de l'Ursuya.

En accompagnement de la station météorologique, au cœur de l'Ursuya (Figure I-22 et Tableau I-4), un préleveur de précipitations (préleveur automatique de précipitations Eigenbrodt NSA 181) a été mis en place. Un capteur de précipitations permet l'ouverture du couvercle du collecteur au début de chaque épisode pluvieux. Lorsque les précipitations cessent, un signal provenant du capteur de précipitations entraîne la fermeture du couvercle. Ce système évite la collecte des particules sèches. Huit bouteilles d'échantillonnage en polyéthylène sont contenues dans le pluviomètre et le système change de bouteille automatiquement tous les deux jours. Ces huit bouteilles sont conservées dans le pluviomètre à une température de 4 °C jusqu'à la récupération suivante. Durant les deux cycles hydrologiques de prélèvements, 125 échantillons ont été collectés. Ceux correspondant à des évènements pluvieux de moins de 2 mm de hauteur ont été exclus, les autres ont été analysés pour les ions majeurs et les isotopes stables de la molécule d'eau, selon les méthodologies analytiques décrites dans le paragraphe 5.2.2.

5.2.1.5. <u>Géochimie des eaux souterraines</u>

Parmi les 190 sources existantes sur le massif de l'Ursuya, 14 d'entre elles ont été sélectionnées pour effectuer un suivi physico-chimique. Le choix de ces points de prélèvements s'est basé dans un premier temps sur les caractéristiques géographiques (l'altitude notamment) et géologiques des zones d'émergence, de façon à observer les influences de ces paramètres sur la chimie de l'eau souterraine. D'autre part, une importante campagne de reconnaissance (63 eaux de sources prélevées et analysées) nous a conforté dans l'idée que cette sélection de points de suivi permet d'observer l'ensemble des types d'eau rencontrés sur le massif de l'Ursuya. Les eaux de ces sources ont été prélevées mensuellement entre février 2010 et décembre 2011. Les eaux des forages non-exploités ont également été prélevées mensuellement entre juillet 2010 et novembre 2011. L'accès aux forages exploités étant techniquement plus difficile, ces 5 ouvrages n'ont été prélevés qu'une fois pendant la période d'étude.

L'ensemble de ces prélèvements a fait l'objet d'analyses des ions majeurs (HCO_3^- , CI^- , NO_3^- , SO_4^{2-} , K^+ , Na^+ , Mg^{2+} et Ca^{2+}) et des isotopes stables de la molécule d'eau (¹⁸O et ²H). Les paramètres physico-chimiques (conductivité électrique, température de l'eau et pH) ont également été mesurés sur site en accompagnement de chaque prélèvement. Les teneurs en ³H ont été mesurées sur l'ensemble de ces points de contrôle une fois au cours de l'étude.

Enfin, les concentrations en gaz rares (CFCs et SF_6) et nobles (Ar et Ne) ont été mesurées dans les eaux de tous les forages et dans celles de 10 sources. Malheureusement, les contraintes de prélèvement pour ces mesures (pas de contact avec l'air atmosphérique) ne nous ont pas permis d'effectuer l'échantillonnage sur 3 des 14 sources suivies. Un résumé des caractéristiques de ces points de prélèvements est présenté dans le Tableau I-6 et ils sont localisés sur la Figure I-22. Les détails sur les modes de prélèvements et sur les méthodes analytiques sont présentés dans le paragraphe 5.2.2.

Nom	Туре	Coordonnées (Lambert II, ki		Z	Nombre d'analyses (majeurs et isotopes	Nombre d'analyses	Analysé pour les
		X	Y	= (m NGF)	7) (majour set isotopes a analyses ge stables) (Tritium) ge	gaz rares et nobles	
AR1	Source exploitée	302,2	1824,4	265	19	1	Oui
C3	Source non exploitée	301,8	1823,0	575	18	1	Oui
H20	Source exploitée	302,3	1823,1	482	17	1	Oui
H2	Source exploitée	302,5	1823,6	348	17	1	Oui
Ірб	Source exploitée	299,4	1824,1	156	19	1	Oui
La10c	Source exploitée	300,8	1822,3	364	18	1	Oui
La16l	Source exploitée	300,4	1823,9	223	18	1	Oui
La7l	Source exploitée	300,1	1824,4	153	19	1	Oui
Mac	Source exploitée	301,6	1822,7	562	19	1	Oui
Esp	Source exploitée	303,9	1823,0	388	15	1	Non
Pe18	Source exploitée	299,3	1822,5	213	20	1	Oui
Sc2	Source utilisée pour un usage privé	301,8	1822,1	380	18	1	Non
Sc4	Source utilisée pour un usage privé	301,7	1821,3	209	16	1	Non
Se3	Source non exploitée	305,9	1824,4	212	16	1	Non
Ar3	Forage exploité	301,6	1824,3	252	1	1	Oui
Ar5	Forage exploité	301,6	1824,1	273	1	1	Oui
Ip2bis	Forage non exploité	299,4	1824,1	157	11	1	Oui
Osp5	Forage exploité	303,9	1824,6	180	1	1	Oui
Osp9	Forage non exploité	303,6	1824,4	195	8	1	Oui
Pe4	Forage non exploité	299,2	1822,5	219	9	1	Oui
Pe5	Forage non exploité	299,3	1822,4	226	9	1	Oui
Pit11	Forage exploité	302,6	1824,0	288	1	1	Oui
Pit16	Forage exploité	302,4	1824,1	309	1	1	Oui

5.2.2. Méthodes analytiques

5.2.2.1. Mesures in situ des paramètres physico-chimiques

La conductivité électrique (précision de ± 0.5 % de la valeur mesurée), la température (précision de $\pm 0.1^{\circ}$ C) et le pH (précision de ± 0.01 unité pH) ont été mesurés avec un conductimètre et un pHmètre WTW 3310. Les concentrations en ions bicarbonates (assimilables à l'alcalinité) ont également été mesurées *in situ* avec un titrimétre digital HACH par dosage volumétrique.

5.2.2.2. <u>Les ions majeurs</u>

Les échantillons pour l'analyse des ions majeurs ont été filtrés à 0,45 µm et ont été prélevés dans des flacons en polyéthylène et conservés au réfrigérateur à une température d'environ 4°C avant analyse. Les prélèvements dans les forages non exploités ont été réalisés avec des préleveurs type écobaileur en polyéthylène. Pour les forages exploités, le prélèvement s'est effectué directement au robinet, à la sortie du puits.

Les ions majeurs (mis à part les ions HCO_3^-) ont été mesurés au laboratoire de l'EA 4592 Géoressources & Environnement de l'ENSEGID, par chromatographie ionique en phase liquide (Dionex 320 IonPac CS16 pour les cations et Dionex 1100 IonPac AS11-HC pour les anions).

La qualité de l'analyse a été systématiquement contrôlée par calcul de la balance ionique. Les analyses présentant une balance supérieure à 10 % ont été rejetées. La faible minéralisation des eaux rencontrées ne permettait pas d'obtenir une meilleure précision. Pour les eaux de pluie, un contrôle supplémentaire a consisté à vérifier la corrélation linéaire entre les concentrations anioniques totales et les concentrations cationiques totales correspondantes.

5.2.2.3. <u>Les isotopes stables de la molécule d'eau</u>

Pour les isotopes stables de la molécule d'eau, les échantillons ont été collectés dans des flacons en verre ambré de 20 ml et conservés au réfrigérateur à une température d'environ 4 °C avant analyse.

Les valeurs de δ^{18} O et δ^{2} H ont été mesurées à l'ENSEGID (EA 4592 Géoressources & Environnement) par spectrométrie laser. Un spectromètre DLT-100 (Los Gatos Research) a été utilisé en respectant le schéma analytique recommandé par l'Agence Internationale pour L'Energie Atomique (Aggarwal *et al.*, 2009 ; Penna *et al.*, 2010). La qualité de l'analyse a été systématiquement contrôlée en admettant un écart type maximum de 2 ‰ pour δ D et de 0,3 ‰ pour δ^{18} O pour six analyses d'un même échantillon.

5.2.2.4. <u>Outils de datation des eaux souterraines, excès d'air et</u> <u>température de recharge</u>

Les méthodes de datation et d'évaluation de l'excès d'air et de la température de recharge utilisées seront détaillées dans le chapitre 3.

Les échantillons pour les analyses des teneurs en tritium ont été prélevés dans des flacons en polyéthylène de 1 L. Les analyses des teneurs en ³H ont été effectuées au Laboratoire d'Hydrogéologie de l'Université d'Avignon par enrichissement électrolytique (Kaufmann et Libby, 1954) et comptage par scintillation liquide (Thatcher *et al.*, 1977).

Les échantillons pour les analyses de CFCs et SF_6 ont été prélevés dans des ampoules en acier inoxydable de 30 mL. Le volume de l'ampoule a préalablement été rincé 3 fois. Aucun contact avec l'air atmosphérique n'a été permis durant le prélèvement. Pour les analyses de gaz nobles, l'eau a été prélevée dans des bouteilles en verre de 500 mL. Les bouteilles ont été remplies par submersion puis bouchées sans présence de la moindre bulle d'air.

Dans les forages non exploités, l'eau a été pompée jusqu'à obtenir une conductivité électrique stable avant le prélèvement. Une pompe immergée (Grundfoss MP1) a été placée directement en face du niveau à prélever. Pour les forages exploités, l'échantillon a été pris directement au robinet à la sortie du forage, en évitant tout mélange avec l'air atmosphérique. Les eaux de sources ont été échantillonnées directement à l'émergence. Lorsque la pression était trop faible pour remplir l'ampoule, elle a été augmentée en réduisant la section d'écoulement.

Les analyses ont été effectuées au Laboratoire de l'OSUR – Géoscience Rennes à l'Université de Rennes-1 suivant la méthode décrite par Labasque *et al.* (2006) et Ayraud *et al.* (2008). Les concentrations en CFCs et SF₆ ont été obtenues par dégazage des échantillons d'eau par injection d'azote. Les gaz ont été piégés dans des tubes en acier inoxydable rempli de Porasil C et maintenus à une température de -100 °C dans un bain d'éthanol. Après 10 minutes de pré-concentration, le piège est transféré dans de l'eau bouillante (+ 100 °C).

Les gaz ont ensuite été injectés dans une colonne de chromatographie gazeuse équipée d'un détecteur à capteur d'électrons (GC-ECD). L'incertitude analytique est estimée à 1 % pour les CFCs (Labasque *et al.*, 2006 ; Ayraud *et al.*, 2008) et aux alentours de 5 % pour le SF₆.

L'excès d'air et la température de recharge ont été estimés par analyse de l'Ar et du Ne (Labasque *et al.*, 2006 ; Ayraud *et al.*, 2008). Les gaz nobles ont été extraits par « head-space » avec l'Hélium comme gaz vecteur. Les concentrations ont été déterminées en utilisant une chromatographie gazeuse (GC 3000, SRA instruments). L'incertitude est autour de 3 % pour le Néon et de moins de 2 % pour l'Argon.

Chapitre II. Caractérisation du signal d'entrée

Les précipitations constituent le signal d'entrée des aquifères. Sur le massif de l'Ursuya, la recharge des eaux souterraines provient exclusivement de l'atmosphère puisque aucun apport *via* un système aquifère adjacent ou des cours d'eau ne semble exister. La quantification et la caractérisation isotopique et chimique du signal d'entrée est donc un pré-requis indispensable à l'étude des eaux souterraines du massif de l'Ursuya.

L'aspect quantitatif est abordé dans un premier temps. A partir de l'ensemble des données climatologiques à notre disposition, l'évapotranspiration et les précipitations efficaces qui en découlent sont estimées, après avoir détaillé les procédures de calculs. Cette quantification sera néanmoins nuancée et fera l'objet d'un bilan hydrologique.

Dans un second temps, l'aspect qualitatif des eaux précipitées est présenté. Les mécanismes généraux conduisant à la formation de l'eau de pluie sont abordés, de même que les processus d'acquisition de sa composition chimique et isotopique. Nous nous attacherons ici à caractériser les paramètres qui influencent la composition des eaux de pluies du Pays Basque français dans le but de fournir une connaissance nouvelle, utile pour l'ensemble des aquifères du nord-ouest des Pyrénées, mais également afin de quantifier les apports des eaux précipitées au système aquifère de l'Ursuya.

1. QUANTIFICATION DU SIGNAL D'ENTREE

1.1. Estimation de la lame d'eau précipitée

La station météorologique implantée au cœur du massif de l'Ursuya (coordonnées géographiques en Lambert II : X = 302,0 Km ; Y = 1823,3 Km ; Z = 570 m NGF, Figure I-22 et Tableau I-4) depuis juillet 2009 enregistre un ensemble de paramètres météorologiques (pluviométrie, température, humidité et pression atmosphérique, ensoleillement, vitesse et direction du vent). Compte tenu du contexte géographique du massif (à proximité de l'océan Atlantique et au pied de la chaîne Pyrénéenne), la variabilité géographique des hauteurs d'eau précipitées peut être importante (effet d'altitude, distance à l'océan, effet orographique, effet de foehn). Afin de déterminer l'ampleur de cette variabilité, un second pluviomètre a été installé à l'extrémité est de la zone d'étude, à une altitude intermédiaire (Mendurria, Figure I-22 ; coordonnées géographiques en Lambert II : X = 306,1 Km ; Y = 1824,3 Km ; Z = 264m NGF). Ce dernier nous a permis de contrôler la pluviométrie entre mai 2010 et décembre 2011. La Figure II-1 illustre les différences de pluviométries hebdomadaires et mensuelles enregistrées au cours de cette période. Les chroniques sont parfois incomplètes pour l'une ou l'autre des stations (Figure II-1). Les données hebdomadaires ont été représentées en s'affranchissant des périodes pour lesquelles les données peuvent être erronées sur l'une des stations. De cette manière, les mesures effectuées peuvent être comparées sur des chroniques communes aux deux stations.

La Figure II-1 semble indiquer une pluviométrie globale très légèrement supérieure sur la station Ursuya que sur le pluviomètre Mendurria. Pourtant, une analyse plus précise de ces données conduit à nuancer cette observation. Sur la période commune de mesure, la pluviométrie totale enregistrée à Mendurria est de 2015,8 mm et elle est de 2087,7 mm à la station Ursuya. Cette différence est faible et sur une base annuelle (entre mai 2010 et avril 2011), elle ne représente que 7 % de la pluviométrie mesurée à la station Ursuya. Le nombre de jours de pluie est de 198 pour les deux stations sur la période commune d'enregistrement. Compte tenu de la courte période de mesure et du faible nombre de stations, il ne serait pas rigoureux de proposer ici un gradient altitudinal de pluviométrie. De plus, même si la lame d'eau précipitée est légèrement supérieure en altitude, les différences observées sont très faibles. Il apparait donc raisonnable de considérer la pluviométrie comme homogène sur l'ensemble de l'aire étudiée, d'autant que les données disponibles ne permettent pas d'obtenir une précision supérieure. Dans la suite de ce manuscrit, les données de pluviométrie seront donc issues de la station Ursuya. En revanche, les données manquantes sur cette station seront remplacées par celles du pluviomètre Mendurria, quand celles-ci sont disponibles.





Le Tableau II-1 propose un résumé des pluviométries mensuelles enregistrées sur le massif de l'Ursuya et la Figure II-2 présente les données mensuelles et hebdomadaires individuelles enregistrées sur toute la période d'étude. L'ensemble des données pluviométriques enregistrées sur le massif de l'Ursuya sont cohérentes avec les moyennes mesurées au cours des 50 dernières années à Cambo-les-Bains (chapitre 1), mis à part les mois de juillet 2011 (exceptionnellement pluvieux) et de septembre 2009 (très sec). Globalement, la période la plus pluvieuse sur le massif de l'Ursuya s'étale entre septembre et février avec une moyenne de 856,9 mm. Sur la même période, la hauteur de précipitation moyenne mesurée au cours des 50 dernières années à Cambo-les-Bains est de 915 mm. La période la moins pluvieuse correspond aux saisons printanières et estivales avec une pluviométrie moyenne entre mars et août de 625,7 mm contre 740 mm à Cambo-les-Bains en moyenne (entre 1964 et 2009).

La moyenne annuelle de précipitations sur le massif de l'Ursuya calculée sur la base des trois années de suivi est de 1410 mm (Tableau II-1). Ce résultat est légèrement plus faible que la moyenne annuelle enregistrée à Cambo-les-Bains au cours des 50 dernières années (1626 mm ; Chapitre 1).

Tableau II-1. Pluviométrie moyenne, minimum et maximum mensuelle et annuelle enregistrée sur le massif de l'Ursuya entre juillet 2009 et juin 2012

Pluviométrie (mm)	Janv.	Fév.	М	ars	Avril	Mai	Juin	Juil.	Août
Moyenne	111,5	100,6	72	2,1	129,7	117,9	98,0	135,9	72,1
Min. (année)	29,0 (2011)	36,8 (2012	35 2) (2	5,0 012)	48,0 (2011)	67,2 (2011)	48,6 (2012)	34,6 (2010)	60,4 (2009)
Max. (année)	160,8 (2010)	174,6 (2011) 11) (2	.7,4 011)	262,4 (2012)	152,6 (2010)	180,3 (2010)	310,2 (2011)	85,8 (2011)
	Sept.	Oct.	Nov.	Déc.	Moyenne annuelle		2009/2010	2010/2011	2011/2012
Moyenne	64,3	116,9	245,7	145,8					
Min. (année)	18,0 (2009)	75,2 (2011)	138,2 (2011)	117,0 (2010)	1410,4	Totale	1425,9	1306,8	1498,6
Max. (année)	118,6 (2010)	160,8 (2010)	304,4 (2010)	171,4 (2011)		(



Figure II-2. Pluviométrie mensuelle et hebdomadaire enregistrée sur le massif de l'Ursuya entre juillet 2009 et juin 2011

1.2. Estimation de l'évapotranspiration

1.2.1. Définitions et méthodes de calcul

1.2.1.1. <u>Définition de l'ETP</u>

Le phénomène d'évapotranspiration est engendré par la combinaison de deux processus par lesquels une partie de la lame d'eau précipitée retourne dans l'atmosphère. Il s'agit de l'évaporation de l'eau du sol d'une part et de la transpiration des végétaux d'autre part (Allen *et al.*, 1998). Ce phénomène se traduit par la transformation de l'eau liquide en eau gazeuse et joue un rôle majeur dans le cycle de l'eau, à l'échelle de la planète (62 % des eaux précipitées sont évaporées ; Musy et Higy, 2004) comme à celle du bassin versant. En effet, la quantité d'eau disponible pour la recharge des aquifères peut être largement réduite par le phénomène d'évapotranspiration. Il est donc indispensable d'avoir une estimation la plus précise possible de ce paramètre.

Le taux d'évapotranspiration dépend de divers paramètres météorologiques (radiation solaire, température et humidité de l'air, vitesse du vent) mais également des caractéristiques de la végétation en présence (types de végétaux, stade de développement...), paramètres souvent difficiles à évaluer.

Thornthwaite fut le premier à définir l'évapotranspiration potentielle (ETP) en 1948 comme la hauteur d'eau disponible pouvant être transpirée et évaporée. Par la suite, de nombreuses définitions sont apparues (Penman, 1956 ; Perrier, 1977 ; Morton, 1983 ; Granger, 1989 ; Shuttleworth, 1993 ; Garratt, 1994). Nous retiendrons la définition proposée par Lhomme (1997) : l'ETP sur une surface donnée (végétation, sol nu ou surface d'eau libre) et sous des conditions météorologiques données, correspond à la limite supérieure de l'évapotranspiration de cette surface et sous ces conditions météorologiques, cette limite étant atteinte lorsque la surface considérée est complètement saturée.

1.2.1.2. <u>Méthodes d'estimation de l'ETP</u>

L'ETP peut être mesurée à l'aide de lysimètre ou, dans la majorité des cas, calculée à partir de diverses données, notamment météorologiques. Les formules mises au point pour calculer l'ETP sont nombreuses. Elles sont divisées en deux catégories : les méthodes empiriques (basées sur le coefficient cultural, une estimation de l'évapotranspiration d'une culture de référence et le bilan hydrique du sol) et les méthodes analytiques (modèles basés sur le bilan énergétique).

En 1975, dans un inventaire non exhaustif des méthodes les plus usuelles, Lecarpentier propose une autre distinction basée sur les paramètres météorologiques que ces formules prennent en compte :

- Les formules thermiques, basées exclusivement sur la température (Holdridge, 1959) et la durée d'éclairement et faisant appel à un coefficient cultural et régional (Thornthwaite, 1948; Blaney et Criddle, 1952). Ces méthodes restent peu fiables compte-tenu du peu de paramètres pris en comptes. De plus, le coefficient cultural et régional semble difficilement généralisable. La méthode de Thornthwaite, qui ne comporte pas ce coefficient cultural et régional, a pourtant été largement utilisée du fait de sa simplicité d'utilisation.
- Les formules hygrométriques/hygrothermiques, qui tiennent compte, en plus de la température et de la durée d'ensoleillement, de l'humidité de l'air (Garnier, 1956; Papadakis, 1961; Garcia-Lopez, 1970; Hargreaves, 1974). Ces méthodes, bien que prenant en compte un paramètre supplémentaire, n'ont jamais pu être généralisées sur l'ensemble du globe et sont valables seulement sous certains climats propres à chacune d'elles. En dehors de ces conditions climatiques spécifiques, elles ont tendances à surestimer ou sous-estimer l'ETP.
- Les formules énergétiques font appel, en plus des paramètres précédents, à la radiation solaire. Il s'agit, des formules de Penman (1948), Turc (1954), ou encore Brochet-Gerbier (1968). Ces formules semblent les plus précises, mais certaines d'entre elles soufrent, comme les précédentes, d'une difficile généralisation à l'échelle du globe. Parmi ces méthodes, seule celle de Turc est acceptable dans toutes les zones et domaines climatiques (Lecarpentier, 1975). Cependant, en 1981, une adaptation de l'équation de Penman semble constituer l'approche la plus complète du processus d'évapotranspiration. Il s'agit de l'équation de Penman-Monteith, qui depuis 1990, est utilisée de façon standard pour déterminer l'ETP (Allen *et al.*, 1998).

La dernière version de cette équation, dite « FAO Penman-Monteith equation » s'écrit (Allen *et al.*, 1998) :

$$ETP = \frac{0,408 \Delta (R_n - G) + \gamma \frac{900}{T + 273} u_2 (e_s - e_a)}{\Delta + \gamma (1 + 0,34 u_2)}$$
 Équation 1

 R_n : radiation nette à la surface du sol (MJ $m^{-2}\,j^{-1})$;

G : densité de flux de chaleur du sol (MJ $m^{-2} j^{-1}$);

T : température moyenne journalière de l'air à 2 m de hauteur (°C) ;

 u_2 : vitesse du vent à 2 m de hauteur (m s⁻¹);

e_s: pression de vapeur saturante (kPa) ;

 $e_{a:}$ pression de vapeur effective (kPa) ;

 $e_s - e_a$: déficit de pression de vapeur saturante (kPa) ;

 Δ : pente de la courbe de pression de vapeur à la température moyenne de l'air (kPA $^{\circ}C^{-1})$;

 γ : constante psychrométrique (kPA °C⁻¹).

Les données climatologiques nécessaires à la résolution de cette équation sont disponibles à la station météorologique de l'Ursuya (Figure I-22) et sont détaillées dans le paragraphe 1.2.2 de ce chapitre. Les autres paramètres sont des constantes et/ou sont fonction de la localisation du site (latitude et altitude) et des données mesurées. Les ETP mensuelles ont été calculées grâce au programme « Cropwat 8.0 » disponible sur le site de la FAO (« Food and Agriculture Organization », <u>http://www.fao.org/nr/water/infores_databases_cropwat.html</u>). Les valeurs d'ETP calculées sont présentées dans le paragraphe 1.2.3.1 de ce chapitre.

1.2.1.3. <u>Définitions de l'ETR et de la RFU</u>

Cette notion d'ETP conduit logiquement à celle d'évapotranspiration réelle (ETR). L'ETP permet de rendre compte du pouvoir évaporant de l'atmosphère et des végétaux mais ne tient pas compte de l'état hydrique du sol. L'évaluation de la lame d'eau réellement évapotranspirée (ETR) est donc indispensable pour estimer la hauteur de pluie efficace participant à la recharge des nappes et à l'écoulement superficiel. L'état hydrique du sol est appréhendé au moyen de la réserve en eau facilement utilisable (RFU).

La RFU est une composante de la réserve utile (RU). Cette dernière correspond à la quantité d'eau stockée par le sol après une période pluvieuse et absorbable par les plantes. La RFU est considérée comme valant 2/3 de la RU. Elle représente la quantité d'eau dans le sol que la plante peut facilement absorber. Le tiers restant est plus difficilement accessible par les plantes.

Les volumes de RFU sont liés aux types de sols et à leur épaisseur. Ils peuvent être nuls sur des roches compactes dépourvues de sol ou atteindre plus de 200 mm dans des sols profonds très argileux ou limoneux (Lambert, 1996 ; Gilli *et al.*, 2008). Entre ces deux extrêmes, la RFU est proportionnellement croissante avec le taux d'argile et de limons dans les sols (Jamagne *et al.*, 1977).

1.2.1.4. La méthode du bilan hydrique

Une méthode, élaborée par Thornthwaite en 1954, permet d'évaluer la proportion d'eau météorique évaporée et infiltrée (et/ou ruisselée) par le biais d'un bilan hydrique. L'incertitude de cette méthode réside principalement dans l'estimation de la RFU, difficile à évaluer sans investigations précises sur les types de sols en présence. En effet, compte-tenu de la superficie du site étudié et de la variété des lithologies observées (notamment en fonction du profil d'altération définie dans le chapitre 1), les sols développés ne sont assurément pas homogènes sur l'intégralité du massif de l'Ursuya. Certains secteurs présentent une absence de sol (notamment aux alentours du sommet du massif), et quand ils sont présents, une caractérisation succincte permet d'affirmer qu'ils sont globalement de type argileux à arilosableux, voir sablo-argileux. Leur épaisseur est également très variable sur l'ensemble du site et n'a pas fait l'objet d'une cartographie précise. Une RFU moyenne de 100 mm sera donc utilisée dans les calculs qui suivent, cette valeur étant par ailleurs classiquement utilisée dans des études à finalités hydrogéologiques (Chigot et Chevillot, 1992 sur le massif de l'Ursuya ; Durand, 2005; Rey, 2007...). Cependant, afin d'évaluer l'impact de ce paramètre, une hypothèse plus optimiste pour la recharge de l'aquifère sera également testée avec une RFU de 50 mm.

Dans la méthode de Thornthwaite, on admet que la satisfaction de l'ETP a priorité sur l'écoulement ou l'infiltration. C'est-à-dire qu'avant qu'il n'y ait écoulement, il faut avoir satisfait la relation ETP = ETR. Par ailleurs, la satisfaction de la RFU est également prioritaire sur l'écoulement. Ainsi, à partir de la pluie mensuelle P, de l'ETP et de la RFU (Laborde ; 2000) :

Si P > ETP, alors :

- ETR = ETP;
- si il reste un excédent (P–ETP), il est affecté à la RFU si nécessaire, et à l'écoulement (et/ou l'infiltration) quand la RFU est complète.

Si P < ETP, alors :

• toute la pluie est évaporée et la RFU est diminuée, jusqu'à la vider si besoin, de l'eau nécessaire pour satisfaire l'ETP. Dans ce cas l'écoulement (et/ou l'infiltration) est nul.

Les valeurs d'ETR et de précipitations efficaces calculées sont détaillées dans le paragraphe 1.2.3.2.

1.2.2. Données disponibles

1.2.2.1. <u>Température</u>

La température a été mesurée au pas de temps de 10 minutes à la station Ursuya, située au cœur du massif (Figure I-22). La Figure II-3 permet d'observer les températures moyennes journalières, hebdomadaires et mensuelles enregistrées entre juillet 2009 et juin 2012. Au cours de cette période, le mois le plus chaud a été juillet 2010 avec une température moyenne de 20,3 °C, et le plus froid février 2012 avec une température moyenne de 2,1 °C (Tableau II-2). Le mois d'août est en moyenne le plus chaud de l'année (19,7 ± 0,3 °C) et janvier et février sont les plus froids avec respectivement 4,4 ± 1,3 °C et 4,3 ± 2,5 °C (Tableau II-2). La température moyenne sur la période d'étude (3 années complètes de mesure) est de 11, 5 °C, de même que la température annuelle moyenne. On constate donc une large diminution de la température moyenne annuelle par rapport à celle mesurée à la station de Cambo-les-Bains depuis 50 ans (14,1 °C ; Chapitre 1).



Figure II-3. Températures moyennes journalières, hebdomadaires et mensuelles (moyennes mobiles centrées) mesurées sur le massif de l'Ursuya entre juillet 2009 et juin 2012

ees men	suelles et o	ie juillet a	juin pour	· les donne	es annuel	les)			
Juil.	Août	Sept.	Oct.	Nov.	Déc.	2009/2010	2010/2011	2011/2012	Période d'étude
17,1 4,3 12,2 (2011) 20,3	19,7 0,3 19,5 (2011) 20,0	16,3 1,1 15,5 (2010) 17,5	13,2 0,4 12,8 (2011) 13,7	9,1 1,9 7,9 (2010) 11,3	5,5 1,8 4,4 (2009) 7,6	11,5 6,0	11,5 5,5	11,3 5,3	11,5 5,4
(2010)	(2009)	(2009)	(2009)	(2009)	(2011)				<u> </u>
87,6 5,3 81,7 (2009) 91,8 (2010)	86,8 0,2 86,6 (2010) 87,0 (2009)	81,8 3,8 79,0 (2011) 86,2 (2009)	75,6 1,7 73,8 (2009) 77,0 (2010)	77,7 9,6 70,9 (2009) 88,7 (2010)	78,3 3,6 74,5 (2010) 81,6 (2009)	79,6 7,4	82,0 5,7	79,2 6,6	80,2 6,5
205,5 17,2 195,5 (2010) 225,4 (2009)	195,5 3,1 192,4 (2011) 198,6 (2010)	167,1 17,5 150,2 (2009) 185,2 (2011)	118,0 12,0 107,9 (2010) 131,3 (2011)	63,4 13,4 51,2 (2010) 77,7 (2011)	52,8 5,9 47,9 (2009) 59,4 (2010)	140,5 67,7	142,2 67,8	145,8 65,2	142,8 65,0
3,8 0,6 3,3 (2010) 4,4 (2011)	3,6 0,3 3,4 (2009) 3,9 (2011)	3,6 0,2 3,5 (2009) 3,8 (2011)	4,2 0,2 3,9 (2011) 4,3 (2010)	5,0 1,0 3,8 (2011) 5,6 (2010)	5,5 0,6 5,0 (2010) 6,3 (2011)	4,3 0,7	4,2 0,7	4,4 0,8	4,3 0,71

Tableau II-2. Paramètres météorologiques moyens mesurés entre juillet 2009 et juin 2012 (H = humidité relative de l'air, Rs = rayonnement solaire, V = vitesse du vent ; moy	y =
moyenne et Ec. ty. = écart type ; calculs effectués sur trois valeurs pour les données mensuelles et de juillet à juin pour les données annuelles)	

98

Janv.

4,4

1,3

3,0

5,6

85,5

1,4

83,9

86,6

55,0

5,7

48,4

58,5

4,5

0,3

4,1

4,7

(2011)

(2010)

(2010)

(2011)

(2011)

(2009)

(2010)

(2012)

Moy.

Ec. ty.

(année)

(année)

Min.

Max.

Moy. Ec. ty.

Min. (année)

Max.

Moy.

Ec. ty.

(année)

(année)

Min.

Max.

Moy.

Ec. ty.

(année)

(année)

Min.

Max.

(année)

 $T(^{\circ}C)$

H(%)

Rs

 $(W m^{-2})$

 $V(m s^{-l})$

Fév.

4,3

2,5

2,1

7,1

75,9

2,2

74,3

78,4

93,3

8,3

87,6

(2010)

102,7

(2012)

4,3

0,7

3,5

4,7

(2012)

(2010)

(2012)

(2011)

(2012)

(2011)

Mars

7,3

2,5

5,5

(2011)

(2012)

10,1

71,0

6,8

66,9

78.8

(2012)

(2011)

150,3

32,1

128,5

(2011)

187,2

(2012)

4,3

0,3

4,0

4,6

(2011)

(2010)

Avril

11

2,6

8,1

(2012)

(2011)

13,0

77,4

7,2

72,5

85,7

(2010)

(2012)

170,4

52,5

110,2

(2012)

206,8

(2010)

4,6

0,9

3,9

5,7

(2010)

(2012)

Mai

13,8

1,6

12,3

15,5

81,3

5,4

75,0

84,6

(2012)

(2011)

212,8

14,8

197,2

(2010)

226,6

(2011)

4,4

0,5

3,9

4,8

(2011)

(2012)

(2010)

(2012)

Juin

15,8

2,4

13,5

18,3

(2012)

84,1

5,2

78,6

88,9

(2012)

(2010)

229,8

14,0

215,6

(2010)

243,5

(2012)

4,0

0,4

3,7

4,4

(2010)

(2012)

(2011)

Chapitre II. Caractérisation du signal d'entrée

Compte tenu de la différence d'altitude entre ces deux stations et de la différence de température annuelle moyenne, un gradient de -0,52 °C tous les 100 m peut être établi sur une base annuelle. Ce résultat reste cependant soumis à une grande incertitude compte tenu de la période de mesure relativement courte sur le massif de l'Ursuya et surtout du fait du faible nombre de points d'observations. En effet, des stations de mesure à altitudes intermédiaires seraient nécessaires afin de valider ce résultat. Néanmoins, ce gradient est très proche de celui établi par Rey dans le Béarn en 2007 (-0,54 °C tous les 100 m), ou Malzieu (1987) et Reynaud (2000) avec -0,53 °C tous les 100 m dans le nord de la Provence. Il est en revanche plus faible que le gradient national proposé par Réméniéras en 1986 (-0,6 °C tous les 100 m).

1.2.2.2. <u>Humidité, ensoleillement, vitesse et direction du vent</u>

L'humidité atmosphérique relative moyenne établie sur la période d'étude est de 80,2 % avec une moyenne annuelle de 80,3 %. Les humidités relatives journalières atteignent très régulièrement 100 % et le maximum mensuel est observé en juillet 2010 avec une valeur de 91,8 % (Tableau II-2). La moyenne mensuelle la plus faible a été mesurée en novembre 2009 avec 70,9 %. Globalement, l'humidité relative de l'air est la plus faible au mois de mars (71%) et la plus forte en août avec 86,8 %.

Le rayonnement solaire est en moyenne de 142,8 W m⁻² sur la période d'étude. Il est le plus faible en décembre (52,8 w m⁻² en moyenne) et augmente régulièrement pour atteindre un maximum en juin avec une valeur moyenne de 229,8 W m⁻².

La moyenne annuelle de la vitesse du vent est de 4,3 m s⁻¹, même moyenne que sur l'ensemble de la période d'étude. Mensuellement, la vitesse moyenne du vent varie entre 3,6 m s⁻¹ en août et septembre et 5,5 m s⁻¹ en décembre. La vitesse moyenne du vent n'a pas de réelle signification puisque celui-ci fonctionne par rafales. Des vitesses très élevées ponctuellement ne sont pas visibles dans les valeurs moyennes. Cependant, ces données sont indispensables pour le calcul de l'ETP par la méthode de Penmann-Monteith. Le datalogger utilisé pour enregistrer ces mesures permet de connaître la vitesse la plus élevée observée au cours du pas de temps de mesure. Ainsi, la rafale la plus forte enregistrée au cours de la période d'étude a été observée le 4 octobre 2010 entre 10h20 et 10h30 avec une vitesse de 31,3 m s⁻¹, soit 108 km h⁻¹, au cours d'un épisode pluvieux important (34,4 mm entre 7 h et 11 h).

La direction du vent, bien qu'elle soit également enregistrée, n'est pas présentée ici en détail car elle n'entre pas en compte dans le calcul de l'ETP. D'autre part, compte tenu des contraintes d'installation, la station météorologique est disposée sur le versant nord du massif de l'Ursuya. La direction du vent est donc largement influencée par le relief. La Figure II-4 permet d'observer cette influence avec une direction globalement ouest-est, particulièrement lorsque les vents sont les plus violents.

L'ensemble de ces donné est utilisées pour calculer l'ETP selon l'équation FAO Penman-Monteith. Les résultats sont présentés dans le paragraphe 1.2.3.1. Il est important de préciser que ces données ont été étendues pour l'ensemble de la zone d'étude. Pourtant, il est certain que, compte tenu de la topographie du site, ces paramètres climatiques ne peuvent pas être considérés comme homogènes à l'échelle du massif. Néanmoins, cette station météorologique est la seule apportant l'ensemble des informations nécessaires au calcul de l'ETP au cœur de la zone d'étude. Il n'aurait pas été plus rigoureux d'utiliser les données fournies par Météo France à la station de Biarritz-Anglet, située à plus de 25 km du massif et en bordure de l'océan Atlantique. D'autre part, les données d'ETP, et de précipitations efficaces qui en découlent, sont évaluées principalement dans un simple objectif de caractérisation globale. L'incertitude engendrée par le calcul de l'ETP présenté ici peut-donc être considérée comme acceptable compte-tenu du but recherché.



Figure II-4. Diagramme de fréquences des vents enregistrés sur le massif de l'Ursuya entre juillet 2009 et juin 2012

1.2.3. Evaluation de l'évapotranspiration et de la pluie efficace

1.2.3.1. <u>Evapotranspiration potentielle</u>

Les résultats du calcul de l'ETP sur le massif de l'Ursuya entre juillet 2009 et juin 2012 sont présentés sur la Figure II-5. Le mois de janvier est celui qui présente l'ETP la plus faible avec une moyenne de 33,5 mm sur les trois années mesurées avec un minimum atteint en 2012 (29 mm). Elle reste globalement faible du mois de novembre à février inclus et elle augmente ensuite pour atteindre un maximum aux mois présentant les températures et l'ensoleillement les plus élevés, de juin à août. L'ETP maximum au cours de la période de mesure a été calculée au mois de juin 2011 avec une valeur de 169 mm.

Sur une base annuelle, l'évapotranspiration potentielle moyenne est de 1169 mm. L'ETP ne représentant pas la lame d'eau réellement evapotranspirée, nous verrons dans le paragraphe suivant que les précipitations ne permettent pas de satisfaire l'évapotranspiration potentielle.



Figure II-5. ETP mensuelle calculée sur le massif de l'Ursuya entre juillet 2009 et juin 2012

1.2.3.2. <u>Evapotranspiration réelle et précipitations efficaces</u>

Comme nous l'avons précisé dans le paragraphe 1.2.1, l'évapotranspiration réelle à été calculée en considérant d'une part une RFU de 100 mm et d'autre part une RFU de 50 mm. Cette dernière valeur permet de calculer des ETR et des pluies efficaces dans le cadre d'une hypothèse optimiste pour la recharge de l'aquifère. Les résultats mensuels moyens et annuels sont présentés dans le Tableau II-3. Dans les deux cas, l'ETP est satisfaite pour les mois d'octobre à février. La RFU de 100 mm permet également d'atteindre l'évapotranpiration potentielle au mois de mars. Dans les cas où l'ETR n'atteint pas les valeurs d'ETP, celle-ci est satisfaite à 72 % au minimum (en avril) avec une RFU de 50 mm et à 79 % au minimum (en août) avec une RFU de 100 mm. Sur une base annuelle, l'ETR est en moyenne de 1038 mm avec une RFU de 100 mm et de 941 mm avec une RFU de 50 mm, soit respectivement 94 % et 85 % de l'ETP.

L'intérêt principal de cette analyse réside dans l'évaluation des précipitations efficaces, c'està-dire la lame d'eau précipitée qui sera disponible pour l'infiltration et le ruissellement après la soustraction par l'ETR. Avec une RFU de 100 mm, les mois d'avril, mai, août, septembre et octobre présentent des précipitations efficaces nulles (Tableau II-3). L'existence d'une lame d'eau efficace non nulle au mois de juillet s'explique par l'occurrence régulière d'orages violents, en particulier au cours de l'année 2011 (paragraphe 1.1). Avec une RFU de 50 mm, seuls les mois d'avril, août et septembre présentent des pluies efficaces nulles.

Les mois d'hiver (novembre à février) sont ceux pour lesquels la pluie efficace est la plus importante, avec un maximum en décembre (100,5 mm avec une RFU de 100 mm et 101,6 mm avec une RFU de 50 mm). Les moyennes annuelles calculées montrent une hauteur de précipitation disponible pour l'infiltration et le ruissellement de 512 mm avec une RFU de 100 mm et de 619 mm avec une RFU de 50 mm. Toujours à une échelle annuelle, les précipitations efficaces calculées avec une RFU de 50 mm ont des valeurs supérieures à celles calculées avec une RFU de 100 mm de l'ordre de 17 %, soit plus de 100 mm.

Ainsi, au cours d'un cycle hydrologique, deux périodes peuvent être distinguées. Une période de novembre à février au cours de laquelle la recharge est maximale du fait d'une forte pluviométrie et des faibles pertes liées à l'ETP, et une période de mars à octobre pendant laquelle la reprise évapotranspiratoire est forte et les précipitations moindres, ce qui génèrent des pluies efficaces faibles à nulles suivant la RFU considérée.

Le diagramme ombrothermique, présenté sur la Figure II-6, résume les grands traits climatiques du secteur : un fort contraste thermique entre été et hiver, une pluviométrie importante tout au long de l'année avec un maximum à l'automne et le rôle prépondérant de l'évaporation entre avril et août. Il met bien en évidence une recharge préférentielle automnale et hivernale, malgré des précipitations efficaces estivales (en particulier au mois de juillet) non négligeables.

RFU (mm)		Janvier	Février	Mars	Avril	Mai	Juin	Juillet	Août
	ETR (mm)	33,5	59,8	86,3	121,6	122,5	135,5	124,0	113,8
100	% ETP	100	100	100	91	88	88	94	84
	Précipitations efficaces (mm)	85,5	66,7	14,8	0,0	0,0	9,8	49,2	0,0
	ETR (mm)	33,5	59,8	77,6	97,0	105,8	135,5	98,9	106,0
50	% ETP	100	100	89,9	72,3	76,0	88,3	74,8	78,7
	Précipitations efficaces (mm)	88,6	66,7	14,8	0,0	8,1	18,4	74,2	0,0
Différence précipitations efficaces (%)	3,5	0,0	0,0	0,0	100,0	46,7	33,7	0,0	
		Septembre	Octobre	Novembre	Décembre	2010	2011	Moyenne a	nnuelle
	ETR (mm)	82,3	91,4	48,3	47,1	1033,3	1043,0	1038,1	
100	% ETP	81	100	100	100	93	96	94	
	Précipitations efficaces (mm)	0,0	0,0	98,2	100,5	595,4	429,6	512,5	
	ETR (mm)	82,0	91,4	48,3	47,1	933,3	948,0	940,7	
50	% ETP	80,6	100	100	100	83,6	87	85,3	
	Précipitations efficaces (mm)	0,0	21,7	123,5	101,6	713,0	524,6	618,8	



Figure II-6. Diagramme ombrothermique du massif de l'Ursuya (moyennes mensuelles entre juillet 2009 et juin 2012 ; ETR calculée sur la base d'une RFU de 100 mm)

1.2.4. Critiques et précisions sur le bilan hydrique

1.2.4.1. Limites de la méthode

Les limites d'une telle analyse apparaissent ici. En effet, l'évaluation de certains paramètres, notamment la RFU, semble relativement incertaine. Celle-ci est liée à des paramètres euxmêmes difficiles à estimer (état hydrique des sols, végétaux en présence...) et très aléatoires sur la surface étudiée (développement et type de sols notamment). Ainsi, le bilan présenté fait état de périodes à recharge nulle. Or, les observations des niveaux piézométriques dans les forages non exploités présents sur le site montrent des impacts évidents des événements pluvieux estivaux sur la recharge du système aquifère. En effet, les niveaux de nappes varient positivement en réponse à chaque épisode pluvieux de forte intensité. Ce phénomène sera détaillé dans le chapitre 4. De plus, dans un contexte d'aquifères de socle, qui plus est avec la roche fissurée parfois à l'affleurement, une infiltration très rapide *via* des fissures ouvertes est envisageable avant même que le phénomène d'évapotranspiration n'intervienne. D'autre part, la période de mesure n'étant que de trois années, il est difficile d'évaluer la représentativité de ces données sur une échelle de temps plus large.

Enfin, les précipitations efficaces ne représentent pas seulement la lame d'eau participant à la recharge de l'aquifère, mais simplement celle qui ne repart pas dans l'atmosphère. Ainsi, le volume de précipitation efficace calculé est disponible à la fois pour l'infiltration mais également pour le ruissellement. Trois termes peuvent être définis : le ruissellement (ou écoulement de surface), l'écoulement hypodermique (ou de subsurface) et les écoulements souterrains. Ces trois phénomènes sont illustrés de façon schématique sur la Figure II-7 et sont détaillés dans le paragraphe suivant.

1.2.4.2. <u>Devenir des précipitations efficaces</u>

Les écoulements hypodermiques (ou de subsurface) et souterrains sont précédés d'une phase d'infiltration de l'eau dans le sol. L'infiltration qualifie le transfert de l'eau à travers les couches superficielles du sol, lorsque celui-ci reçoit une averse. L'eau d'infiltration remplit en premier lieu les interstices du sol en surface et pénètre par la suite dans le sol sous l'action de la gravité et des forces de succion. Le taux d'infiltration dépend principalement de la perméabilité du sol et de sa capacité d'infiltration (elle-même fonction de la texture et de la structure du sol et de la teneur en eau initiale du profil). On définit également la percolation, terme désignant l'écoulement vertical de l'eau dans le sol (milieu non saturé) en direction de la nappe souterraine, sous la seule influence de la gravité. Ce processus suit l'infiltration et conditionne directement l'alimentation en eau des aquifères (Musy et Higy ; 2004).



Figure II-7. Devenir des précipitations efficaces (adapté de Chow *et al.*, 1988 ; ZNS : Zone Non Saturée, ZS : Zone Saturée)

Le ruissellement est constitué par la frange d'eau qui, après une averse, s'écoule plus ou moins librement à la surface des sols. L'importance de l'écoulement superficiel dépend de l'intensité des précipitations et de leur capacité à saturer rapidement les premiers centimètres du sol, avant que l'infiltration et la percolation, phénomènes plus lents, soient prépondérants (Réméniéras, 1986).

L'écoulement hypodermique comprend la contribution des horizons de surface partiellement ou totalement saturés en eau. Une partie des précipitations infiltrées chemine quasi horizontalement dans les couches supérieures du sol pour réapparaître à la surface du sol à un niveau inférieur à celui de son point d'infiltration (Réméniéras, 1986). L'importance de la fraction du débit total qui emprunte la voie subsuperficielle dépend essentiellement de la structure du sol. La présence d'une couche relativement imperméable à faible profondeur favorise ce type d'écoulement. Les caractéristiques du sol déterminent l'importance de l'écoulement hypodermique (Musy et Higy ; 2004).

Lorsque la zone d'aération du sol contient une humidité suffisante pour permettre la percolation profonde de l'eau, une fraction des précipitations atteint la nappe d'eau souterraine. L'importance de cet apport dépend de la structure et de la géologie du sous-sol ainsi que du volume d'eau précipité. Du fait de leurs faibles vitesses, les écoulements souterrains, ils n'interviennent que pour une faible part dans l'écoulement de crue. De plus, ils ne peuvent pas être toujours reliés au même événement pluvieux que l'écoulement de surface et proviennent généralement des pluies antécédentes. L'écoulement de base assure en générale le débit des rivières en l'absence de précipitations et soutient les débits d'étiage (Musy et Higy ; 2004).

Les écoulements hypodermiques ont des capacités de vidange plus lente que le ruissellement mais beaucoup plus rapide que les écoulements souterrains. Le temps de transit de l'eau souterraine dans l'aquifère du massif de l'Ursuya sera développé dans le Chapitre 3. Mais ce phénomène est d'ores et déjà illustré dans le paragraphe suivant.

Des coefficients d'infiltration et de ruissellement peuvent être calculés. Ils sont fonction notamment de la pente du bassin versant, de la couverture végétale, de la nature du substratum, de la présence ou non de sol, autant de paramètres une nouvelle fois particulièrement difficiles à évaluer, notamment à une grande échelle géographique. En effet, cette échelle géographique (50 km² pour le massif de l'Ursuya) entraine également un biais dans le bilan présenté ici du fait de la variabilité importante des contextes rencontrés sur l'ensemble du système étudié. Ainsi, les variations d'altitude, de relief, de végétation, d'occupation du sol, de recouvrement de surface et de formation géologique sont autant de paramètres qui génèrent des différences dans les paramètres d'entrée du bilan (paramètres climatiques) comme dans les paramètres de calculs (RFU, coefficients d'infiltration...).

Afin de contrôler les gammes de précipitations efficaces calculées, d'évaluer l'impact de la variabilité géographique des différents paramètres pris en compte, ainsi que la participation des différents modes d'écoulements décrits ci-dessus, nous avons établi des bilans hydrologique annuels pour les bassins versants dont nous connaissons les débits écoulés.

1.3. Bilan hydrologique

A partir des données de précipitations efficaces annuelles, des débits et des surfaces des bassins versants, il est possible d'établir un bilan hydrologique annuel. Pour chacun des bassins versants contrôlés, le bilan est établi en comparant le débit annuel mesuré au débit théorique calculé en fonction des aires d'alimentation des bassins versants.

Les hauteurs d'eau de huit ruisseaux ont été enregistrées au pas de temps horaire entre août 2009 et juin 2012 (chapitre 1). Les courbes de tarages présentées en annexe A permettent de relier ces hauteurs d'eau aux volumes écoulés. La précision de la courbe de tarage établie pour le cours d'eau Etchéandia n'étant pas acceptable, il n'a pas été possible d'établir la relation hauteur d'eau-débit pour ce ruisseau. En effet, ce cours d'eau fait l'objet d'une canalisation sous la route départementale 252 en aval de la station limnimétrique. Cette conduite est régulièrement obstruée par des embâcles, ce qui modifie le régime naturel du cours d'eau, rendant impossible la réalisation d'une courbe de tarage acceptable. En revanche, les 7 autres stations de mesures sont bien maîtrisées, et la réalisation du bilan hydrologique annuel est possible sur ces ruisseaux. Les volumes soustraits par l'exploitation des eaux de sources sont connus et ont également été intégrés à ce bilan. Les résultats des bilans effectués sur ces cours d'eau sont présentés dans le Tableau II-4.

Tableau II-4. Bilan hydrologique annuel pour les 7 cours d'eau contrôlés (Surf. BV : surface du bassin versant ; Qt : débit annuel théorique ; Qm : débit annuel mesuré ; Occ. sol : occupation du sol ; Alt : altérites ; Trans : transition, Fiss : roche fissurée)

Station	Surf. B.V. (km ²)	Pente moyenne (m km ⁻¹)	$ \begin{array}{c} Qt\\ (m^3 an^{-1}) \end{array} $	$ \begin{array}{c} Qm \\ (m^3 an^{-1}) \end{array} $	Bilan (% du Qm)	Occ. sol	Lithologie de surface
Urrutia	0,6	155	287000	659124	-56	Prairies	Alt./trans.
Urcuray	3,1	101	1599000	5436378	-70	Forets/ pâturages	Trans./fiss.
Basseboure	1,1	108	563750	451740	25	Forets/ pâturages	Alt.
Heyderrea	2,9	81	1486250	1370138	8	Forets/ pâturages	Alt./trans.
Lattiaénéa	1,1	100	563750	458608	23	Forets/ prairies	Alt./trans.
Louhossoa	1,7	101	871250	491262	77	Prairies/ ville	Alt./trans.
Costaitsia	1,9	109	984000	1016958	-3	Culture/ foret	Alt./trans.

Les volumes théoriques présentés dans ce bilan correspondent au produit de la hauteur de précipitation efficace annuelle (RFU : 100 mm ; Tableau II-3) par la surface du bassin versant considéré (Tableau II-4). Le bilan correspond à la différence entre les débits théoriques et les débits mesurés. Ils sont donnés ici en pourcentage du débit mesuré.

Les cours d'eau Basseboure et Lattiaénéa présentent des bilans positifs de 25 % et 23 % respectivement. C'est-à-dire que les débits théoriques sont supérieurs de l'ordre de 20 % aux débits mesurés. Les bassins versants de ces ruisseaux ont des caractéristiques très similaires (même superficie, pente moyenne, occupation du sol et lithologie de surface très proches ; Tableau II-4). Les 20 % de débits théoriques supplémentaires peuvent correspondre à l'incertitude sur l'évaluation des précipitations efficaces (qui seraient alors surévaluées) mais également à la fraction de l'eau qui peut percoler pour atteindre la nappe d'eau souterraine. L'extension géographique des bassins versants hydrologique et hydrogéologique pouvant être différente, il est probable que les volumes infiltrés ne se retrouvent pas à ces exutoires.

Les cours d'eau Costaitsia et Heyderrea présentent des bilans inférieurs à 10 % (respectivement -3 % et 8 %). Compte tenu des incertitudes liées au calcul du bilan et à la mesure des débits des cours d'eau, ces bilans peuvent être considérés comme équilibrés. Ceci signifie que les précipitations efficaces calculées participent effectivement à l'alimentation du cours d'eau *via* les écoulements de surfaces et de subsurface. Cela signifie également que ces deux bassins versants présentent des coefficients d'infiltrations faibles et qu'ils participent peu à la recharge de l'aquifère.

Le bassin versant du cours d'eau Louhossoa est en grande partie urbanisé par la commune du même nom. L'évaporation à la surface de zones imperméables est plus importante, donc les pluies efficaces peuvent être surestimées. D'autre part, l'infiltration est impossible sur ces secteurs donc les écoulements hypodermiques sont nuls. Enfin, les influences anthropiques sur le ruissellement sont très importantes du fait de la canalisation du cours d'eau, de l'existence de bassins de rétention ou encore de récupérateurs d'eau de pluie. Il est donc normal d'obtenir un bilan déséquilibré avec des débits annuels théoriques plus importants que les débits mesurés sur ce bassin versant.

Enfin, les bilans des bassins versants des cours d'eau Urrutia et Urcuray sont largement déséquilibrés avec des valeurs de -56 % et -70 % respectivement. Cela signifie que les volumes mesurés sont largement supérieurs aux volumes théoriques. On peut donc supposer que la part des écoulements souterrains alimentant ces deux cours d'eau est majoritaire. Les apports souterrains viennent donc ici s'ajouter aux apports des écoulements de surface et de subsurface et donc déséquilibrer négativement le bilan annuel.

Ce bilan hydrogéologique, et les imprécisions qu'il comporte, ne constitue qu'une étape dans la démarche de compréhension du fonctionnement du système aquifère de l'Ursuya. Les résultats établies ici seront précisés dans le chapitre 4 grâce à la modélisation numérique hydrodynamique de l'aquifère.

2. CARACTERISATION ISOTOPIQUE ET PHYSICO-CHIMIQUE DES PRECIPITATIONS

Après avoir déterminé les caractéristiques des précipitations sur le massif de l'Ursuya d'un point de vue quantitatif, nous nous intéressons ici à l'aspect qualitatif des eaux permettant la recharge de l'aquifère étudié. Après quelques rappels sur la formation des eaux de pluie et sur les modes d'acquisition de leurs contenus isotopique et chimique, nous évaluerons la qualité du signal d'entrée de l'aquifère en précisant le rôle joué par les divers paramètres.

2.1. Formation des précipitations

La formation des précipitations est due à la condensation de la vapeur d'eau atmosphérique. La saturation en eau est un préalable indispensable à la condensation. La saturation des aérosols atmosphériques, et la condensation qui s'en suit, peut être provoquée par divers processus thermodynamiques dont les quatre principaux sont (Musy et Higy, 2004) :

- la saturation et la condensation par refroidissement isobare ;
- la saturation et la condensation par détente adiabatique ;
- la saturation et la condensation par apport de vapeur d'eau ;
- la saturation par mélange et par turbulence.

Si la saturation est indispensable à la condensation, elle n'est pas suffisante. Elle requiert en effet la présence de noyaux de condensation (appelés « Condensation Cloud Nuclei ») autour desquels les gouttes et les cristaux se forment (Triplet et Roche , 1986). Lorsque ces deux conditions sont réunies, la condensation intervient sur les noyaux.

Des gouttelettes microscopiques apparaissent alors et elles grossissent selon deux processus. Le premier mécanisme correspond à la collision entre les particules. Celui-ci à d'autant plus de chances de se produire que l'air est instable et soumis à un brassage comme dans le cas d'un cumulonimbus (Triplet et Roch, 1986). Le second processus pouvant permettre l'accroissement de la taille des gouttelettes fait intervenir le mécanisme de Bergeron. Il est lié à la coexistence fréquente au sein d'un nuage de cristaux de glace et de gouttelettes d'eau surfondue. A même température, la tension de vapeur saturante de l'eau surfondue est supérieure à celle de la glace et il y a alors évaporation des gouttelettes. La vapeur tendant à devenir sursaturante par rapport à la glace, il se produit un phénomène de condensation solide sur les cristaux qui grossissent aux dépens des gouttelettes (Bertrand, 2009).

2.2. Acquisition de la composition isotopique de l'eau de pluie

2.2.1. Fractionnement isotopique

Le fractionnement isotopique est le phénomène qui modifie la composition isotopique d'un élément dans un certain composé par son passage d'un état physique ou d'une composition chimique à un autre. Dans le cycle hydrologique, la variation de la composition isotopique dépend donc en premier lieu du fractionnement accompagnant les changements de phase et les processus de transports (IAEA, 2008), notamment le passage de la forme liquide à la forme vapeur lors de la formation des masses d'air et le passage de la forme vapeur à la forme liquide lors des épisodes pluvieux.

L'eau est un dipôle électrique, caractère lié à l'existence de liaisons hydrogènes dont la force dépend des isotopes engagés (Clark et Fritz, 1997). Une liaison avec un isotope léger (¹⁶O, ¹H) a une pression de vapeur plus faible qu'une liaison avec un isotope lourd (¹⁸O, ²H). Par conséquent, lors de l'évaporation, le passage de la phase liquide à la phase vapeur est favorisé pour les molécules à contenu isotopique léger. La phase vapeur est ainsi enrichie en isotopes légers. L'énergie nécessaire à la conversion endothermique d'eau en vapeur (2,44 kJ/g à 15°C) est fournie par les radiations solaires et la chaleur de l'atmosphère. Le processus est inverse lors d'une condensation, avec un enrichissement en isotopes lourds (Clark et Fritz, 1997; Bertrand, 2009).

Le fractionnement à l'équilibre entre phase liquide et phase vapeur est décrit par un coefficient de fractionnement α (Clark et Fritz, 1997) :

$$\alpha_{l-\nu} = R_l / R_{\nu} = (1000 + \delta_1) / (1000 + \delta_{\nu})$$
Équation 2

Les indices l et v font référence aux phases liquide et vapeur et R représente les rapports d'abondances définies comme suit :

$$R = \frac{{}^{18}O}{{}^{16}O} \text{ et } R = \frac{{}^{2}H}{{}^{1}H}$$
 Équation 3

et δ les deltas par rapport à un standard (VSMOW) définis par :

$$\delta = \left(\frac{R_{\acute{e}chantillon}}{R_{standart}} - 1\right) \times 1000$$

ét $\delta^{18}O_{vsmow} = 0 \%$ et $\delta D_{vsmow} = 0 \%$

L'enrichissement isotopique ε_{l-v} (en ‰) de la phase liquide par rapport à la phase vapeur est défini par :

$$\varepsilon_{l-\nu} = (\alpha_{l-\nu}) \times 1000$$
 Équation 5

Les fractionnements isotopiques à l'équilibre étant caractérisés par des valeurs très légèrement supérieures à l'unité, le terme $(\alpha_{l-\nu})$ tend vers des valeurs très faibles. On peut alors effectuer l'approximation suivante :

$$\alpha_{l-\nu} - 1 \cong \ln \alpha_{l-\nu}$$
 et $\varepsilon_{l-\nu} \cong 1000 \times \ln \alpha_{l-\nu} \cong \delta_l - \delta_{\nu}$ Équation 6

En 1964, Dansgaard établit une forte dépendance entre la température ambiante et les δ^{18} O des eaux de pluies dans l'hémisphère nord. Les enrichissements isotopiques à l'équilibre thermodynamique ont depuis été déterminés expérimentalement par Majoube (1971) :

$${}^{18}\text{O}/{}^{16}\text{O} : \ln \alpha_{l-\nu} = -\ln \alpha_{\nu-l} = 1,137 \times 10^3/T^2 - 0,4156/T - 2.0667 \times 10^{-3}$$
Équation 7
$${}^{2}\text{H}/{}^{1}\text{H} : \ln \alpha_{l-\nu} = -\ln \alpha_{\nu-l} = 24,844 \times 10^3/T^2 - 76,248/T + 56,612 \times 10^{-3}$$
Équation 8

Le fractionnement à l'équilibre décrit ci-dessus s'accompagne souvent d'un fractionnement dit cinétique. Un enrichissement cinétique à lieu si l'humidité est faible (Araguas-Araguas *et al.*, 2000). Ce fractionnement cinétique se produit au sein d'une couche intermédiaire entre la colonne d'eau et l'atmosphère. L'effet de ce fractionnement cinétique s'ajoute à celui du fractionnement à l'équilibre selon (l'indice cl représente la couche intermédiaire) :

$$\delta^{18}O_l - \delta^{18}O_v = \varepsilon^{18}O_{l-v} + \Delta\varepsilon^{18}O_{cl-v}$$
 Équation 9

La couche intermédiaire et l'eau sont alors enrichies en isotopes lourds. La dépendance à l'humidité (h) de ce fractionnement cinétique a été décrite par Gonfiantini (1996) selon :

$$\Delta \varepsilon^{18} O_{cl-v} = (\alpha^{18} O_{cl-v} - 1) \times 10^3 = 14,2 (1-h) \%_0$$

$$\Delta \varepsilon^2 H_{cl-v} = (\alpha^2 H_{cl-v} - 1) \times 10^3 = 12,5 (1-h) \%_0$$
Équation 11

2.2.2. Relation δ 180 – δ D et excès en deutérium

La condensation de la vapeur atmosphérique qui forme les nuages et les précipitations entraine des variations proportionnelles des rapports ¹⁸O/¹⁶O et ²H/¹H dans les phases liquide et vapeur. De ce fait, les δ^{18} O et δ D dans les eaux de pluies présentent une corrélation linéaire (Gonfiantini, 1996). Il a été démontré qu'à une échelle globale, la relation entre δ^{18} O et δ^{2} H pouvait être exprimée par la droite de régression suivante (Craig, 1961) :

$$\delta D = 8 \, \delta^{18} O + 10 \qquad \text{Équation 12}$$

Cette droite est appelée droite météorique mondiale (DMM). La différence de l'ordonnée à l'origine observée localement peut s'exprimer par l'excès en deutérium (d) définit par :

 $d = \delta^2 H - 8 \ \delta^{18} O$

Équation 13

L'excès en deutérium peut être très différent de 10 ‰. De même, la pente de l'Équation 12 peut être différente de 8 localement. Cette droite est en fait une moyenne de nombreuses droites météoriques locales (DML).

Chacune de ces droites de corrélations est contrôlée par divers facteurs climatiques locaux comme la température de l'air à la surface du sol, l'humidité de l'air, la vitesse du vent, l'origine et la trajectoire des masses d'air ou encore l'évaporation durant la chute des gouttes d'eau (Celle, 2000). De ce fait, la pente et l'ordonné à l'origine des DML peuvent varier d'un site à l'autre (Rozanski *et al.*, 1993 ; Gonfiantini, 1996) et dépendent des contextes climatiques et topographiques locaux (El-Asrag *et al.*, 2003).

Les processus pouvant influencer les compositions isotopiques des eaux de pluie et donc la pente des droites météoriques locales (DML) et les excès en deutérium correspondant sont décrits dans les paragraphes suivants.

2.2.3. Facteurs contrôlant la composition isotopique

2.2.3.1. <u>Effet de température</u>

La thermodépendance des processus d'échange isotopique ont été décrits dans le paragraphe 2.2.1. L'utilisation de modèles, notamment celui de Rayleigh (Gat et Carmi, 1970; Clark et Fritz, 1997; Celle-Jeanton *et al.*, 2004) permet de prédire les variations de composition isotopiques. La moyenne européenne de l'effet de température est estimée à 0,59 ‰ C⁻¹ pour δ^{18} O, entre 0 et 20 °C.

2.2.3.2. Effet de latitude

L'effet de latitude est lié à celui de la température. Il est en moyenne de $-0.6 \ \% \ \delta^{18}$ O par degré de latitude en Europe continentale et en Amérique du Nord, et de l'ordre de $-2 \ \% \ \delta^{18}$ O par degré de latitude pour les stations antarctiques (Clark et Fritz, 1997).

2.2.3.3. Effet de continentalité

Il a été démontré que l'effet de continentalité affectait les teneurs en isotopes stables des eaux des masses d'air traversant des terres émergées. La diminution progressive de l'humidité des masses d'air lors de leur déplacement dans les terres se traduit par un appauvrissement progressif des δ des eaux de pluie avec l'augmentation de la distance à l'océan (Rozanski *et al.*, 1993). A l'échelle européenne, le gradient est estimé à $-2 \% \delta^{18}$ O tous les 1000 km (Rozanski *et al.*, 1982).

2.2.3.4. Effet d'altitude

L'effet d'altitude traduit une accentuation de l'effet de continentalité au contact des reliefs. L'effet de température joue également un rôle important dans ce mécanisme. L'appauvrissement engendré par l'effet d'altitude varie entre -0,15 ‰ et -0,5 ‰ tous les 100 m d'altitude en δ^{18} O et entre -1 et -4 ‰ tous les 100 m pour δ^{2} H (Clark et Fritz, 1997).

2.2.3.5. Effet saisonnier

Sous les latitudes moyennes, les précipitations sont isotopiquement appauvries en hiver et enrichies en été par rapport à la moyenne observée sur l'année. Ces variations saisonnières peuvent s'expliquer par divers paramètres (Rozanski *et al.*, 1993 ; Araguas-Araguas *et al.*, 2000) : changement de température qui entraine un changement de la quantité d'eau susceptible de précipiter suivant la saison (en période chaude, l'humidité est faible et l'évaporation élevée à la base du nuage, donnant un δ élevé et un d faible à négatif) ; changement de l'origine des masses d'air ; modifications de l'humidité relative et de la température durant l'évaporation à la surface de l'océan, principale source de vapeur atmosphérique (Gonfiantini, 1996) ; variation des flux d'évapotranspiration, particulièrement en domaine continental (Gal, 2005).

L'ordonnée à l'origine des droites météoriques varie systématiquement entre des valeurs hautes en hiver et des valeurs faibles en été (Rozanski *et al.*, 1993). Ce phénomène est attribué à la corrélation existante entre l'excès en deutérium et le déficit d'humidité des masses d'aire océaniques. La valeur de l'ordonnée à l'origine de la DMM (10 ‰) correspond à une humidité relative moyenne de 81 % (Jouzel, 1986).

2.2.3.6. Effet de quantité

L'effet de quantité (également appelé effet de masse) est prépondérant dans les régions tropicales mais existe également en Europe, particulièrement au cours d'orages convectifs. Des diminutions de $-7 \ \infty \ \delta^{18}$ O ont ainsi été observées en une heure en Europe (IAEA, 2008). Lors de fortes averse, les stades successifs de condensation font appel à des parties de plus en plus hautes du nuage, donc plus froides. La température diminuant, les pluies sont graduellement appauvries (Gal, 2005).

2.3. Acquisition de la minéralisation de la pluie

2.3.1. Rainout/washout

La composition chimique de l'eau atmosphérique est acquise selon deux processus principaux décrits dans la littérature : le rainout et le washout (Celle, 2000 ; Chandra Mouli *et al.*, 2005 ; Pelicho *et al.*, 2006 ; Sicard, 2006 ; André *et al.*, 2007 ; Bertrand, 2009). Le rainout correspond à la condensation de la vapeur d'eau sur les particules aérosols durant la formation des gouttelettes au sein du nuage et à l'incorporation des gaz entourant les gouttelettes. Ce processus entraine majoritairement l'incorporation de composés issus d'un transport de longue distance. Le washout a lieu sous le nuage, pendant la chute des gouttes de pluie. Ces dernières interceptent et dissolvent les particules et les gaz au cours de leurs chutes (Celle-Jeanton *et al.*, 2009). On parle de collecte par inertie. Trois processus interviennent dans le washout. L'interception, qui n'a lieu que si la particule d'aérosol à un rayon fini ; l'impaction, qui ne se produit que si la particule est de masse suffisante ; l'accrétion, qui correspond à la collecte d'une gouttelette par une goutte plus grosse (Bertrand, 2009). L'efficacité de ces phénomènes augmente avec la masse et le volume de la particule. Le washout concerne des particules de taille supérieure à 2 µm et plutôt des éléments d'origine locale à régionale.

2.3.2. Origine des éléments dissous

L'acquisition de la composition en éléments dissous des eaux météoriques *via* les processus de rainout et washout dépend de la nature et de la quantité de composés disponibles dans l'atmosphère. Il convient donc, avant d'étudier la composition chimique de l'eau de pluie sur un site donné, de préciser les sources potentielles des gaz et particules susceptibles d'alimenter les aérosols. Trois sources principales sont généralement définies : marine, anthropique et terrigène (Loye-Pilot, 1995 ; Bertrand, 2009 ; Celle, 2000). La Figure II-8 résume ces différentes sources. Dans la définition de ces trois sources, nous ferons appel à la notion de fraction marine et de fraction non marine. En effet, parmi le cortège d'ions présents dans les eaux de pluie, un même élément peut avoir différentes origines. Il est alors possible de différencier la fraction d'origine marine de celle d'une origine différente selon une méthode décrite dans le paragraphe 2.4.4.1.



Figure II-8. Principales sources de composés chimiques dans l'atmosphère (d'après Celle, 2000)

2.3.2.1. Source terrigène

Il s'agit principalement des ions Ca^{2+} , HCO_3^- , Mg^{2+} non marins et K⁺ non marins et dans une moindre mesure Cl⁻ et SO_4^{2-} . L'origine des éléments terrigènes dans l'atmosphère résulte principalement d'un processus mécanique, par l'action du vent sur les surfaces continentales. Le calcium, le magnésium et les bicarbonates sont les principaux éléments terrigènes qui se retrouvent dissous dans la pluie. La mobilisation des terrains carbonatés (calcite : CaCO₃ ou dolomie : CaMg(CO₃)₂) est en effet fréquente. Les minéraux silicatés de la croûte terrestre sont peu mis en suspension dans l'atmosphère du fait de leur faible altérabilité (Bertrand, 2009). A l'échelle du globe, les principales zones productrices de poussières éoliennes sont les déserts. Des poussières du Sahara en particulier atteignent régulièrement l'Europe (lorsque les conditions météorologiques le permettent) et notamment le Sud de la France. Localement, l'émission d'éléments terrigènes peut être favorisée par certaines activités anthropiques (cimenteries, labour des terres agricoles...).

2.3.2.2. Source marine

Les ions Na⁺ sont d'origine marine, de même que la fraction marine des ions Cl⁻, Mg²⁺, K⁺, SO_4^{2-} et Ca²⁺. Les aérosols marins sont principalement sources de sodium et de chlorures, mais les ions magnésium, potassium, sulfates et calcium constitutifs des goutes d'eau de pluie sont également largement issus d'une origine marine. Sur les océans, la génération d'aérosols marins résulte du phénomène de bubling (pétillement) de l'eau de mer. Sous l'action du vent, la crête des vagues se brise entraînant dans l'eau des bulles d'air qui, en éclatant à la surface, projettent des microgouttelettes d'eau de mer. Ces dernières sont emportées par le vent puis desséchées, donnant des aérosols dont la composition chimique est voisine de celle du sel de mer (Bertrand, 2009).

2.3.2.3. Source anthropique

Les éléments anthropiques sont les SO_4^{2-} non marins, CI^- non marins, NO_3^- , NH_4^+ , H^+ . Une partie de la fraction non marine du calcium et du potassium peut également être d'origine anthropique mais la dominance de la source terrigène pour ces éléments permet de considérer la fraction anthropique comme négligeable (Celle, 2000). Les nitrates présents dans la troposphère dérivent majoritairement des oxydes d'azote principalement émis sous forme de monoxyde d'azote NO, lors de la combustion de carburants (source principale dans l'hémisphère nord) ou de la biomasse.

L'ammonium atmosphérique dérive principalement de la réaction entre $NH_{3(g)}$ (produit en grande majorité par l'agriculture) et les acides atmosphériques. Localement, des sites industriels de production ou d'utilisation d'ammonium sont également des sources de ce composé.

La production de sulfates est attribuée aux activités urbaines et/ou industrielles par la consommation d'énergies fossiles et divers process industriels. Le potassium et les chlorures peuvent résulter de la combustion de végétaux (Zunckel *et al.*, 2003) et/ou de déchets ménagers (Sanusi *et al.*, 1996 ; Celle, 2000 ; Bertrand, 2009).

2.4. Caractérisation du signal d'entrée des aquifères dans le Pays Basque Français : détermination des paramètres contrôlant la composition chimique et isotopique des eaux de recharge

Les paragraphes qui suivent on fait l'objet d'une publication soumise à la revue « Journal of Hydrology ». Le résumé est présenté ici et l'article est disponible dans son intégralité en annexe B.

Characterization of the input signal to aquifers in the French Basque Country : emphasis on parameters influencing the chemical and isotopic composition of recharge waters

J. Jaunat¹, H. Celle-Jeanton^{2,3,4}, F. Huneau¹, A. Dupuy¹, P. Le Coustumer¹

Abstract : A hydrochemical and isotopic survey of rainwater and groundwater has been carried out during almost two years on the Ursuya Mount in the northern Basque Country (southwestern France) with the aim of enhancing the understanding of the behaviour of this aquifer and more peculiarly the recharge mode of groundwater. The input signal of this aquifer is defined thanks to 112 rainwater samples. The computed meteoric water line $(\delta D = 7.3 \ \delta^{18}O + 5.1; r = 0.96)$ is consistent with that defined in the European IAEA/WMO network stations. The weighted mean deuterium excess about 9.7 ‰ is really close to the value obtained for Atlantic precipitations and clearly demonstrates an oceanic major origin. The computations conducted on the chemical dataset show that the rainwater composition is controlled by four major factors : 1) a mixed source of anthropogenic pollution and crustal material; 2) a marine source; 3) an urban source; 4) an acid source. Further, the quantification of neutralizing potentials clearly revealed below cloud processes in which crustal and anthropogenic components are responsible for the neutralization of anions. Besides the major Atlantic origin of the recharge water, the chemical and isotopic content of the samples coupled with the corresponding air mass back trajectories revealed four major geographical origins of the components : 1) northwestern part of Atlantic Ocean and 2) Southwestern part of Atlantic Ocean. The oceanic influence in airmasses from these origins is highlighted by the stable isotopic content (weighted mean close to the Atlantic Ocean signature) and by the chemical concentrations dominated by sea salt elements. 3) Northern Europe with a continental influence shown by a light depletion on isotopic signal besides purely oceanic origin and a higher concentration of crustal and anthropogenic components. 4) Southeastern area (Southeastern Europe, Northern Africa and Mediterranean Sea) with an isotopic signature consistent with the Mediterranean one and a chemical composition clearly influenced by the industrial activities of this region. The dataset is confronted with the chemical and isotopic characteristics of groundwater in order to assess the recharge water signature of the aquifer of the Ursuya Mount. This monitoring clearly shows a preferential winter/autumn recharge by actual and local precipitations. An altitudinal gradient about $-0.11 \ \text{\%} \ \delta^{18}$ O /100 m is defined and both water-rock interactions and physicochemical processes fingerprint on the groundwater composition are characterised.

Keywords : Rainwater, Groundwater, Major ions, Stable isotopes, Air masses back trajectories, France.

2.4.1. Contrôle des données

Comme précisé au chapitre 1, 125 échantillons d'eau de pluie ont été collectés entre février 2010 et décembre 2011, le système de prélèvement évitant le dépôt de particules sèches et permettant une collecte des précipitations pendant deux jours. Des analyses des ions majeurs et des isotopes stables de la molécule d'eau ont été conduits sur l'ensemble de ces échantillons.

Les analyses des ions majeurs ont été validées par le calcul de la balance ionique de chaque échantillon en admettant une balance inférieure ou égale à 10 %. En supplément, la corrélation linéaire entre les concentrations cationiques totales et les concentrations anioniques totales correspondantes de l'ensemble des échantillons a été vérifiée (Figure II-9). La pente de la droite de régression obtenue est très proche de l'unité (1,02), ce qui implique que l'ensemble des anions et cations participant pour majorité à la minéralisation de l'eau de pluie ont été analysés. De plus, le fort coefficient de corrélation (r = 0,84) confirme la qualité des mesures effectuées au cours de cette étude.



Figure II-9. Corrélation entre les concentrations cationiques et anioniques totales

2.4.2. Origine des masses d'air

2.4.2.1. Droite météorique locale

La teneur en isotopes stables des échantillons d'eau de pluie collectés varie entre $-0.04 \delta^{18}O \%$; 8,08 $\delta D \%$ (échantillon du 29 mai 2010) et $-14,38 \delta^{18}O \%$; $-97,91 \delta D \%$ (échantillon du 30 novembre 2010). Les moyennes mensuelles pondérées par les hauteurs de précipitations varient entre $-2,08 \pm 0,56 \%$ (juillet 2010) et $-9,57 \pm 2,94 \%$ (décembre 2010) pour $\delta^{18}O$ avec une moyenne pondérée globale de $-5,71 \pm 3,0 \%$. Pour δD , les moyennes pondérées mensuelles varient entre $-7,05 \pm 3,44 \%$ (juillet 2010) et $-61,46 \pm 13,58 \%$ (décembre 2010) avec une moyenne pondérée globale de $-35,31 \pm 22,8 \%$. Ces données sont parfaitement en accord avec celles de Petelet-Giraud *et al.* (2005), Jiráková *et al.* (2009), Millot *et al.* (2010) et Jiráková *et al.* (2011) pour le Sud-ouest de la France.

La signature isotopique le long de la côte atlantique est en effet relativement homogène avec des valeurs de δ^{18} O et δ D de l'ordre de -5 % et -30 % respectivement. Ces valeurs peuvent être attribuées à une contribution majeure de la vapeur d'eau de mer aux précipitations côtières (Gat *et al.*, 2003). La distance entre la côte atlantique et le site étudié étant d'environ 25 km, les valeurs de δ^{18} O et δ D observées sont concordantes avec la position géographique du massif de l'Ursuya et démontrent clairement une origine majoritairement atlantique de l'eau de pluie. La corrélation existant entre les valeurs de δ^{18} O et δ D selon la DMM (δ D = 8 δ^{18} O + 10 ; Craig, 1961) a été décrite dans le paragraphe 2.2.2., de même que les différences pouvant exister entre les DML locales. La droite de régression calculée à partir des valeurs isotopiques mesurées dans les eaux de pluies collectées sur le massif de l'Ursuya est (Figure II-10) :

 $\delta D = 7,3 \ \delta^{18}O + 5,1 \ (r = 0.96).$

Selon Rozanski *et al.* (1982), cette relation est cohérente avec celles observées par le réseau de stations européen IAEA/WMO.

L'excès en deutérium calculé ici est de $9,7 \pm 6,1$ ‰. Cette valeur est très proche de celle obtenue pour des précipitations d'origine atlantique (d = 10 ‰, Craig, 1961). La légère différence observée dans les eaux de pluies du massif de l'Ursuya peut être expliquée à la fois par un phénomène d'évaporation et par l'origine des masses d'air responsables des précipitations dans cette région. Ce dernier aspect va être développé dans le paragraphe suivant.



Figure II-10. Relation δ¹⁸O - δ²D dans les eaux de pluies prélevées entre février 2010 et décembre 2011 (n = 112) et droite de régression correspondante (Droite Météorique Locale) et Droite Météorique Mondiale

2.4.2.2. Quatre origines principales...

Le signal isotopique des eaux de pluie dépend fortement de l'origine et du trajet des masses d'air dont elles sont issues. Les retro-trajectoires des masses d'air ont été calculées pour chaque échantillon collecté en utilisant le modèle « NOAA/ARL Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory Version 4 » (HYSPLIT4 ; Draxler et Rolph 2012 ; Rolph 2012).

Les trajectoires ont été générées pour observer les trajectoires des masses d'air durant 72 h avant leur arrivée sur le site d'étude et l'épisode pluvieux mesuré. Durant ces 72 h, la position de la masse d'air est calculée toutes les six heures et à trois altitudes différentes (500 m, 1500 m et 3000 m NGF). En considérant les régions traversées durant les 72 h précédant la collecte, quatre principaux secteurs sont mis en évidence. Ces secteurs sont délimités sur la Figure II-11 sur laquelle les trajectoires typiques sont illustrées par des exemples issus de 4 épisodes pluvieux observés au cours de la période d'étude.


Figure II-11. Retro-trajectoires typiques des masses d'airs provenant des quatre secteurs définies (ANO : 28/02/2011 ; ASO : 21/12/2010 ; Europe du Nord : 28/04/2011 ; SE : 30/01/2011)

Les quatre secteurs définis sont les suivants :

<u>ANO (Atlantique Nord Ouest)</u> : ce secteur concerne les masses d'air provenant du nord-ouest de l'océan Atlantique et qui ne traversent pas de terre émergée avant d'atteindre la zone de prélèvement. La majorité des pluies proviennent de cette origine durant la période d'étude (37,5 % des échantillons collectés).

<u>ASO (Atlantique Sud Ouest)</u> : les masses d'air issues de ce secteur sont également originaires de l'océan Atlantique mais contrairement au précédent secteur, elles passent au-dessus de la péninsule Ibérique avant d'atteindre la zone de prélèvements. 35,7 % des échantillons (651 mm) ont été collectés sous ces conditions météorologiques.

<u>Europe du Nord</u> : ces masses d'air se déplacent au-dessus de l'Europe du Nord (France, Allemagne, Royaume-Uni et même la Suède et la Finlande), de la Mer du Nord et/ou de la Manche durant les 72 h précédant la collecte. Parmi l'ensemble des épisodes climatiques échantillonnés, 20,5 % sont issues de masses d'air provenant de ce secteur, soit une hauteur de précipitation de 391 mm.

<u>SE (Sud Est)</u> : cette trajectoire représente 5,9 % (114 mm) de la pluie totale pour la période considérée. Ces masses d'air proviennent du sud-est de la zone. Elles passent donc au-dessus de la mer Méditerranée, de l'est de l'Espagne et parfois de l'Afrique du Nord et du sud-est de l'Europe.

2.4.2.3. <u>...Quatre signatures isotopiques</u>

Les moyennes pondérées des teneurs en isotopes stables des eaux de pluie issues de ces différentes origines géographiques sont données dans le Tableau II-5. La Figure II-12 présente les relations $\delta^{18}O - \delta D$ et les lignes de régressions correspondantes dans les eaux de pluies issues des masses d'air provenant de ces quatre origines.

	ANO		ASO		Europe a	lu Nord	SE		Donné complè	es ètes
N	42 (37,	,5 %)	40 (35,7	%)	23 (20,5	%)	7 (6,25	%)	112 (10	00 %)
H (mm)	783 (40	0,4 %)	651 (33,6	5 %)	391 (20,2	2 %)	114 (5,9	9 %)	1939 (1	100 %)
	Moy.	Ecarts	Moy.	Ecarts	Moy.	Ecarts	Moy.	Ecarts	Moy.	Ecarts
	pond.	types	pond.	types	pond.	types	pond.	types	pond.	types
δ ¹⁸ Ο (‰)	-5,6	3,1	-5,7	3,1	-6,0	2,8	-5,5	2,7	-5,7	3,0
δD (‰)	-33,8	23,1	-36,7	24,8	-36,3	18,8	-34,7	21,4	-35,3	22,8

Tableau II-5. Nombres d'évènements pluvieux (N), hauteurs de précipitations (H) enregistrées, moyennes pondérées (Moy. pond.) et écarts types des teneurs en isotopes stables en fonction des trajectoires des masses d'air

<u>Atlantique Nord-ouest</u>: les moyennes pondérées des δ^{18} O et δ D dans les eaux de pluies issues de masses d'air originaires du nord-ouest de l'océan Atlantique sont respectivement de $-5,6 \pm 3,1 \%$ et $-33,8 \pm 23,1 \%$ (Tableau II-5). Ces valeurs peuvent être reliées à la signature isotopique des eaux de pluies originaires de l'océan Atlantique (Craig, 1961 ; Petelet-Giraud *et al.*, 2005). La relation δ^{18} O - δ D est typique des stations européennes (δ D = 7,2 δ^{18} O + 7,2 ; r = 0,98 ; Figure II-12).

<u>Atlantique Sud-ouest</u> : les moyennes pondérées des $\delta^{18}O$ et δD des eaux de pluies originaires du sud-ouest de l'océan Atlantique démontrent une influence atlantique avec des valeurs de $-5,7 \pm 3,1 \%$ et $-36,7 \pm 24,8 \%$ (Tableau II-5) respectivement. Le léger appauvrissement observé par rapport aux valeurs de l'origine précédente s'explique par l'effet de continentalité. En effet, les masses d'air provenant de ce secteur traversent la péninsule Ibérique avant d'atteindre la zone de prélèvement. La corrélation entre les valeurs de $\delta^{18}O$ et δD est proche de celle du secteur ANO (Figure II-12) $\delta D = 7,6 \delta^{18}O + 6,4$; r = 0,97) et est encore une fois caractéristique des stations européennes.

<u>Europe du Nord</u> : les moyennes pondérées de δ^{18} O et δ D observées dans les eaux de pluies provenant du nord de l'Europe sont respectivement de $-6,0 \pm 2,8 \%$ et $-36,3 \pm 18,8 \%$ (Tableau II-5). Ces valeurs présentent également un léger appauvrissement par rapport aux eaux de pluie du secteur ANO. Il a été démontré que l'effet de continentalité affectait les teneurs en isotopes stables des eaux des masses d'air traversant des terres émergées (paragraphe 2.2.3.3). Les masses d'air considérées ici traversent une partie de l'Europe du Nord, ce qui explique en partie l'appauvrissement observé. L'effet latitudinal (Rozanski *et al.*, 1993 ; paragraphe 2.2.3.2) joue également un rôle non négligeable dans cet appauvrissement. La droite météorique calculée pour ce secteur (Figure II-12) a pour équation $\delta D = 6,2 \delta^{18}O + 0,1$ (r = 0,94). La très faible ordonnée à l'origine de cette droite peut être expliquée par une prédominance de ce type de masses d'air en été. En effet, 70 % des épisodes pluvieux considérés ici ont lieux entre mai et juillet.

<u>Sud-est</u> : la moyenne pondérée de δ^{18} O dans les eaux de pluie issues des masses d'air provenant du sud-est de la zone d'étude est de $-5,5 \pm 2,7$ ‰ et de $-34,7 \pm 22,8$ ‰ pour δ D (Tableau II-5). Ces valeurs sont tout à fait comparables à celles obtenues par Celle (2000) et Celle-Jeanton *et al.* (2001) à la station d'Avignon (Sud-ouest de la France), clairement sous influence méditerranéenne. La droite météorique établie pour les eaux de ce secteur au cours de notre étude (Figure II-12) a pour équation $\delta D = 7,6 \delta^{18}O + 5,1$ (r = 0,95). Une nouvelle fois, cette relation et proche de celle observée à Avignon ($\delta D = 7,6 \delta^{18}O + 6,4$; Celle *et al.*, 2000). Malgré le faible nombre d'échantillons prélevés durant cette situation météorologique (7 épisodes pluvieux), les données mesurées indiquent clairement une contribution méditerranéenne pour ce secteur.



Figure II-12. Relation δ¹⁸O - δ²D des eaux de pluies prélevées en fonction de l'origine des masses d'air entre février 2010 et décembre 2011 et droite météorique correspondante (les intervalles de confiance à 95 % sont également indiqués)

2.4.3. Variations annuelles des compositions isotopiques

L'effet saisonnier décrit au paragraphe 2.2.3.5 est parfaitement observable sur la Figure II-13. Les eaux les plus appauvries en ¹⁸O et ²H sont précipitées aux mois d'octobre, novembre, décembre et janvier, alors que les précipitations entre les mois de juin et septembre sont les plus enrichies.



Figure II-13. Variation temporelle des δD et δ¹⁸O dans les eaux de pluies prélevées entre février 2010 et décembre 2011

2.4.4. Origine des éléments chimiques dans les eaux de recharge

L'origine principalement atlantique des eaux précipitées sur le massif de l'Ursuya, mise en évidence par leurs signatures isotopiques, peut être reliée avec leur contenu chimique afin de clarifier cette source océanique de vapeur d'eau. Cependant, il a été démontré que l'océan Atlantique n'est pas l'unique origine des masses d'air responsables des précipitations dans cette région du Pays Basque.

Les quatre différents secteurs d'origine et de trajectoires définis précédemment affectent non seulement la signature isotopique des eaux précipitées, mais également leurs contenus chimiques. Les moyennes pondérées et les écarts types des concentrations en ions majeurs mesurés dans les précipitations durant la période de prélèvement sont données dans le Tableau II-6. Les indices om et onm utilisés dans ce tableau et dans les paragraphes qui suivent correspondent respectivement aux fractions d'origine marine et d'origine non marine des éléments.

es	
ef-	
0	, Provide State
9	
8	
9	
,8	(
8	
1	
9	
3,4	
3	
5	2
7	
6	or Or
5	\$

Tableau II-6. Moyennes pondérées et écarts types des ions majeurs des eaux	de pluie prélevées en fonction	des secteurs d'origine des masses	d'air (om = origine marine, o	onm = origine
non marine)				

	ANO		ASO		Europe du Nord		SE		Données complètes	
	Moyenne	Coef-	Moyenne	Coef-var	Moyenne	Coef-var	Moyenne	Coef-	Moyenne	Coef-
	pondérée	var	pondérée		pondérée		pondérée	var	pondérée	var
$CE (\mu S \ cm^{-1})$	28,0	16,8	21,9	20,4	29,3	32,7	18,4	12,5	28,9	23,0
$HCO_3^{-}(\mu eq L^{-1})$	44,9	37,3	58,9	37,7	37,1	37,9	50,9	27,5	48,4	36,9
$NO_3^{-}(\mu eq \hat{L}^{-1})$	22,1	18,0	21,8	33,6	57,0	101,1	33,2	27,6	29,7	54,8
$PO_4^{3-}(\mu eq L^{-1})$	16,7	32,6	3,0	20,4	0,1	0,9	0	0	7,8	23,9
$C\Gamma mo (\mu eq L^{-1})$	129,1	116,8	91,4	61,7	87,0	122,1	54,4	53,4	121,8	101,8
$Cl^{-}onm (\mu eq L^{-1})$	15,0	40,9	4,7	31,4	0,1	0,7	10,6	19,1	9,8	31,8
$SO_4^{2-}om (\mu eq L^{-1})$	15,1	13,4	11,8	8,2	11,8	14,5	7,2	8,5	14,8	12,1
$SO_4^{2-}onm(\mu eq L^{-1})$	9,0	27,5	18,3	24,2	27,8	41,1	32,1	16,1	29,2	29,9
$Na^+(\mu eq L^{-1})$	140,1	116,6	114,5	67,9	97,6	120,2	59,4	70,5	118,2	103,4
NH_4^+ (µeq L^{-1})	25,6	20,4	17,0	21,5	54,1	100,6	31,6	38,3	28,8	53,3
$K^+ om(\mu eq L^{-1})$	2,9	2,4	2,4	1,4	2,0	2,5	1,2	1,5	2,8	2,2
$K^+ onm (\mu eq L^{-1})$	14,3	16,6	18,0	15,8	9,5	12,1	52,7	29,9	33,0	17,5
$Mg^{2+}om(\mu eq L^{-1})$	31,5	25,2	24,0	15,0	21,8	26,2	10,8	15,8	29,6	22,7
$Mg^{2+}onm (\mu eq L^{-1})$	13,4	9,3	13,6	24,7	15,3	16,6	3,2	6,1	17,1	17,6
$Ca^{2+}om(\mu eq \hat{L}^{-1})$	6,2	5,1	5,0	3,0	4,3	5,3	2,6	3,1	5,9	4,5
$Ca^{2+}onm(\mu eq L^{-1})$	54,1	51,0	88,8	26,3	60,1	55,1	53,3	28,3	92,2	46,5
$H^+(\mu eq L^{-1})$	1,4	2,2	0,7	4,9	4,5	5,1	0,1	0,1	1,7	4,0

Chapitre Caractérisa ition du signal d'entrée

2.4.4.1. Influences non marines

Afin de distinguer les contributions marines ou non marines dans la composition des eaux de pluie, les fractions d'origine marine (om) et d'origine non marine (onm) ont été calculées. Pour cela, nous avons considéré l'élément Na⁺ comme référence pour l'eau de mer (Kulshrestha *et al.*, 2003 ; Das *et al.*, 2005 ; Sakihama *et al.*, 2008 ; Salve *et al.*, 2008 ; Ladouche *et al.*, 2009 ; Gobre *et al.*, 2010 ; Satyanarayana *et al.*, 2010 ; Wang et Han, 2011...).

La fraction marine de chaque composé est calculée de la façon suivante :

$$X_{om} = (Na_{pluie}) \times (X/Na)_{eau \, de \, mer}$$

Équation 14

avec $(X/Na)_{eau \ de \ mer}$ le rapport entre la concentration de l'élément X et du Na⁺ dans l'eau de mer Tableau II-7 ; Michard, 1989). La fraction non marine du composé X est ensuite calculée :

$$X_{onm} = X_{pluie} - X_{om}$$
Équation 15

où X_{pluie} est la concentration de l'élément X dans l'eau de pluie. Quand $X_{onm} = 0$ alors $X_{om} = X_{pluie}$. Ce résultat signifie que le composé en question est d'origine exclusivement marine. L'inverse ($X_{onm} = 0$) n'est jamais observé car la contribution marine pour les éléments NO₃⁻, NO₂⁻, PO₄³⁻ et NH₄⁺ n'a pas été calculée. Ces composés sont en effet presque exclusivement d'origine anthropique et nullement d'origine marine (Huang *et al.*, 2010 ; Figure II-8). Les contributions marines et non marines moyennes des Cl⁻, SO₄², K⁺, Ca²⁺ et Mg²⁺ mesurées sur les eaux de pluies prélevées entre février 2010 et novembre 2011 sont données dans le Tableau II-7.

ableau II-7. Contribution des sources marines et non marines et facteurs d'enrichissements des ions majeurs d
aux de pluie prélevées vis-à-vis de l'eau de mer

	Cl^-	SO_4^{2-}	K^+	Ca^{2+}	Mg^{2+}
$(X/Na)_{eau\ de\ mer}\ (\mu eq\ L^{-1};\ Michard,\ 1989)$	1,167	0,121	0,021	0,044	0,227
Contribution non marine ($\mu eq L^{-1}$)	9,8	29,2	33,0	92,2	17,1
Contribution marine ($\mu eq L^{-1}$)	121,8	14,8	2,8	5,9	29,6
Contribution non marine (%)	6,3	49,1	82,5	90,1	33,5
Contribution marine (%)	93,7	50,9	17,5	9,9	66,5
Facteurs d'enrichissements	1,6	14,0	61,9	31,6	6,4

Le facteur d'enrichissement (FE) est également un moyen particulièrement utile pour identifier l'origine des éléments présents dans les eaux météoriques (entre autres : Keene *et al.*, 1986 ; Safai *et al.*, 2004 ; Zhang *et al.*, 2007). Il est calculé par rapport à l'eau de mer avec le sodium comme référence. Pour un élément de concentration X :

$$FE = \frac{X/Na_{pluie}}{X/Na_{eau\ de\ mer}}$$

Équation 16

Si FE est supérieur à 1, l'enrichissement indique l'existence de sources autres que marines, s'il est inferieur à 1, l'appauvrissement indique un rapport moindre dans l'échantillon que dans l'eau de mer et par conséquent une perte d'ions (Celle, 2000). Le Tableau II-7 résume également les valeurs de FE calculées pour les ions Cl⁻, SO₄², K⁺, Ca²⁺et Mg²⁺. Les valeurs d'enrichissement des ions SO_4^{2-} , K⁺ et Ca²⁺ sont très supérieure à 1. Cela implique que la source marine contribue très faiblement à l'apport de ces éléments dans les eaux précipitées. Les sulfates proviennent principalement de pollutions anthropiques. En effet, le contenu en sulfures dans les matériaux terrigènes est négligeable comparé aux concentrations dans les eaux de pluie (Taylor, 1964). Le potassium atmosphérique peut avoir pour origine à la fois de particules minérales terrigènes (Taylor, 1964) et de fines particules issues de feux de végétaux. Enfin, le calcium est associé à des sources terrigènes et anthropiques. Le magnésium a un FE de 6,4, ce qui correspond à une fraction non marine de 33,5 %. Les sources non marines de Mg²⁺ sont attribuées aux matériaux terrigènes ainsi qu'à la présence d'activités de constructions. Le FE des ions chlorures est très proche de 1 (1.6) avec une fraction marine de 93,7 %. Les 6,3 % de chlorures d'origine non marine peuvent être attribués à la combustion de végétaux et/ou de charbon (Lightowlers et Cape, 1988 ; Yamasoe et al., 2000; Huang et al., 2010).

2.4.4.2. Source des éléments

Afin de préciser les différentes sources des composés chimiques présents dans les précipitations étudiées, des Analyses en Composantes Principales ont été effectuées. Les ACP constituent un outil particulièrement utile pour identifier les sources des diverses espèces chimiques présentes dans les eaux de pluie (Hernandez *et al.*, 1996 ; Plaisance *et al.*, 1997 et plus récemment Bertrand *et al.*, 2008 ; Celle-Jeanton *et al.*, 2009 ; Huang *et al.*, 2010 ; Budhavant *et al.*, 2011 ; Tiwari *et al.*, 2011...). D'après Plaisance *et al.* (1997), les analyses statistiques multivariées permettent d'appréhender les relations entre les divers variables d'un jeu de données : les différentes sources des principaux éléments chimiques des eaux météoriques peuvent ainsi être distinguées. Le résultat l'ACP effectuée est présenté dans le Tableau II-8. Les quatre facteurs contribuant le plus permettent de représenter 76,7 % de la variance totale.

Le premier facteur permet d'expliquer 34,7 % de la variance totale avec une forte représentation des ions HCO_3^- , NO_2^- , PO_4^{3-} , NH_4^+ , K^+ , et Ca^{2+} . Ce facteur peut être considéré comme un pôle d'origine mixte entre une source de type pollution anthropique (engrais, feu de végétaux et de déchets ; Vasquez *et al.*, 2003) et une seconde de type terrigène (indiquée par les ions Ca^{2+} et HCO_3^- ; Huang *et al.*, 2010). L'incorporation d'éléments terrigènes peut être liée à des sources locales ou à un transport de poussières de longue distance. Le second facteur intervient pour 21,6 % de la variance totale. Les ions CI^- , Na^+ et Mg^{2+} mis en évidence au sein de ce pôle indiquent clairement une source marine et l'incorporation de sels d'embruns dans le nuage pendant sa formation et son déplacement (Celle-Jeanton *et al.*, 2009). Les ions les plus significatifs du troisième facteur (11,3 % de la variance totale) sont les sulfates et les nitrates. Ces ions sont typiques d'une origine urbaine. Ils proviennent principalement de la combustion de carburants et de rejets industriels.

Enfin, le dernier facteur (9,1 % de la variance totale) n'inclut qu'une variable : H^+ . Ce pôle est donc considéré comme la source acide (Plaisance *et al.*, 1997).

Elément	Facteur 1	Facteur 2	Facteur 3	Facteur 4
HCO -	0.804	0.102	0.011	0.000
HCO_3	0,890	0,105	0,011	0,009
$C\Gamma$	0,078	0,930	0,131	0,020
SO_4^{2-}	0,309	0,221	0,713	-0,124
NO_3^{-}	-0,116	0,153	0,825	0,152
NO_2^-	0,760	0,112	-0,041	0,251
PO_{4}^{3-}	0,842	0,137	-0,051	-0,086
Na^+	0,091	0,944	0,153	-0,010
NH_4^+	0,712	0,168	0,313	-0,293
K^+	0,710	0,281	0,094	-0,329
Mg^{2+}	0,468	0,767	-0,018	-0,041
Ca^{2+}	0,845	0,167	0,076	0,002
H^+	-0,036	0,014	0,061	0,885
Variance (%)	34,7	21,6	11,3	9,1

 Tableau II-8. Analyse en composante principale appliqué sur les concentrations en ions majeurs de l'ensemble des eaux de pluie prélevées (les valeurs les plus significatives sont en gras)

Finalement, la composition chimique des eaux de pluies de la région du massif de l'Ursuya est contrôlée par quatre sources principales. Malgré une influence remarquable de l'océan Atlantique, démontrée par la source marine, les influences terrigènes et anthropiques ont une importance non négligeable dans la composition chimique moyenne des eaux de pluie. L'acidité est le facteur le moins influant, la faible valeur observée pouvant s'expliquer par un phénomène de neutralisation au sein du nuage.

2.4.4.3. <u>Neutralisation de l'acidité</u>

Dans l'hémisphère nord, l'acidité de la pluie est contrôlée principalement par les acides forts $H_2SO_4^{2^-}$ et HNO_3^- (Overrein *et al.*, 1981). Les ions $SO_4^{2^-}$ et NO_3^- peuvent donc être considérés comme les composés les plus acidifiants de l'eau de pluie. De façon à évaluer leurs contributions respectives à l'acidité des pluies étudiées, le rapport (([NO_3^-]) / ([NO_3^-] + [$nssSO_4^{2^-}$]) peut être calculé. Ce calcul a été effectué sur l'ensemble des échantillons collectés et la moyenne et l'écart type des résultats obtenus sont présentés sur la Figure II-14. La valeur moyenne est de 0,58, ce qui signifie que 58 % de l'acidité de la pluie est due aux nitrates et 42 % aux sulfates. Ce résultats implique une influence plus importante des effets industriels que du trafique routier sur l'acidité de la pluie (Budhavant *et al.*, 2011).

La concentration en ions hydrogène, calculée à partir des mesures de pH, reflète l'acidité des précipitations après les processus de neutralisation par les bases atmosphériques (Galloway *et al.*, 1987). L'ampleur de la neutralisation peut-être déterminée par le calcul du facteur d'acidité (entre autres : Negrel et Roy, 1998 ; Balasubramanian *et al.*, 2001 ; Das *et al.*, 2005 ; Jawad Al Obaidy et Joshi, 2006 ; Kulshrestha *et al.*, 2008) : $FA = [H^+] / ([NO_3^-] + [nssO4^2^-]).$

Ce rapport sera proche de 1 si l'acidité engendrée par les ions $H_2SO_4^{2-}$ et HNO_3^- n'est pas neutralisée et il sera proche de 0 dans le cas d'une neutralisation intense. Une moyenne de 0,07 est observée ici (Figure II-14). Ce résultat signifie que, sur une base annuelle, 99,98 % de l'acidité est neutralisée. Ce résultat est parfaitement en accord avec la faible influence de la source acide observée dans le Tableau II-8.



Figure II-14. Ratio ($[NO_3^-]$) / ($[NO_3^-]$ + $[nssSO_4^{2^-}]$), acidité d'origine et mesurée, facteur d'acidité (FA), potentiel d'acidification (PA), potentiel de neutralisation (PN), ratio PA/PN et facteurs de neutralisation (FN) des différents cations dans les eaux de pluie entre février 2010 et décembre 2011 (n = 175)

Le rapport entre le potentiel acide (PA) et le potentiel de neutralisation (PN ; aussi appelé potentiel d'alcalinité) permet de déterminer les éléments impliqués dans le processus de neutralisation (Budhavant *et al.*, 2011). Le PA est la somme des concentrations en NO_3^- et SO_4^{2-} onm et PN est la somme des concentrations en NH_4^+ , Ca^{2+} onm, Mg^{2+} onm et K⁺onm (Tableau II-6). Les moyennes de PA, PN et PA/PN sont présentées sur la Figure II-14. Si le rapport PA/PN est inférieur à 1, cela signifie que le potentiel de neutralisation domine le potentiel d'acidité et plus le rapport est faible, plus la neutralisation est importante. La valeur moyenne du rapport PA/PN est de 0,37 (Figure II-14). Les constituants alcalins préviennent donc l'acidification des eaux de pluies étudiées. La forte neutralisation de l'acidité observée ici peut être expliquée par le transport de particules de poussières alcalines dans l'atmosphère qui ont un effet tampon sur l'eau de pluie (Arsene *et al.*, 2007).

Afin de préciser quels éléments sont impliqués dans le processus de neutralisation de l'acidité, le Facteur de Neutralisation (FN) a également été calculé. La neutralisation des eaux précipitées par les composés d'origines terrigène et anthropique peut être calculée individuellement par l'équation proposée par Possanzini *et al.* (1988) :

$$FN(X) = \frac{X}{\left(SO_4^2 - onm + NO_3^2\right)}$$
 Équation 17

avec X = concentrations en Ca²⁺onm, NH⁴⁺, Mg²⁺onm, et K⁺onm en μ eq L⁻¹.

Les moyennes des facteurs de neutralisation pour ces quatre éléments sont présentées sur la Figure II-14 ainsi que les écart-types observés. Les contributions des éléments Ca^{2+} onm, NH^{4+} , Mg^{2+} onm, et K⁺onm au processus de neutralisation sont respectivement de 38,1 %, 25,9 %, 20,4 % et 15,6%.

Il apparait donc clairement qu'il existe des processus à la base du nuage au sein desquels ces composés sont responsables de la neutralisation des anions (Gobre *et al.*, 2010; Satyanarayana *et al.*, 2010). Les ions Ca^{2+} onm et NH⁴⁺ sont ceux dont la participation est la plus importante dans ce mécanisme de neutralisation de l'acidité.

2.4.5. Origine géographique des éléments

Afin de déterminer l'influence des régions traversées par les masses d'air sur la chimie des eaux de pluies prélevées sur le massif de l'Ursuya, les concentrations en ions majeurs des échantillons prélevés ont été étudié en fonction de l'origine des masses d'air.

Les concentrations moyennes des ions majeurs pondérées par les hauteurs de pluie au cours des trajectoires des masses d'air principales (paragraphe 2.4.2.2) sont présentées dans le Tableau II-6. Les origines marines et non marines des éléments pour chaque secteur d'origine et de transport des masses d'air ont été calculées de la même façon que celle décrite dans le paragraphe 2.4.4.1.

2.4.5.1. <u>Atlantique Nord-ouest</u>

La composition chimique des eaux de pluies provenant du nord-ouest de l'Atlantique est dominée par les ions Na⁺ (140,1 μ eq L⁻¹) et Cl⁻om (129,1 μ eq L⁻¹; Tableau II-6). Cela démontre une nouvelle fois l'origine clairement marine des masses d'air provenant de ce secteur. Cependant, les composés terrigènes influencent fortement la composition chimique des eaux de pluies issues de ces masses d'air. La moyenne pondérée des concentrations en HCO₃⁻ est de 44,9 μ eq L⁻¹ et celle des concentrations en Ca²⁺onm est de 54,1 μ eq L⁻¹. Cette observation peut être reliée à l'étude de Rahn *et al.* (1982), qui montre que des masses d'air ayant circulé longtemps au dessus de l'océan peuvent contenir des proportions importantes de particules terrigènes et anthropiques du fait de leur long temps de résidence dans l'atmosphère. De fortes concentrations en calcium dans des eaux de pluie d'origine atlantique ont également été observées par Beysens et. al, (2006) et Bertrand *et al.* (2008). Dans ce cas, les concentrations en Ca²⁺ élevées sont également attribuées à la présence de particules de matériaux terrigènes et d'origine agricole dans l'atmosphère.

2.4.5.2. <u>Atlantique Sud-ouest</u>

La composition chimique des eaux de pluies issues du sud-ouest de l'océan Atlantique est logiquement proche de celle observée pour les origines ANO. Cependant, une légère influence du passage des masses d'air au-dessus de la péninsule Ibérique est à noter. Les influences marines sont donc fortement marquées par les concentrations en Cl⁻om et Na⁺ (91,4 μ eq L⁻¹ et 114,5 μ eq L⁻¹ respectivement).

Néanmoins, la traversée du Portugal et de l'Espagne entraine des concentrations en composés terrigènes non négligeables, notamment bicarbonates (58,9 μ eq L⁻¹) et Ca²⁺onm (88,8 μ eq L⁻¹). Les concentrations en composés anthropiques (NO₃⁻⁷, SO₄²⁻ et K⁺onm en particulier) semblent également être influencées par le passage des masses d'air sur le Sudouest de l'Europe (Tableau II-6). Toutefois, pour le secteur ANO comme pour le secteur ASO, cette dernière source de composé reste la plus faible en terme de concentrations dans les eaux de pluie. Des résultats comparables pour ces deux secteurs ont été observés par Santos *et al.* en 2011.

2.4.5.3. Europe du Nord

Les précipitations issues des masses d'air provenant du nord de l'Europe présentent des compositions chimiques très différentes des deux secteurs précédents. Les ions Cl⁻om et Na⁺ d'origine marine sont toujours dominants mais avec des concentrations plus faibles (87.0 µeq L^{-1} et 97.6 µeq L^{-1} respectivement ; Tableau II-6). La différence la plus flagrante avec les secteurs ANO et ASO se trouve dans la proportion de composés anthropiques. En effet, les concentrations en NO₃⁻ (57,0 μ eg L⁻¹), NH₄⁺ (54,1 μ eg L⁻¹) et SO₄²⁻onm (27,8 μ eg L⁻¹) sont dans la même gamme de valeur que celle des composés d'origine terrigènes $(\text{HCO}_{3}^{-}=37,1 \ \mu\text{eq} \ \text{L}^{-1} \ \text{et} \ \text{Ca}^{2+} \text{onm} = 60,1 \ \mu\text{eq} \ \text{L}^{-1})$. En 1997, Plaisance *et al.* montrent l'existence de sources importantes de NO₂ et de SO₂ dans des zones industrialisées et urbaines d'Europe du Nord et d'Europe Centrale, mettant en évidence l'impact de ces émissions sur la chimie des précipitations. En 2008, Bertrand et al. et Celle-Jeanton et al. en 2009 observent les mêmes influences terrigènes et anthropiques sur la composition d'eaux de pluie provenant du même secteur. Par ailleurs, les concentrations moyennes mesurées en Ca²⁺onm dans les pluies issues de masses d'air provenant d'Europe du Nord sont les plus importantes observées (Tableau II-6) en comparaison avec les quatre secteurs définis. Cela peut-être attribué à la mise en suspension de poussières riches en calcium dans l'atmosphère. Une telle influence a été observée par Sanusi et al., en 1996, dans le Nord de la France. Le rôle de lœss facilement mobilisable dans le bassin alsacien avait notamment été mis en évidence.

2.4.5.4. <u>Sud-est</u>

Les précipitations issues des masses d'air provenant du sud-est du secteur étudié ne montrent pas de prédominance d'une source d'élément en particulier : les concentrations en HCO_3^- , Ca^{2+} onm, Cl^- om, Na^+ , K^+ onm sont comprises entre 50 µeq L^{-1} et 60 µeq L^{-1} et les concentrations en NO_3^- , SO_4^{2-} onm et NH_4^+ sont autour de 30 µeq L^{-1} (Tableau II-6). Les concentrations en ions calcium et bicarbonates peuvent être attribuées à la dissolution des poussières carbonatées provenant du Sahara (Loÿe-Pilot et Morelli, 1988 ; Avila *et al.*, 1997 ; Plaisance *et al.*, 1997 ; Bertrand *et al.*, 2008 ; Celle-Jeanton *et al.*, 2009). Les précipitations de ce secteur présentent les concentrations en composés anthropiques les plus importantes vis-àvis des trois autres origines. La présence de zones industrielles dans le Sud de la France (région marseillaise particulièrement) et au niveau de la péninsule Italienne peut expliquer la présence de ces composés d'origine anthropiques dans les eaux de pluie provenant de ce secteur (Celle-Jeanton *et al.*, 2009).

2.5. Bilan sur la composition isotopique et chimique des précipitations

La composition isotopique et chimique des précipitations n'avaient jusqu'alors jamais été caractérisée dans cette région du Pays Basque. Les eaux de pluies collectées durant deux cycles hydrologiques permettent de clarifier les caractéristiques du signal d'entrée de l'aquifère étudié.

Les eaux précipitées sur le massif de l'Ursuya présentent une origine majoritairement atlantique mais elles peuvent également être liées aux circulations des masses d'air sur la péninsule Ibérique, l'Europe du Nord ainsi que la région méditerranéenne. Ces résultats montrent également la forte influence des activités anthropiques sur la qualité de l'eau de pluie. En effet, malgré une faible acidité due à d'intenses processus de neutralisation, les concentrations en nitrates, sulfates et ammonium peuvent s'avérer importantes notamment dans les pluies issues de masses d'air provenant de régions fortement industrialisées.

Cette définition des caractéristiques isotopiques et chimiques du signal d'entrée de l'aquifère de l'Ursuya sera particulièrement utile afin d'évaluer les apports atmosphériques au milieu souterrain. Cet aspect sera développé dans le chapitre suivant. En plus de l'information apportée sur ce site, ces résultats présentent un intérêt majeur dans la connaissance des caractéristiques des eaux de recharge sur l'ensemble de la partie nord du Pays Basque. Cette définition du signal d'entrée sera particulièrement utile pour la compréhension des phénomènes isotopiques et chimiques sur l'ensemble des aquifères du nord-ouest des Pyrénées.

Chapitre III. Caractérisation physico-chimique des eaux souterraines et détermination des temps de séjour

Après avoir caractérisé le signal d'entrée de manière quantitative et qualitative, le présent chapitre s'intéresse aux caractéristiques physico-chimiques des eaux souterraines de l'aquifère de l'Ursuya. Les données précédentes seront donc confrontées à celles observées dans les eaux souterraines, l'objectif étant de les valider mais également de comprendre comment s'acquiert la minéralisation de ces eaux.

La comparaison du signal isotopique des précipitations du Pays Basque avec celui des eaux souterraines de l'Ursuya permettra tout d'abord de mettre en évidence certains aspects du mode de recharge et de circulation de ce système aquifère.

Dans un second temps, les données physico-chimiques et de temps de séjour analysés au cours de cette étude seront présentées non sans avoir rappelé les principes de la datation des eaux souterraines par les traceurs atmosphériques. Les principaux aspects liés à la géochimie des eaux souterraines en milieux cristallins seront également succinctement abordés.

Enfin, l'ensemble de ces résultats seront discutés afin d'aboutir à une compréhension précise des modalités d'écoulement au sein de l'aquifère. Un modèle conceptuel des écoulements souterrains du massif de l'Ursuya sera finalement proposé.

1. APPORTS DES ISOTOPES STABLES : PRECISIONS SUR LES MODES DE RECHARGE

Le signal isotopique des eaux de recharge, présenté dans le chapitre précédent, constitue le premier paramètre déterminant le signal isotopique des eaux souterraines sur le massif de l'Ursuya. La comparaison des teneurs en isotopes stables dans les eaux souterraines avec celles du signal d'entrée permettra d'une part de valider les résultats présentés précédemment et d'autre part de préciser les caractéristiques des écoulements souterrains étudiés. Les teneurs moyennes en isotopes stables et les excès en deutérium mesurés dans les eaux prélevées au niveau des sources et forages (chapitre 1) sont disponibles dans le Tableau III-1.

Tableau III-1. Teneurs moyennes en isotopes stables des eaux souterraines du massif de l'Ursuya (N = nombre de mesures effectuées au cours des deux années de suivi ; localisation des points de mesure : Figure I-22)

Tune	Nom	N	$\delta^2 H$ (‰)		$\delta^{18}O$ (‰)		Excès en deutérium (‰)	
Туре	nom	IN	Moyenne	Ecart type	Moyenne	Ecart type	Moyenne	Ecart type
	AR1	19	-36,83	0,62	-6,28	0,11	13,54	0,81
	C3	18	-37,83	0,86	-6,53	0,17	14,43	1,07
	H20	17	-37,40	0,82	-6,49	0,20	14,55	1,25
	H2	17	-37,42	0,66	-6,42	0,15	13,92	1,11
	Ip6	19	-36,66	0,67	-6,19	0,14	12,87	0,94
	La10c	18	-37,05	0,95	-6,45	0,13	14,56	0,74
C	La16l	18	-35,44	0,55	-6,07	0,10	13,46	0,74
Sources	La71	19	-34,71	0,74	-5,92	0,18	12,66	1,14
	Mac	19	-37,96	1,07	-6,59	0,16	14,76	0,88
	Esp	15	-36,86	0,72	-6,33	0,15	13,77	0,91
	Pe18	20	-36,12	0,51	-6,23	0,11	13,74	0,99
	Sc2	18	-38,37	0,99	-6,52	0,25	13,80	1,67
	Sc4	16	-36,31	1,32	-6,18	0,17	13,15	0,93
	Se3	16	-37,44	0,71	-6,21	0,17	12,25	1,26
	Ip2	11	-36,52	0,51	-6,32	0,16	14,08	1,17
F	Osp9	8	-36,54	0,62	-6,21	0,13	13,17	0,91
Forages	Pe4	9	-36,49	0,45	-6,21	0,16	13,18	1,10
	Pe5	9	-35,95	0,59	-6,20	0,21	13,65	1,40

1.1. Une recharge actuelle et locale

Les moyennes des δ^{18} O mesurées dans les eaux souterraines (Tableau III-1) varient entre $-5,92 \pm 0,18$ ‰ (source La7l) et $-6,59 \pm 0,16$ ‰ (source Mac). Pour le deutérium, la valeur moyenne maximum est observée dans l'eau de la source La7l avec une valeur de $-34,71 \pm 0,74$ ‰ et le minimum est de $-38,37 \pm 0,99$ ‰ pour la source Sc2 (Tableau III-1). Les variations temporelles sont extrêmement faibles pour l'ensemble des eaux suivies. Aucune variation saisonnière n'est observée, ni même de réponse à des événements climatiques particuliers. La stabilité du signal isotopique est parfaitement démontrée par les valeurs particulièrement faibles des écarts types présentés dans le Tableau III-1. L'écart type maximum est en effet de 0,25 ‰ pour δ^{18} O (source Sc2) et de 1,32 ‰ pour δ D (source Sc4). Cette signature constante est le signe d'un réservoir bien mélangé dont les teneurs en isotopes stables ne sont pas modifiées par des épisodes pluvieux individuels (Abbott *et al.*, 2000).

Les faibles variations temporelles observées sont le résultat des caractéristiques propres à l'aquifère, qui entrainent une homogénéité relative dans le temps du signal isotopique et une absence d'influence par les variations saisonnières des conditions de recharge (Mandal *et al.*, 2011). Cette homogénéité temporelle de la signature isotopique des eaux souterraines peut être le signe d'un temps de résidence relativement élevé de l'eau au sein de l'aquifère. En effet, les fortes variations saisonnières des teneurs en isotopes stables observées dans les eaux précipitées sont lissées dans les eaux de sources et de forages. Ceci est caractéristique d'un mélange des eaux de recharge avec un volume important d'eau souterraine stocké depuis plusieurs années (Viville *et al.*, 2006). La réserve dynamique de l'aquifère de l'Ursuya est important et permet un amortissement complet des signaux isotopiques par un mélange rapide et important des eaux de recharge avec celles en réserve.

La relation entre δ^{18} O et δ D dans les eaux souterraines est observable sur la Figure III-1. Les valeurs individuelles dans les eaux souterraines sont très proches les unes des autres, confirmant une nouvelle fois l'homogénéité du signal isotopique au sein des eaux de l'aquifère de l'Ursuya. En outre, ces points individuels, de même que la valeur moyenne, sont très proches de la DMM et de la DML. Autrement dit, la signature isotopique du signal d'entrée présentée dans le chapitre 2 correspond bien à celle des eaux souterraines. L'aquifère de l'Ursuya est donc bien rechargé par des eaux météoriques locales et actuelles (Prasanna *et al.*, 2010) et les eaux souterraines ne subissent de modifications isotopiques ni durant la recharge ni au cours de leur transit dans le sous-sol (Abott *et al.*, 2000).



Figure III-1. Relation δ^{18} O vs δ D dans les eaux souterraines et dans les eaux de pluies (échantillons individuels et moyennes)

1.2. Une recharge préférentiellement automnale et hivernale

La moyenne globale des teneurs en isotopes stables mesurées dans les eaux souterraines est de $-36,8 \pm 0,61$ ‰ pour δD et de $-6,3 \pm 0,14$ ‰ pour $\delta^{18}O$. Cette signature isotopique est légèrement appauvrie par rapport à la moyenne pondérée obtenue pour les eaux de pluie $(\delta D = -35,31 \% \text{ et } \delta^{18}O = -5,71 \%$; chapitre 2). Cet appauvrissement est également visible sur la Figure III-1. Les variations temporelles du contenu en isotopes stables des précipitations ont clairement démontré que les eaux météoriques sont appauvries en hiver et en automne comparativement aux valeurs observées en été et au printemps. De plus, le suivi météorologique effectué au cœur du massif et présenté au sein du chapitre 2, a mis en évidence une infiltration majoritaire entre octobre et mars (457 mm en moyenne sur les trois années de mesure) et faible entre avril et septembre (167 mm en moyenne). Ainsi, les valeurs légèrement appauvries pour les eaux souterraines s'expliquent par cette part de la recharge plus importante en automne/hiver, avec des teneurs isotopiques plus faible dans les pluies (Katz *et al.*, 1995 ; Viville *et al.*, 2006 ; Mandall *et al.*, 2011).

D'autre part, il a été démontré que l'excès en deutérium dans les eaux de pluie est plus important en hiver qu'en été (Rozanski *et al.*, 1993 ; chapitre 2) du fait du déficit d'humidité des masses d'airs océaniques à cette période de l'année. Une recharge hivernale et automnale explique donc l'excès en deutérium légèrement supérieur à 10 (13,64 en moyenne) ainsi que la position des points représentants les valeurs individuelles et la moyenne des teneurs isotopiques des eaux souterraines au dessus de la DML.

1.3. Gradient altitudinal

De même que les variations temporelles, les variations spatiales du contenu en isotopes stables des eaux prélevées sont faibles. Néanmoins, malgré cette faible variabilité, une corrélation a pu être mise en évidence entre les teneurs en ¹⁸O et ²H dans les eaux souterraines et l'altitude d'émergence des sources prélevées. La Figure III-2 permet d'observer cette relation : les émergences les plus élevées présentent un contenu appauvrie en δ^{18} O et δ D comparé à celles situées à des altitudes plus faibles. Cette relation se traduit pour l'oxygène-18 par la relation suivante :

 δ^{18} O = -0,0011 Z - 5,96 (r = 0,86).

Un gradient altitudinal de -0,11 ‰ tous les 100 m peut ainsi être proposé.



Figure III-2. Gradient altitudinal du δ^{18} O dans les eaux souterraines du massif de l'Ursuya

Cette valeur semble relativement faible au regard de celles établies par Gal dans le Massif Central en 2005 (-0,22 ‰ par 100 m d'altitude croissante) ou Bakalowicz *et al.* en 1974 dans les Pyrénées centrales et Huneau dans le bassin de Valréas en 2000 (-0,3 ‰ par 100 m d'altitude croissante). Le gradient altitudinal du massif de l'Ursuya a été établi en considérant l'altitude des émergences. En effet, les aires de recharges correspondant à chaque point de mesure ne sont pas précisément connues. Il n'a donc pas été possible d'utiliser cette donnée pour établir le gradient altitudinal. Pourtant, en l'absence d'interactions fortes dans le sol et le sous-sol, c'est bien l'altitude de recharge qui est responsable de la signature isotopique (Araguas-Araguas, 2000). D'autre part, le faible étagement altitudinal des sources du massif de l'Ursuya engendre une certaine incertitude quant au gradient présenté ici. Néanmoins, cette valeur correspond au premier gradient altitudinal établit dans ce secteur des Pyrénées.

2. RAPPELS SUR LA QUALITE ET LE TEMPS DE TRANSIT DES EAUX SOUTERRAINES

2.1. Géochimie des eaux souterraines en milieux fissurés

La géochimie des aquifères en milieux de socle est liée en grande partie aux processus d'altération des roches. Dans des milieux carbonatés et évaporitiques, les processus de dissolution sont en général rapides. Au contraire, dans des lithologies composées de quartz et de silicates, ces processus sont beaucoup plus lents. Ainsi, les eaux circulant dans de tels milieux sont, dans la majorité des cas, faiblement minéralisées. Néanmoins, à une échelle mondiale, la contribution des minéraux silicatés à la charge totale dissoute dans les rivières est estimée à 45 %. L'importance des processus de dissolution des silicates à la surface du globe n'est donc pas négligeable (Stumm et Wollast, 1990). Quelques exemples de compositions d'eaux souterraines issues d'aquifères silicatés sont présentés sur la Figure III-3. Les concentrations les plus fortes en silice impliquent une dégradation des silicates. La plus forte concentration est obtenue dans les roches basaltiques (rhyolite et basaltes) qui contiennent plus de matériaux réactifs que les roches de type micaschistes, granites ou gneiss. Le sodium contribue significativement aux concentrations cationiques (le K⁺ ajouté au Na⁺ sur la Figure III-3 est présent de façon mineure) et il n'est pas en équilibre avec les Cl⁻. Le sodium n'est donc pas issu seulement des apports atmosphériques, mais il provient de l'altération de feldspaths sodiques comme l'albite. Le Ca²⁺ dans l'eau est apporté par l'altération des plagioclases, des amphiboles et des pyroxènes (Appelo et Postma, 2005). Le magnésium est également issu de l'altération des silicates comme les pyroxènes ou la biotite.



Figure III-3. Exemples de compositions d'eaux souterraines dans des formations silicatées (la silice est exprimée en mmol L⁻¹ et les ions majeurs en meq L⁻¹; Appelo et Postma, 2005)

Dans tous les cas, l'eau et l'acide carbonique sont les principaux réactifs et le résultat des processus d'altération des silicates est la libération de cations (Ca^{2+} , Mg^{2+} , K^+ , Na^+) et l'augmentation de l'alcalinité selon la réaction suivante :

$$CO_2 + H_2O \rightleftharpoons H^+ + HCO_3^-$$
 Équation 18

En fonction de la nature de la roche mère et des conditions climatiques et hydrogéologiques, divers minéraux secondaires vont être formés par ces réactions (gibbsite, kaolinite, smectite, illite par exemple). Les équations 19 à 23 présentent quelques unes de ces réactions pour divers minéraux primaires et pour lesquelles le produit de réaction est la kaolinite (Appelo et Postma, 2005). Ces minéraux secondaires sont les constituants de la partie supérieure du profil d'altération décrit dans le chapitre 1 et forment les argiles plus ou moins sableuses, regroupées sous les termes d'altérites ou d'arènes.

Albite

$$2Na(AlSi_3)O_{8(s)} + 2H^+ + 9H_2O \rightarrow Al_2Si_2O_5(OH)_{4(s)} + 2Na^+ + 4H_4SiO_4$$
 Équation 19

Anorthite

$$Ca(Al_2Si_2)O_{8(s)} + 2H^+ + H_2O \rightarrow Al_2Si_2O_5(OH)_{4(s)} + Ca^{2+}$$
Équation 20

Augite

$$(Mg_{0,7}CaAl_{0,3})(Al_{0,3}Si_{1,7})O_{6(s)} + 3,4H^{+} + 1,1H_{2}O$$

 $\rightarrow 0,3Al_{2}Si_{2}O_{5}(OH)_{4(s)} + Ca^{2+} + 0,7Mg^{2+} + 1,1H_{4}SiO_{4}$
Équation 22

Biotite

$$2K(Mg_2Fe)(AlSi_3)O_{10}(OH)_{2(s)} + 10H^+ + 0,5O_2 + 7H_2O$$
 Équation 23
 $\rightarrow Al_2Si_2O_5(OH)_{4(s)} + 2K^+ + 4Mg^{2+} + 2Fe(OH)_3 + 4H_4SiO_4$

L'eau souterraine se charge donc en différents minéraux, en fonction des matériaux rencontrés au cours de sont trajet dans le sous-sol. Cette minéralisation sera également différente en fonction du temps de contact entre l'eau et le matériau encaissant. Ainsi, le temps de séjour de l'eau dans le sous-sol sera un paramètre primordial dans l'acquisition de sa minéralisation.

2.2. Datation des eaux souterraines

L'« âge » de l'eau souterraine fait référence au temps écoulé depuis la recharge de l'aquifère et ne prend pas en compte le temps de transit de l'eau dans la zone non saturée. C'est une mesure du temps de résidence de l'eau dans l'aquifère (Hiscock, 2009). Le temps de séjour des eaux souterraines a des implications primordiales pour la gestion de la ressource et pour la compréhension du fonctionnement des aquifères. Même si les vitesses de circulation des eaux souterraines sont le plus souvent lentes, la gamme des temps de résidence rencontrés est très large. Elle s'étend de quelques heures pour certains aquifères karstiques à plusieurs millénaires dans le cas de systèmes poreux multicouches profonds.

De nombreuses méthodes se sont développées afin d'évaluer le temps de séjour des eaux au sein des systèmes aquifères, chacune d'elles étant adaptées à des gammes d'âges propres. Ainsi, les techniques les plus communes sont basées sur la décroissance des isotopes radioactifs. Ceux présentant une période de demi-vie longue (¹⁴C, ³⁶Cl, ³⁹Ar, et ⁸¹Kr) sont utilisés principalement pour la datation d'eau très anciennement infiltrées. Au contraire, les radio-isotopes ayant une période de demi-vie courte (³H, ³²Si, ³⁷Ar, ⁸⁵Kr et ²²²Rn) ou ceux produits par les activités nucléaires durant les dernières décennies peuvent être utilisés pour dater des eaux dites modernes. Le terme « eaux modernes » s'appliquent à des eaux infiltrées après les années 1950, c'est-à-dire après l'introduction du tritium dans l'atmosphère par les activités nucléaires (Clark et Fritz, 1997). Certains gaz rares produits par l'homme permettent également la datation des eaux souterraines.

Compte-tenu du contexte de notre étude, nous ne nous intéresserons ici qu'aux méthodes de datation des eaux modernes, notamment à l'utilisation des traceurs atmosphériques ³H, CFCs et SF₆. En effet, l'hypothèse d'eaux relativement récentes dans l'aquifère de l'Ursuya sera vérifiée dans les chapitres qui suivent.

2.3. Rappels sur l'utilisation des traceurs atmosphériques

2.3.1. Origine du ³H, des CFCs et du SF₆

2.3.1.1. <u>Le tritium</u>

Le tritium est probablement le radio-isotope le plus utilisé ces dernières décennies pour identifier la présence d'eaux modernes. C'est un isotope radioactif de l'hydrogène qui a une période de 12,43 ans (Unterweger *et al.*, 1980). L'activité du ³H est donnée en Unités Tritium. Une UT correspond à un atome de ³H pour 10⁸ atomes d'hydrogènes. Il fonctionne comme un traceur conservatif dans la mesure où il est un constituant de la molécule d'eau (IAEA, 2008).

Le tritium est naturellement produit par les radiations cosmiques dans la haute atmosphère. Les concentrations naturelles en tritium dans les précipitations sont estimées entre 0,5 et 20 UT (Clark et Fritz, 1997). En 1954, à partir d'échantillons de vins d'âges connus, Kaufmann et Libby ont estimés les concentrations naturelles en tritium entre 3,4 et 6,6 UT dans les régions de Naples (Italie), du Bordelais et du Rhône (France). Cependant, une production anthropique beaucoup plus importante de ³H a eu lieu entre 1951 et 1962 suite aux essais nucléaires. Un maximum de prés de 6000 UT a été atteint dans les précipitations de l'hémisphère nord en 1963 (IAEA, 2008). Depuis les années 1990, la majeur partie de ce tritium anthropique a disparu de l'atmosphère et les niveaux globaux dans les précipitations sont maintenant proches du niveau naturel (entre 5 et 30 UT dans l'hémisphère nord ; IAEA, 2008).

2.3.1.2. <u>Les chlorofluorocarbones et l'hexafluorure de soufre</u>

Les CFCs (Chlorofluorocarbones), commercialement appelés Fréons[©], ont été créés par la compagnie « General Motors » afin de remplacer les réfrigérants toxiques et inflammables, utilisés avant les années 1930 (McCulloch, 1999). Ils sont aussi utilisés comme gaz propulseurs des aérosols, comme matière première dans la synthèse de composés synthétiques, comme combustible, et comme agent d'expansion dans les mousses de matière plastique (Russel et Thompson, 1983). Avec la découverte du « trou de la couche d'ozone » au-dessus de l'Antarctique, une propriété néfaste des CFCs à été mise en évidence (Cicerone *et al.*, 1974 ; Molina et Rowland, 1974 ; Farman *et al.*, 1985). Malgré leur inoffensivité directe pour l'être humain, les CFCs sont en effet des gaz destructeurs de la couche d'ozone. Les temps de vies dans l'atmosphère des CFC-11, CFC-12 et CFC-113 sont respectivement estimés à $45 \pm 7,87$ ans, 87 ± 17 ans et 100 ± 32 ans (Volk *et al.*, 1997).

En 1987, 24 pays de la communauté économique européenne se sont engagés à supprimer les CFCs, halocarbonés et tout autre ODC (Ozone-Depleting Chemicals – composés destructeurs de la couche d'ozone) des produits manufacturés ou importés, en signant les accords du protocole de Montréal. Cet accord a été complété au fur et à mesure par différents accords dont celui de Londres en 1990 et celui de Beijing en 1999. En 1997, 162 pays avaient signé le protocole.

Les SF₆ (Hexafluorure de soufre) sont quant à eux des gaz rares dont l'origine principale est également anthropique. Leur production débute avec leur utilisation comme isolant en électricité haute tension dans les années 1960. Ils peuvent également avoir une origine naturelle. Harnisch et al (1996) et Harnisch et Eisenhauer (1998) rapportent la présence de SF₆ dans des eaux post 1960 circulant dans des fluorites et dans des granites. De même, en 1997, Busenberg et Plummer trouvent des concentrations importantes de SF₆ dans des eaux de sources non contaminées issues de milieux volcaniques et de socle. Les SF₆, même s'ils présentent un fort pouvoir d'amplification de l'effet de serre, sont toujours utilisés actuellement.

2.3.2. Connaissance des concentrations atmosphériques

2.3.2.1. <u>Le ³H dans l'atmosphère</u>

La chronique d'enregistrement la plus longue des concentrations en ³H dans les précipitations est établie à Ottawa (Canada) et débute en 1953 (Clark et Fritz, 1997). L'IAEA a également établi de nombreuses chroniques supplémentaires grâce à son réseau de stations à travers le monde : entre autre Valencia (Irlande), Harare (Zimbabwe) ou encore Kaitoke (Nouvelle-Zélande) et Thonon-les-Bains (France).

La Figure III-4 présente les chroniques enregistrées dans les eaux de pluies à Ottawa (Canada ; chronique la plus longue existante) et à Thonon-les-Bains (chronique la plus longue en France), dans les Alpes Françaises. La forte augmentation des concentrations à partir du début des essais nucléaires en 1951 est bien visible sur la courbe d'Ottawa. De même, la décroissance à partir de la fin des essais nucléaires, en 1963, est parfaitement observable, à la fois pour Ottawa et pour Thonon-les-Bains. Enfin, les concentrations observées sur la fin de ces chroniques correspondent aux teneurs atmosphériques naturelles.



Figure III-4. Concentrations mensuelles en tritium enregistrées dans l'eau de pluie à Ottawa et Thonon-les-Bains (données GNIP ; IAEA/WMO)

2.3.2.2. Les CFC et le SF₆ dans l'atmosphère

Lovelock (1971), Lovelock et Maggs (1973) et Lovelock (1974) furent les premiers à mesurer les CFC-11 dans l'atmosphère et à proposer cet outil comme traceur pour des études sur les mouvements des masses atmosphériques et océaniques. Un programme d'enregistrement systématique des concentrations atmosphériques en CFCs a alors débuté dans le milieu des années 1970 grâce à un réseau mondial de mesure regroupé sous le nom de ALE/GAGE/AGAGE network (Atmospheric Lifetime Experiment/Global Atmospheric Gases Experiment/Advanced Global Atmospheric Gases Experiment ; Cunnold *et al.*, 1986 ; Prinn *et al.*, 2000). Chacun de ces acronymes correspond à un changement d'instrumentation. Le NOAA (National Oceanic and Atmospheric Administration) est l'initiateur de ce projet (Plummer *et al.*, 2006). Cinq stations maritimes ont permis un suivi en continu (une en Tasmanie, une dans les îles Samoa, une à la Barbade, une sur la côte ouest des USA et une en Irlande). Sur ces stations de mesure, les concentrations de deux gaz biogéniques et de six gaz anthropiques (dont les CFCs et SF₆) sont analysées quatre à trente fois par jour et moyennées annuellement (Elkins *et al.*, 1993 ; Prinn *et al.*, 2000) de façon à documenter de manière précise les distributions spatiales et temporelles de ces composés. Six stations sont également affiliées à ce programme depuis 2000 (une en Norvège, une en Suisse, une en Italie, une en Chine, une au Japon et une en Corée du Sud depuis 2007). La Figure III-5 présente l'évolution des concentrations atmosphériques en CFCs et SF₆ en Amérique du Nord depuis le début de leur utilisation. Les données antérieures à 1978 ont été reconstituées à l'aide des estimations de productions industrielles mondiales recueillies par l'AFEAS (Alternative Fluorocarbons Environmental Acceptability Study) qui regroupe les onze plus grands producteurs de composés fluorés volatiles (Cook et Solomon, 1997; Höhener *et al.*, 2003; Ayraud, 2005).



Figure III-5. Concentrations atmosphériques en CFCs et SF₆ en Amérique du Nord (Plummer al., 2006)

Après une évolution plutôt lente dans les années 1950, les concentrations atmosphériques augmentent rapidement avec la démocratisation des systèmes de réfrigération et la mise sur le marché des bombes aérosols (McCulloch, 1999). Suite à l'application du protocole de Montréal à la fin des années 1980, les concentrations en CFCs montrent une stagnation, voire une légère décroissance (Khalil et Rasmussen, 1989 ; Elkins *et al.*, 1993 ; Cook et Solomon, 1997, Ayraud, 2005). En revanche, les SF₆ étant encore autorisés et leur production constante, leur concentration dans l'atmosphère est toujours croissante. Le taux de croissance des SF₆ dans l'atmosphère est aujourd'hui évalué autour de 6 % par an (Plummer *et al.*, 2006).

2.3.3. La méthode de datation par le ${}^{3}H$, les CFCs et le SF₆

2.3.3.1. Datation par le ³H

La production terrigène de ³H étant négligeable dans la majorité des milieux, la présence de tritium en quantité mesurable dans des eaux souterraines signifie une recharge moderne. Si les niveaux sont élevés (> 30 UT), cela signifie que la recharge s'est effectuée dans les années 1960 (Clark et Fritz, 1997). Au contraire, des niveaux de tritium faibles (\approx 5 UT) sont observés dans des eaux rechargées récemment, à partir de la fin des années 1980. Enfin, des eaux souterraines contenant des niveaux de tritium nuls sont des eaux infiltrées avant l'introduction du tritium dans l'atmosphère par les essais nucléaires des années 1960.

Les différentes techniques de datation des eaux souterraines par le ³H sont les suivantes (Clark et Fritz, 1997) :

- Vitesse du pic de 1963 : l'identification du pic de tritium atmosphérique dans l'eau souterraine permet de déterminer clairement la période de recharge.
- Décroissance radioactive : le calcul du temps de décroissance, à partir d'un niveau d'entrée connu, permet d'estimer le temps de résidence de l'eau souterraine.
- Analyses de séries temporelles : le prélèvement régulier pendant plusieurs années d'un point spécifique permet d'observer le passage et la diminution du pic de tritium, donnant une indication du temps de séjour de l'eau dans le système.
- Interprétation qualitative : si les concentrations en ³H sont fortes, l'eau mesurée est d'âge post-1960, si elles sont faibles l'infiltration est récente, si elles sont nulles la recharge est pré-1960.

Les trois premières méthodes nécessitent l'observation du pic de tritium, et/ou un niveau d'entrée connu et/ou des prélèvements réguliers. Nous avons donc été contraints d'utiliser la dernière méthode qui, même si elle donne le minimum d'information, permet d'obtenir une première estimation sur le temps de séjour. D'autre part, la mesure du tritium seule permet difficilement d'obtenir une précision acceptable. L'utilisation des CFCs et SF₆ permet d'avoir une bien meilleure précision.

2.3.3.2. <u>Datation par les CFC et le SF_6</u>

La méthode de détermination de l'âge de l'eau par les CFCs-SF₆ s'appuie sur six conditions implicites (Katz *et al.*, 1995 ; Ayraud, 2005) :

- la pression partielle des gaz est identique dans le sol et dans les couches de la troposphère ;
- la température de recharge peut être estimée ;
- l'aquifère n'est pas contaminé par des sources anthropiques ou terrigènes (urbaines, agricoles, industrielles);
- l'eau de recharge est en équilibre avec l'atmosphère du sol ;
- les concentrations en CFCs-SF₆ n'ont pas été altérées par des processus biologiques, géochimiques ou hydrologiques ;
- la méthode de prélèvement ne doit pas permettre de contact entre l'échantillon et l'atmosphère ou toute autre source de CFC et SF₆ (Busenberg et Plummer, 1992; Weissmann *et al.*, 2002).

La méthode de détermination de l'âge de l'eau par les CFCs-SF₆ est basée sur l'enregistrement des concentrations atmosphériques de ces composés pendant les 50 dernières années (Figure III-5), la solubilité des composés dans l'eau (loi de Henry) et la mesure des concentrations en CFCs-SF₆ dans les échantillons d'eau souterraine (Busenberg et Plummer, 1992; Plummer et Friedman, 1999).

D'après la loi de Henry, la concentration d'un gaz dissous dans l'eau en équilibre avec l'air est proportionnelle à la pression partielle, p_i , de ce gaz dans l'air :

$$C_i = K_{H_i} p_i$$
 Équation 24

Avec C_i la concentration du gaz *i* dissous dans l'eau et K_{H_i} la constante de Henry pour ce gaz. La pression partielle du composé est donnée par :

$$p_i = x_i \left(P - p_{H_2O} \right)$$
Équation 25

Avec x_i la fraction molaire du gaz dans l'air en pptv (partie par trillion en volume ou 10^{-12} mol mol⁻¹), *P* la pression atmosphérique totale et p_{H_2O} la pression de vapeur de l'eau (Warner et Weiss, 1985).

La combinaison des Équation 24s 24 et 25 donne :

$$x_i = \frac{C_i}{K_{H_i}(P - p_{H_2O})}$$
Équation 26

La pression de vapeur de l'eau p_{H_2O} est donnée par (Weiss et Price, 1980) :

$$\ln p_{H_2O} = 24,4543 - 67,4509 \left(\frac{100}{T}\right) - 4,8489 \ln \left(\frac{T}{100}\right) - 0,000544 S$$
 Équation 27

 K_H est donné par (Weiss et Price, 1980) :

$$\ln K_{H} = a_{1} + a_{2} \frac{100}{T} + a_{3} \ln \frac{T}{100} + a_{4} \ln \left(\frac{T}{100}\right)^{2} + S \left[b_{1} + b_{2} \frac{t}{100} + b_{3} \left(\frac{T}{100}\right)^{2}\right]$$
Équation 28

où T est la température en Kelvin, S la salinité en % et a_i et b_i les coefficients spécifiques de chaque composé (Tableau III-2).

La constante de Henry K_H pour la solubilité des gaz rares CFC-11, CFC-12, CFC-113 et du SF₆ dans l'eau pure et l'eau de mer a été déterminée pour une large gamme de températures et de salinités (Warner et Weiss, 1985 ; Bu et Warner, 1995 ; Bullister *et al.*, 2002).

Le Tableau III-2 donne les coefficients spécifiques valables pour des températures comprises entre 273 et 313 Kelvin (0 - 40 °C) et des salinités de 0 à 40 %. Les coefficients b_i n'entrent pas en compte pour des eaux à salinité proche de 0.

	a_1	a ₂	a ₃	b ₁	b_2	b ₃
$K_H (mol \ kg^{-l})$	(atm^{-1})					
CFC-11	-136,2685	206,1150	57,2805	-0,148598	0,095114	-0,0163396
CFC-12	-124,4395	185,4299	51,6383	-0,149779	0,094668	-0,0160043
CFC-13	-136,129	206,475	55,8957	-0,02754	0,006033	
SF ₆	-98,7264	142,803	38,8746	0,0268696	-0,0334407	0,0070843
$K_H (mol \ L^{-l} \alpha)$	ntm^{-1})					
CFC-11	-134,1536	203,2156	56,2320	-0,144449	0,092952	-0,0159977
CFC-12	-122,3246	182,5306	50,5898	-0,145633	0,092509	-0,0156627
CFC-13	-134,243	203,898	54,9583	-0,02632	0,005874	
SF_6	-96,5975	139,883	37,8193	0,0310693	-0,0356385	0,00743254

Tableau III-2. Coefficients spécifiques des CFC – 11, CFC – 12 (Warner et Weiss, 1985), CFC – 113 (Bu et Warener, 1995) et SF6 (Bullister *et al.*, 2002) pour le calcul de K_H

La constante de Henry dépend donc de la température de recharge, c'est à dire la température du toit de la nappe, au moment de la recharge. Celle-ci sera déterminée par la méthode des gaz nobles (Ne et Ar), prélevés en parallèle des CFCs et SF₆. La salinité intervient également dans la loi de Henry. Cependant, en dehors des contextes faisant intervenir de l'eau marine, les eaux étudiées présentent une dilution telle qu'il n'est pas nécessaire d'effectuer de correction vis-à-vis de la salinité (Plummer *et al.*, 2006, Plummer *et al.*, 2003).

La pression totale qui intervient dans les Equations 24 et 25 dépend quant à elle de l'altitude de recharge. La pression atmosphérique diminue quand l'altitude augmente, de même que la concentration en gaz. Il n'existe aucun moyen de déterminer la pression atmosphérique au moment de la recharge, mais celle-ci peut-être estimée par l'altitude moyenne de la zone de recharge. L'incertitude liée à l'erreur sur l'estimation de la pression atmosphérique reste cependant limitée. En effet, une imprécision de 1000 m n'entraine qu'une incertitude de quelques années pour des eaux rechargées avant 1987 (Busenberg *et al.*, 1993). Cette incertitude sera plus importante pour des eaux rechargées après 1990.

Les concentrations en CFCs et SF_6 mesurées en pmol L⁻¹ lors de l'analyse sont corrigées par l'application de la loi de Henry (Équation 25) pour obtenir des concentrations atmosphériques équivalentes en pptv qui pourront directement être comparées aux données des courbes atmosphériques. Le temps de séjour de l'eau dans l'aquifère est ensuite déterminé par comparaison avec les concentrations atmosphériques.

On parlera d'eau ancienne pour des âges supérieurs à 50 ans (limite maximum d'utilisation de la méthode du fait de l'absence des gaz rares dans l'atmosphère avant cette période). Le terme eau récente sera utilisé pour des âges compris entre 0 et 10 ans (limite minimum de la méthode du fait de la stabilisation des concentrations atmosphériques de ces gaz ces dernières décennies). D'autre part, l'âge obtenu par les analyses de CFCs-SF₆ peut être différent de l'âge moyen réel de l'eau souterraine dans le cas de mélanges complexes (Katz *et al.*, 2004 ; Weissmann *et al.*, 2002), ou de diffusion matricielle. Le terme « âge apparent » sera donc préféré dans la suite de ce manuscrit.

2.3.4. Les modèles d'interprétation

La mesure des concentrations en gaz dissous d'une eau ne donne qu'une information relative de l'âge de l'eau. L'âge déterminé n'est souvent qu'un âge moyen d'un mélange d'écoulements élémentaires. La datation ne se limite donc pas uniquement à la détermination de l'âge. C'est en fait une répartition des âges qu'il s'agit de déterminer. Pour permettre une datation réaliste des eaux souterraines, il est essentiel au préalable d'établir un modèle conceptuel des circulations souterraines qui permettra notamment la détermination des principaux modes de circulation des eaux (Vittecoq *et al.*, 2007).

2.3.4.1. <u>Trois modèles de mélange</u>

Trois modèles sont classiquement utilisés pour décrire les différents mélanges généralement observés :

- Le modèle piston : il n'y a pas de mélange et aucune modification des concentrations par dispersion, diffusion ou échange direct (Maloszewski et Zuber, 1996). Il est valable pour une nappe captive et permet de donner un âge apparent en nombre d'années depuis l'infiltration dans la zone saturée (Figure III-6).
- Le modèle exponentiel : dans ce modèle, on considère une distribution exponentielle des temps de transits (Maloszewski et Zuber, 1996 ; Figure III-6). C'est-à-dire que la ligne d'eau la plus courte correspond à une recharge actuelle et la ligne d'eau la plus longue à un âge infini (ici, post-1950). Dans le concept de modèle exponentiel, il n'y a pas de mélange au cours du trajet de l'eau mais uniquement à l'endroit du prélèvement. Le modèle exponentiel correspond à un aquifère homogène libre pour lequel la recharge se fait sur toute la surface. L'âge obtenu par l'application de ce modèle est appelé MRT (Mean Residence Time). Il correspond à la durée pour laquelle 2/3 des lignes d'eau sont plus récentes.
- Le modèle de type mélange binaire : l'eau étudiée est constituée d'un mélange de deux eaux d'âges différents. Un des pôles du mélange peut être ancien (post-traceur) ou actuel (0 à 10 ans). On détermine alors la proportion des deux pôles et l'un des deux âges.



Figure III-6. Schéma des modèles d'écoulement piston et exponentiel (Maloszewski et Zuber, 1996)

2.3.4.2. <u>Le choix du modèle</u>

Compte tenu de l'importante variabilité géologique et hydrodynamique des aquifères cristallins, qui plus est fortement altérés, les trois modèles décrits ci-dessus peuvent être envisagés pour le même système. Le choix du modèle pour chaque point de mesure se fait en plusieurs étapes. La première est la vérification de l'adéquation des quatre traceurs avec l'un des modèles (dans le cas où aucune dégradation ou contamination n'est observée ; Plummer et al., 2003). Pour ce faire, il est possible d'utiliser les relations entre les différents traceurs. Comme leur concentration atmosphérique évolue différemment dans le temps, il est possible de représenter graphiquement l'évolution de l'un vis-à-vis de l'autre de la façon présentée sur la Figure III-7. Les variations théoriques des concentrations en CFCs et SF₆ en réponse aux différents modèles étant connues, ceci permet de distinguer lequel des modèles est le plus susceptible d'être appliqué. Les concentrations obtenues pour chaque échantillon doivent se trouver à l'intérieur de la surface limitée par les courbes représentées sur la Figure III-7. Dans le cas inverse, une contamination ou une dégradation doit être envisagée. Si aucune dégradation ou contamination n'est détectée, il est alors possible d'interpréter les mesures en terme d'âge apparent. Une eau qui n'est pas issue d'un mélange se trouvera sur la ligne correspondant au modèle piston pour tous les traceurs et sur le point correspondant au même âge. Si un traceur est dégradé ou en excès, le point sera alors éloigné de la courbe sur les graphiques correspondant à ce traceur.

Les échantillons qui ne se trouvent pas sur la courbe du modèle piston pour l'ensemble des diagrammes peuvent être interprétés comme des mélanges. Une eau issue du modèle exponentiel sera représentée par un point sur la courbe de ce modèle. Les eaux issues d'un mélange binaire seront représentées par des points situés n'importe-où à l'intérieur de l'aire délimitée par les courbes. La ligne représentant le mélange binaire sur la Figure III-7 correspond au mélange extrême d'une eau ancienne (pré-traceurs) et d'une eau récente (recharge actuelle).



Figure III-7. Diagramme de concentrations CFC_x/CFC_y et SF₆/CFC_x et courbes des modèles associés (seuls les âges piston correspondant sont indiqués sur les courbes ; adapté de Plummer *et al.*, 2003)

Néanmoins, il est rare d'observer une eau qui réponde exclusivement à l'un des modèles pour tous les traceurs. Il est toujours nécessaire, même si un modèle semble parfaitement correspondre du point de vue numérique, d'interpréter les résultats obtenus en se basant sur la connaissance que l'on a des écoulements étudiés. Ainsi, dans la zone fissurée, sans arènes sus-jacentes, la nappe peut être considérée comme libre. Le seul modèle applicable dans ce contexte est donc le modèle exponentiel. Dans le cas d'écoulements dans les altérites, le raisonnement est différent. Compte-tenu de la définition de cet horizon, et des conditions d'application des modèles, ils peuvent tous les trois être utilisés dans cette situation, en fonction du degré d'altération. Des précisions sur les conditions d'écoulement et donc sur les modèles de datation applicables peuvent également être obtenues par la réalisation de diagraphies et d'essais de pompages.

Par ailleurs, si les connaissances sur la géologie et l'hydrogéologie du site étudié ne sont pas suffisantes, l'utilisation de quatre traceurs différents est particulièrement utile. Cette approche multi-traceurs est la plus appropriée dans des contextes ou la variabilité spatiale des paramètres hydrodynamiques est importante. D'autre part, elle permet de mettre en évidence la dégradation ou la contamination d'un ou plusieurs traceurs. Dans ce cas, le traceur en question ne sera pas pris en compte dans la détermination du temps de séjour de l'eau souterraine.

Les trois modèles utilisés ici ne sont que des cas théoriques idéaux permettant une interprétation rationnelle des concentrations des traceurs et une représentation simplifiée de la réalité. Nous avons par exemple utilisé le mélange binaire, mais des modèles de type mélange ternaire, quaternaire ou plus sont également envisageables. Il est donc indispensable de garder en mémoire que les âges apparent calculés grâce aux traceurs atmosphériques restent des âges théoriques et qu'ils peuvent être légèrement différents dans la réalité. Néanmoins, les ordres de grandeur obtenus sont tout à fait cohérents avec le contexte du site étudié.

2.3.5. Paramètres pouvant modifier l'âge apparent

L'âge apparent déduit de l'application de la méthode de datation par les CFCs-SF₆ peut être influencé de deux manières : un excès en composé (valeurs supérieurs aux concentrations attendues dans le cadre d'un simple équilibre avec l'atmosphère ; Russel et Thompson, 1983 ; Busenberg *et al.*, 1993 ; Oster *et al.*, 1996 ; Ho *et al.*, 1998 ; Modica *et al.*, 1998 ; Beyerle *et al.*, 1999 ; Spurlock *et al.*, 2000 ; Plummer *et al.*, 2001), ou une dégradation (Khalil et Rasmussen, 1989 ; Cook *et al.*, 1995 ; Katz *et al.*, 1995 ; Cook *et al.*, 1996 ; Szabo *et al.*, 1996 ; Modica *et al.*, 1998). Nous avons vu dans le paragraphe 2.3.3 que la température et la pression de recharge pouvaient influencer la datation. Des paramètres supplémentaires peuvent faire varier les concentrations en CFCs-SF₆ des eaux souterraines.

Les principaux éléments à prendre en compte sont les suivants (Ayraud, 2005) :

- la température de recharge ;
- l'excès d'air ;
- l'occupation du sol ;
- les phénomènes de dispersion/diffusion ;
- la dégradation ;
- l'encaissant géologique ;
- la zone non saturée.

2.3.5.1. <u>Température de recharge</u>

La température de recharge peut être déterminée à partir de la concentration en certains gaz nobles dissous dans l'eau par application de la loi de Henry (Équation 26), à condition que ces gaz aient été en équilibre avec l'atmosphère au moment de la recharge (Plummer *et al.*, 2006). Les gaz les plus souvent utilisés sont l'argon, le néon, le krypton et le xénon (Busenberg *et al.*, 1993 ; Szabo *et al.*, 1996). Ces gaz présentant des solubilités très variables en fonction de la température, ils sont particulièrement adaptés à ce type d'applications (Weiss, 1970).

De manière générale, plus la température de recharge est faible plus la solubilité est grande. Dans le cas du CFC-11, une incertitude de 1°C sur la température de recharge fait varier l'âge d'environ 1/2 année pour la période des années 80 (Figure III-8), ce qui est proche de l'incertitude analytique (Ayraud, 2005). Au cours de cette étude, les gaz argon et néon ont été utilisés pour estimer les températures de recharge et l'excès d'air.





2.3.5.2. <u>Excès d'air</u>

De nombreuses observations ont montré que les eaux souterraines contiennent fréquemment plus de gaz dissous que ne peut l'expliquer un simple équilibre avec l'atmosphère (entre autres Herzberg et Mazor, 1979, Heaton et Vogel, 1981). Ce phénomène appelé excès d'air est dû à l'emprisonnement de bulles de gaz dans les pores du milieu d'écoulement. Lors de la recharge, certains capillaires peuvent ne pas être saturés alors que l'ensemble du milieu l'est. Ceci aboutit à la formation de bulles d'air. Ces bulles de gaz, entraînées par l'eau, se dissolvent ensuite sous l'effet de la pression augmentant ainsi les concentrations en gaz dissous (Ayraud, 2005).

Différents paramètres peuvent provoquer ce phénomène d'excès d'air. Il peut s'agir de phénomènes naturels dûs à la structure physique de la zone non saturée (des pores de petites tailles et/ou des chenaux de taille capillaire augmentent la rétention des bulles d'air dans le sol) ou à une vitesse de recharge rapide (cas de fortes précipitations), accompagnée d'une remontée rapide du toit de la nappe (Plummer *et al.*, 2001). Des phénomènes anthropiques peuvent également entrainer le piégeage de bulles d'air pendant le développement ou la purge d'un forage (Plummer *et al.*, 2006). L'âge déduit des CFCs-SF₆ peut être corrigé de l'excès d'air par l'analyse de la concentration de différents gaz nobles comme l'argon et le néon. L'excès d'air, quand il existe, entraine un enrichissement en gaz dissous. L'âge apparent calculé sera alors plus faible que l'âge réel.

L'effet de l'excès d'air sur l'âge calculé sera plus important pour des températures de recharge élevées, pour des eaux jeunes, et plus marqué sur les CFC-12 que sur les CFC-11 et CFC-113 (Busenberg et Plummer, 1992). En outre, d'une manière générale, les excès d'air observés impliquent une variation des concentrations en CFC de l'ordre de 4 %, ce qui est proche de l'incertitude analytique (Dunkle *et al.*, 1993 ; Reilly *et al.*, 1994 ; Cook *et al.*, 1996).

Dans la plupart des études, cet excès d'air est donc négligé pour le calcul du temps de séjour par les CFCs (Busenberg et Plummer, 1992 ; Dunkle *et al.*, 1993 ; Cook *et al.*, 1995 ; Cook *et al.*, 1996 ; Ayraud, 2005). En revanche, les concentrations en SF₆ peuvent être plus fortement influencées par un excès d'air. Le rapport Ne/Ar sera donc utilisé pour corriger les concentrations en SF₆ (Maiss et Brenninkmeijer, 1998 ; Plummer *et al.*, 2001 ; Vittecoq *et al.*, 2007 ; Ayraud *et al.*, 2008).

2.3.5.3. <u>Occupation des sols</u>

Des pollutions locales en CFCs et SF₆ peuvent exister près des grands centres industriels et des grandes agglomérations. Cette pollution peut provoquer une contamination de l'atmosphère et des eaux de surface, donc des eaux souterraines (Oster *et al.*, 1996 ; Szabo *et al.*, 1996 ; Ho *et al.*, 1998 ; Beyerle *et al.*, 1999 ; Ayraud, 2005). Dans le cas de telles contaminations, les concentrations en gaz dissous sont telles (pouvant atteindre le μ g L⁻¹, Höhener *et al.*, 2003) qu'une erreur d'interprétation est improbable. En règle générale, un seul des composés analysés est contaminé, les autres peuvent donc être interprétés pour la datation. C'est un intérêt supplémentaire de l'approche multi-traceurs.

2.3.5.4. <u>Phénomènes de diffusion/dispersion</u>

Les CFCs-SF₆ sont considérés comme étant des solutés faiblement influencés par les phénomènes de dispersion et de diffusion (Busenberg et Plummer, 1992 et 1997 ; Reilly *et al.*, 1994). Néanmoins, la diffusion matricielle peut jouer un rôle non négligeable, en particulier dans des milieux de fractures. La diffusion du soluté depuis les fractures vers la matrice peut engendrer un retard du traceur par rapport à l'eau. Finalement, la diffusion matricielle entrainera un âge apparent plus grand que l'âge réel (Plummer *et al.* 2006). De plus, l'âge apparent sera différent en fonction des coefficients de diffusion du traceur et du mode d'évolution de sa concentration à l'entrée du système.

La dispersion agira d'avantage sur les composés comme le tritium où les courbes atmosphériques sont constituées de nombreux pics plutôt que sur des composés dont l'augmentation est continue comme les CFCs (Busenberg et Plummer, 1992; Cook et Salomon, 1997). L'effet de la dispersion hydrodynamique dépend en effet de l'ampleur du gradient de concentration du composé. Quand une quantité importante de traceur entre rapidement dans le sous-sol, le maximum de concentration va diminuer mais l'étendue va augmenter du fait de la dispersion. Au contraire, quand un traceur est introduit de façon continue, l'effet de la dispersion est largement atténué (Plummer *et al.*, 2006).

2.3.5.5. <u>Dégradation</u>

Les CFC-11, CFC-12 et CFC-113 sont considérés comme stables en milieux aérobie (Busenberg et Plummer, 1992 ; Höhener *et al.*, 2003). En revanche, les conditions anaérobies sont favorables à leur dégradation (Khalil et Rasmussen, 1989 ; Cook *et al.*, 1995 ; Oster *et al.*, 1996). La séquence de dégradation des CFCs est la suivante : CFC-11>CFC-113>CFC-12 (Ayraud, 2005). Elle est observée dès l'apparition des conditions nécessaires à la réduction des nitrates et des sulfates (Höhener *et al.*, 2003). Les SF₆ ne semblent affectés par aucun processus de dégradation tant chimique que biologique (Busenberg et Plummer, 2000 ; Koh *et al.*, 2007 ; Vittecoq *et al.*, 2007).

2.3.5.6. <u>Contexte géologique</u>

En milieu poreux et homogène, dans des conditions de circulation simple, la datation des eaux ne semble pas poser de problème particulier (Cook *et al.*, 1996 ; Cook et Solomon, 1997). En revanche, dans des milieux fracturés hétérogènes, l'interprétation en terme d'âges peut être difficile. Comme nous l'avons vu dans le paragraphe 2.3.5.4, le phénomène de diffusion matricielle dans de tels milieux peut entrainer un effet retard sur le traceur.

D'autre part, les SF₆ peuvent également avoir une origine naturelle. Harnisch et al (1996) et Harnisch et Eienhauer (1998) rapportent la présence de SF₆ dans des eaux post-1960 circulant dans des fluorites et dans des granites. De même, en 1997 Busenberg et Plummer ou plus récemment Koh *et al.* (2007), Deeds *et al.* (2008) et Gourcy *et al.* (2009) trouvent des concentrations importantes de SF₆ dans des eaux de sources non contaminées issues de milieux volcaniques et de socles.

La production géogénique de ce gaz est estimée à 1 % à l'échelle mondiale mais cela peut représenter, localement, un apport important (Vittecoq *et al.*, 2007). L'occurrence de SF_6 naturel semble être liée à la présence de fluorite, minéral pouvant être présent sur le massif de l'Ursuya en accompagnement de veines de pegmatites et de quartz. La fluorite est en effet un minéral classiquement observé dans les milieux granitiques et gneissiques (Busenberg et Plummer, 2000). Par conséquent, les données issues du SF_6 peuvent ne pas être en accord avec celles issues des CFCs, auquel cas elles seront écartées.

2.3.5.7. <u>Transfert des traceurs dans la zone non saturée</u>

Lorsqu'une zone non saturée épaisse sépare l'atmosphère du toit de la nappe, les concentrations en CFCs et SF₆ dans le sol au dessus de la nappe peuvent ne pas être à l'équilibre avec celles de l'atmosphère au même moment. Des différences entre les concentrations de l'atmosphère et celles du sol ont déjà été observées (Busenberg *et al.*, 1993; Engesgaard *et al.*, 2004). Les concentrations dans le sol dépendent de la vitesse de transport des gaz au travers de la zone non saturée.

Le transport des gaz au travers de la zone non saturée est fortement influencé par les phénomènes de diffusion et d'advection. L'advection de l'air du sol résulte des variations de pression atmosphérique et des variations de température du sol. Les mouvements d'air dans la zone non saturée peuvent également se produire en réponse au changement de teneur en eau du sol lors de l'infiltration ou du fait du battement de la nappe (Plummer *et al.*, 2006). Cependant, le phénomène d'advection est prépondérant dans les premiers mètres du profil de sol. A de plus grandes profondeurs, le phénomène de diffusion est dominant (Kimball et Lemon, 1972 ; Farrell *et al.*, 1966).

Les retards observés peuvent varier de 5 à 20 ans pour une zone non saturée de 30 m d'épaisseur. Le CFC-11 semble être le plus sujet à ce retard (Cook et Salomon, 1997 ; Engesgaard *et al.*, 2004). L'épaisseur de la zone non saturée est finalement le paramètre principal influençant le temps de transfert. Il joue particulièrement sur les propriétés physiques du milieu et notamment sur la température de l'eau souterraine. Une zone non saturée de faible épaisseur ne protégera pas l'eau sous-jacente des variations atmosphériques de température ou des concentrations atmosphériques en gaz rares (Ayraud, 2005). Inversement, une zone non saturée épaisse aura un rôle tampon vis-à-vis de ces deux paramètres (Oster *et al.*, 1996 ; Johnston *et al.*, 1998).

2.3.5.8. <u>Résumé</u>

Il existe donc de nombreux processus dans le milieu souterrain qui peuvent affecter l'interprétation des âges apparents déduits des concentrations en gaz rares de l'eau. Ces processus sont résumés dans le Tableau III-3. Bien que les processus affectant la datation soient connus, il n'est pas toujours possible de prévoir l'existence (ou l'intensité) de l'un d'entre eux sur le système étudié. L'interprétation des informations fournies par la datation des eaux souterraines doit donc toujours s'accompagner de données supplémentaires permettant de caractériser l'environnement géochimique et hydrogéologique du contexte de l'étude.

Propriété	Environnement majoritairement affecté	Description succincte du processus	Effet sur l'âge apparent			
			Concentration surestimée Concentration sous-estimé	Age sous-estimé Age surestimé		
Température de	Тана		$\pm 2^{\circ}C$; ≤ 1970	± 1 an ou moins		
recharge	Tous	Solubilité des traceurs	± 2°C ; 1970–1990	\pm 1-3 ans		
			± 2°C ; >1990	> 3 ans		
Excès d'air	Tous ; plus important pour les aquifères fracturés et des recharges rapides	Dissolution de bulles de gaz en profondeur	Faiblement significatif pour des âges post 1990	Age sous-estimé		
Occupation du sol	Milieux très urbanisés ou proches de pôles industriels	Utilisation ou stockage de matériaux contaminés	Concentrations atmosphériques calculées supérieures aux concentrations atmosphériques locales	Age sous-estimé ou datation impossible		
Dispersion/diffusion	Tous, plus important pour des aquifères fracturés	Processus hydrologiques	Effet généralement faible	<1975 : Age sous-estimé >1975 : Age surestimé		
Dégradation	Environnements anaérobies	Processus microbiens	Effet important si les conditions de réduction des sulfates sont atteintes	Age surestimé		
Milieu géologique	Principalement volcanique et socle	Mode et milieu de circulation, contamination SF_6	Si contamination en SF ₆	Age surestimé ou datation impossible		
Epaisseur de la zone	Epaisseur de la zone non saturée	Air au dessus du toit de la nappe	0 - 10 m	Erreur < 2 ans		
non saturée	supérieure à 10 m	est plus ancien que celui de la troposphère	30 m	Erreur de 8 à 10 ans		

Tableau III-3. Récapitulatif des principaux paramètres pouvant influencer la datation des eaux souterraines par les CFCs-SF₆ (adapté de Ayraud, 2005 et Plummer *et al.*, 2006)

143
3. DONNEES **GEOCHIMIQUES** ET DATATION DES EAUX **SOUTERRAINES** POUR DETERMINER LES DIFFERENTS **MILIEUX D'ECOULEMENTS** LE LONG DU **PROFIL** D'ALTERATION D'UN AQUIFERE FRACTURE

Les paragraphes qui suivent ont fait l'objet d'un article publié dans la revue « Applied Geochemistry ». Le résumé est présenté ici et l'article est disponible dans son intégralité en annexe C.



Hydrochemical data and groundwater dating to infer differential flowpaths through weathered profiles of a fractured aquifer

J. Jaunat ^{a,*}, F. Huneau ^a, A. Dupuy ^a, H. Celle-Jeanton ^{b,c,d}, V. Vergnaud-Ayraud ^e, L. Aquilina ^e, T. Labasque ^e, P. Le Coustumer ^a

^a Université de Bordeaux, EA 4592 Géoressources & Environnement, ENSEGID, 1 allée F. Daguin, F-33607 Pessac, France

^b Clermont Université, Université Blaise Pascal, Laboratoire Magmas et Volcans, BP 10448, F-63038 Clermont-Ferrand, France

^c CNRS, UMR 6524, LMV, F-63038 Clermont-Ferrand, France ^d IRD, R 163, LMV, F-63038 Clermont-Ferrand, France

^o OSUR, Géosciences Rennes, UMR 6118, CNRS/Université Rennes-1, F-35042 Rennes, France

Abstract : The Northern Basque Country (Southwestern France) is subject to a constant need of increasing water due to a rising population. The fissured aquifer of the Ursuya Mount is one of the main water supplies able to meet these needs. Unfortunately, there is a lack of knowledge on the residence time of groundwater and flow pattern in this strategic resource. Geochemical monitoring of groundwater was carried out from 2009 to 2011 in conjunction with CFC-SF6 measurement and with a detailed geological field characterization. It appears that groundwater flows and water geochemistry are conditioned by the development of a weathered layer overlying the fissured aquifer. When the weathered layer is absent, groundwater flows take place in unconfined conditions along fractures and fissures. The rapid circulation (mean residence time between 11 and 15 a) and the low solubility of the matrix generates low mineralization (mean about 61 μ S.cm⁻¹). When a weathered layer is present, the flow depends on the degree of weathering, with groundwater circulating in the deep fissured zone in the case of a high degree of weathering. The apparent age is then between 10 to 42 a and the mineralization tends to increase concomitantly with the residence time, and particularly terrigenic element concentrations. In the case of a lesser degree of weathering, mixing between recent water from the shallow weathered layer and the oldest water (25 to >50a) from the underlying fissured aquifer is observed. These results allow the definition of a conceptual model of flow characteristics in the study area which is also applicable to other weathered-fractured systems worldwide.

Keywords : hard rock, aquifer, CFC, SF6, residence time, water supply, gneiss, France

Les paragraphes qui suivent présentent les résultats du suivi géochimique effectué sur les eaux souterraines du massif de l'Ursuya d'une part et des investigations menées sur les temps de séjour d'autre part. Ces résultats seront ensuite interprétés et discutés conjointement dans le but de mettre en évidence les différents milieux d'écoulement au sein de l'aquifère de l'Ursuya. Un modèle d'écoulement conceptuel sera finalement établit. Ce dernier constituera le premier résumé du mode de fonctionnement de l'aquifère de l'Ursuya.

3.1. Résultats du suivi physico-chimique et des mesures de gaz dissous

3.1.1. Variabilité spatiale des paramètres physico-chimiques

La minéralisation des eaux souterraines prélevées dans les forages et aux émergences suivies est globalement faible (les moyennes des paramètres mesurés mensuellement sont présentées dans le Tableau III-4). Néanmoins, une variabilité spatiale importante peut être observée. Pour les eaux de sources, la conductivité électrique moyenne est comprise entre $46 \pm 1,12 \ \mu S \ cm^{-1}$ (source Mac) et $180 \pm 9,68 \ \mu S \ cm^{-1}$ (source Sc4). Les conductivités électriques moyennes de l'ensemble des eaux prélevées sont représentées sur la Figure III-9.



Figure III-9. Conductivité électrique moyenne des eaux de sources et de forages

BI : Balance Ionique, les écarts types sont donnés entre parenthèses)										, , , , , , , , , , , , , , , , , , ,				
Type	Nom	Ν	Cond. $(\mu S \ cm^{-1})$	рН	T (°C)	HCO_3^- $(mg \ L^{-l})$	Cl^{-} $(mg \ L^{-l})$	SO_4^{2-} (mg L^{-l})	NO_3^- $(mg L^{-l})$	Na^+ $(mg \ L^{-l})$	$\frac{K^+}{(mg\ L^{-l})}$	Mg^{2+} $(mg \ L^{-l})$	Ca^{2+} (mg L^{-1})	BI (%)
	AR1	19	105 (1,7)	6,10 (0,1)	12,9 (0,31)	27 (2,51)	9,28 (0,84)	2,06 (0,87)	10,22 (1,86)	7,70 (0,33)	1,45 (0,23)	4,03 (0,25)	8,51 (0,91)	9,27
	C3	18	69 (9,24)	6,39 (0,38)	10,8 (0,55)	16 (2,38)	6,34 (0,89)	4,61 (2,69)	5,38 (1,20)	5,46 (0,45)	0,82 (0,15)	2,11 (0,34)	6,83 (1,57)	11,2
	H20	17	48 (3,51)	5,94 (0,14)	11,6 (0,45)	11 (2,05)	5,89 (1,82)	2,40 (0,88)	2,66 (0,69)	5,34 (0,88)	0,86 (0,18)	1,61 (0,37)	2,83 (1,05)	13,1
	H2	17	97 (3,97)	6,54 (0,14)	12,4 (0,24)	36 (1,41)	7,59 (2,07)	2,60 (1,12)	1,64 (0,46)	7,69 (0,31)	1,24 (0,27)	3,38 (0,39)	8,61 (1,14)	9,6
	Ip6	19	107 (6,21)	5,84 (0,17)	13,4 (0,62)	15 (1,02)	11,51 (3,51)	1,43 (0,59)	17,59 (4,36)	8,41 (0,85)	3,57 (0,49)	3,70 (0,75)	6,17 (1,53)	11,2
	La10c	18	79 (2,05)	5,59 (0,20)	13,1 (0,10)	10 (2,07)	9,20 (0,99)	0,78 (1,82)	13,40 (1,99)	6,88 (0,64)	1,43 (0,34)	2,85 (0,53)	4,60 (0,87)	9,1
-	La16l	18	53 (1,98)	5,85 (0,23)	12,8 (1,07)	15 (0,93)	7,50 (1,46)	1,89 (0,93)	2,04 (1,29)	7,23 (0,91)	0,98 (0,20)	1,81 (0,47)	3,24 (1,55)	9,7
Sources	La7l	19	109 (2,40)	5,85 (0,16)	13,3 (0,42)	21 (2,11)	10,79 (3,96)	1,22 (3,80)	17,88 (3,20)	10,42 (0,72)	1,84 (0,33)	4,45 (0,52)	5,87 (1,27)	9,0
	Mac	19	46 (1,12)	5,42 (0,26)	11,3 (0,09)	5 (2,05)	6,43 (0,97)	0,22 (0,73)	7,58 (1,16)	5,38 (0,53)	0,96 (0,18)	1,61 (0,31)	1,79 (0,78)	9,7
	Esp	15	89 (3,84)	6,62 (0,16)	12,0 (0,32)	32 (2,39)	6,93 (1,44)	1,07 (1,20)	4,81 (0,85)	6,64 (0,54)	1,23 (0,19)	2,77 (0,63)	8,41 (1,60)	6,5
	Pe18	20	77 (3,71)	5,63 (0,18)	13,4 (0,55)	11 (2,32)	9,08 (1,26)	1,81 (0,86)	10,48 (1,41)	7,22 (0,35)	1,45 (0,25)	2,52 (0,30)	4,87 (1,08)	10,8
	Sc2	18	63 (2,92)	5,89 (0,20)	13,1 (0,18)	10 (1,62)	7,79 (0,63)	2,26 (2,01)	6,72 (1,79)	6,30 (0,50)	1,00 (0,26)	1,91 (0,32)	4,30 (1,24)	10,6
	Sc4	16	180 (9,68)	6,22 (0,22)	14,7 (0,80)	21 (2,22)	19,36 (1,44)	5,43 (0,82)	32,04 (5,44)	9,89 (0,60)	3,17 (0,25)	4,77 (0,57)	16,38 (1,96)	6,0
	Se3	16	60 (1,08)	6,32 (0,22)	13,1 (0,15)	15 (1,43)	8,21 (2,23)	1,71 (2,82)	4,78 (2,15)	6,74 (0,37)	0,96 (0,14)	1,64 (0,29)	4,58 (1,02)	7,5
	Ar3	1	102	6,66	13,9	34	9,81	2,57	4,38	8,01	1,28	3,61	8,22	5,8
	Ar5	1	77	6,24	13,7	36	7,36	1,78	4,38	6,62	0,99	3,05	5,16	2,3
	Ip2bis	9	265 (17,29)	7,78 (0,13)	14,3 (0,98)	138 (13,01)	9,11 (0,95)	2,15 (2,01)	6,75 (1,27)	8,60 (0,72)	2,00 (0,78)	4,04 (1,24)	45,38 (5,68)	4,9
	Osp5	1	326	7,37	14,7	158	14,40	4,37	18,79	10,06	3,63	5,93	53,66	4,4
Forages	Osp9	8	374 (39,39)	7,46 (0,35)	14,5 (2,92)	134 (11,69)	18,90 (3,10)	33,86(3,51)	0,18 (1,12)	12,13 (1,66)	1,80 (2,44)	5,89 (0,90)	58,83 (4,34)	1,8
	Pe4	9	177 (20,65)	6,48 (0,19)	14,0 (1,01)	42 (11,36)	12,12 (2,09)	14,19(7,26)	6,30 (4,60)	9,45 (1,27)	3,41 (1,49)	3,48 (0,60)	15,67 (4,82)	3,4
	Pe5	9	64 (5,73)	5,59 (0,30)	13,7 (1,11)	6 (1,63)	9,80 (1,28)	1,16 (2,03)	5,22 (1,13)	7,67 (1,23)	1,36 (0,25)	1,56 (0,25)	3,01 (1,33)	6,3
	Pit11	1	149	6,77	13,8	54	12,77	1,23	12,37	7,92	3,92	6,38	14,59	7,0
	Pit16	1	131	7,03	13,8	50	14,03	0,51	7,80	7,58	4,30	4,37	14,64	6,1

Tableau III-4. Moyennes des paramètres physico-chimiques et des concentrations en ions majeurs mesurés dans les eaux de sources et de forages suivis (N : nombre de prélèvements, BL : Balance Jonique les écarts types sont donnés entre parenthèses)

Vis-à-vis de la minéralisation, 3 classes peuvent être définies pour les sources :

- La première classe concerne les eaux souterraines des sources sous une influence anthropique (notamment Sc4). La minéralisation la plus importante est observée pour la source Sc4 ($180 \pm 9,68 \ \mu S \ cm^{-1}$; Figure III-9).
- La seconde classe concerne les sources présentant une conductivité électrique faible à moyenne entre 55 μS cm⁻¹ et 120 μS cm⁻¹. Les sources Pe18, Ip6, Sc2, Se3, La7l, La16l, Ar1, H2 et Esp appartiennent à cette classe dont la minéralisation moyenne est de 93 μS cm⁻¹ (Figure III-9).
- Enfin, les eaux des sources C3, H20, Mac et La10c peuvent être regroupées dans une troisième classe. Cette dernière présente la gamme de minéralisation la plus faible observée sur le massif de l'Ursuya avec une conductivité électrique allant de $40 \ \mu\text{S cm}^{-1}$ à 80 $\mu\text{S cm}^{-1}$ et une moyenne de 61 $\mu\text{S cm}^{-1}$ (Figure III-9).

En ce qui concerne les eaux de forages, une classification basée sur la minéralisation est également possible. En effet, la conductivité électrique des eaux des forages Ar3, Ar5, Pe4, Pe5, Pit11 et Pit16 se distinguent largement de celles des puits Ip2, Osp5 et Osp9 (Tableau III-4 et Figure III-9). La conductivité électrique moyenne des eaux du premier groupe est proche de celles des sources avec une moyenne minimum de $64 \pm 5,73 \ \mu\text{S cm}^{-1}$ pour les eaux du forage Pe5 et un maximum observé pour Pe4 (177 \pm 20,65 $\mu\text{S cm}^{-1}$). En revanche, la minéralisation des eaux de la seconde classe est beaucoup plus élevée que la gamme généralement observée sur le massif de l'Ursuya. La minéralisation moyenne est de 265 \pm 17,29 $\mu\text{S cm}^{-1}$ dans les eaux de Ip2, 326 $\mu\text{S cm}^{-1}$ pour Osp5 (1 seule mesure) et 374 \pm 39,39 $\mu\text{S cm}^{-1}$ pour Osp9.

Les diagrammes de Piper représentés sur la Figure III-10 permettent d'observer les différents types d'eau présents au sein de l'aquifère de l'Ursuya. Les eaux des sources C3, Ar1, H2, et Esp sont de type Ca-HCO₃. Les eaux émergeants des sources H20, Ip6, La10c, Mac, Pe18, Sc2 sont de type Na-Cl. Pour les sources La16l, La7l, et Se3, les eaux sont de type Na-HCO₃ et pour Sc4, elle est de type Ca-Cl. Pour les forages, les eaux sont toutes de type Ca-HCO₃, à l'exception de celles captées par le forage Pe5 qui sont de type Na-Cl. Les diagrammes de Stiff représentés sur la Figure III-11 montrent la répartition géographique de ces différents types d'eaux. Cette représentation permet de mettre en évidence le caractère non aléatoire de cette répartition. En effet, les eaux de faciès similaires sont géographiquement proches. Ceci s'explique en partie par les différentes lithologies rencontrées sur le massif. Nous verrons dans les paragraphes suivant que la minéralisation des eaux du massif de l'Ursuya est fortement liée aux matériaux en présence. Enfin, les diagrammes de Schöeller-Berkaloff représentés sur la Figure III-12 résument parfaitement cette forte variabilité géographique rencontrée sur le massif de l'Ursuya. Les concentrations observées sont très différentes en fonction des points de mesure, de même que les ions dominants.



Figure III-10. Diagrammes de Piper basés sur la minéralisation moyenne des eaux de sources (en haut) et des eaux de forages (en bas)



Figure III-11. Diagrammes de Stiff des eaux de forages (en bas) et des eaux de sources (en haut). L'échelle de concentration est différente entre les deux figures et la géologie est précisée par le fond gris (gneiss basiques) et le fond blanc (paragneiss)





3.1.2. Variabilité temporelle de la qualité de l'eau souterraine

Les écarts types des paramètres physico-chimiques des concentrations en ions majeurs mesurées mensuellement sur l'ensemble des points de suivis sont présentés dans le Tableau III-4. Ces écarts types sont particulièrement faibles dans leur majorité et les coefficients de variations correspondant dépassent rarement 10 % pour les sources. Seules quelques valeurs sont significativement élevées.

Pour les forages, les profondeurs échantillonnées ont souvent été modifiées suite à des difficultés techniques rencontrées lors des prélèvements. Les paramètres mesurés n'étant pas forcément stables le long de la colonne d'eau, les variations de concentrations mesurées sont donc en partie imputables aux différences de niveaux prélevés. D'autre part, les paramètres physico-chimiques, et en particulier la température, ont été mesurés à l'extérieur du forage et sont donc largement influencés par les conditions climatiques atmosphériques au moment de la mesure.

Les paragraphes suivant détaillent ces variations temporelles pour les différents paramètres physico-chimiques mesurés et pour les ions majeurs.

3.1.2.1. La conductivité électrique

Contrairement à la variabilité spatiale décrite dans le paragraphe 3.1.1, la conductivité électrique varie peu au cours d'un cycle hydrologique, pour la majorité des points de mesures. Les écarts types de la conductivité électrique (Tableau III-4) sont compris entre $\pm 1.7 \ \mu\text{S cm}^{-1}$ (source Ar1) et \pm 9,8 μ S cm⁻¹ (source Sc4) pour les eaux de source et entre \pm 5,73 μ S cm⁻¹ (forage Pe5) et \pm 39,39 μ S cm⁻¹ (forage Osp9) pour les eaux des forages. Ces variations sont présentées sur la Figure III-13. Cette dernière permet d'observer de légères variations concomitantes pour les eaux des sources C3, H2, Sc4, Pe18 et Ip6 dans une moindre mesure et pour les eaux des forages Ip2, Osp9 et Pe4. L'observation de l'évolution de la minéralisation en parallèle de la pluviométrie permet d'observer la relation existant entre ces deux paramètres. Ainsi, pour ces points de mesures présentant les plus fortes variabilités temporelles, un phénomène de dilution semble exister. En effet, les phases pendant lesquelles la conductivité électrique croît correspondent à des périodes au cours desquelles la pluviométrie est la plus faible. Au contraire, la minéralisation globale diminue pendant les mois les plus pluvieux. L'évolution de la conductivité électrique des eaux de ces sources peut donc être attribuée à des infiltrations d'eau peu minéralisée, récemment infiltrée, qui se mélange avec les écoulements plus anciens.

Le pas de temps mensuel de prélèvement est trop large pour évaluer l'impact des événements pluvieux individuels, de même que le temps de réponse de la minéralisation de l'eau souterraine. Certaines des eaux concernées par ces variations importantes ont fait l'objet de mesures de temps de séjour (paragraphe 3.1.4). Parmi elles, Ip6, H2 et les trois forages concernés ne montrent pas d'effets de mélange avec des eaux récentes. Dans ce cas, les variations de conductivité observées peuvent être attribuées à des écoulements isolés, actifs seulement en période pluvieuse. Pour les eaux présentant de faibles variabilités, un effet tampon de l'aquifère peut être avéré, avec des temps de résidence plus longs dans le sous sol.



Figure III-13. Variations temporelles de la conductivité électrique des eaux de sources et de forages et pluviométrie hebdomadaire

3.1.2.2. <u>Le pH</u>

Comme la conductivité électrique, le pH des eaux souterraines prélevées varie très peu au cours de l'année. Les écarts types (Tableau III-4) sont compris entre $\pm 0,10$ (source Ar1) et $\pm 0,30$ (forage Pe5). La Figure III-14 permet d'observer les variations de pH mesurées au cours de cette étude. Pour les eaux de sources, quatre périodes se distinguent au cours des deux cycles hydrologiques de mesures. Ainsi, d'avril à juin 2010, août à octobre 2010, mars à mai 2011, et août à novembre 2011, l'ensemble des eaux de sources présentent leurs valeurs de pH les plus fortes. Les périodes citées ci-dessus peuvent être légèrement décalées en fonction des points de prélèvement. Il semble donc qu'au cours d'un cycle, une variation saisonnière des valeurs de pH sont les plus élevées et les valeurs sont les plus faibles durant l'hiver et l'été.

En été, les valeurs de pH les plus faibles peuvent être attribuées à une forte production de CO_2 dans le sol, liée à une activité biologique intense. En hiver, la hausse de pression partielle en CO_2 en réponse aux importantes précipitations est responsable des faibles valeurs de pH. Au printemps et à l'automne, malgré des hauteurs de précipitations non négligeables, l'activité biologique dans le sol est diminuée par rapport à l'été et la production de CO_2 reste faible, entrainant des valeurs de pH plus fortes.

Pour les eaux de forages, les mesures n'ont été effectuées que pendant un seul cycle hydrologique. Il n'est donc pas possible de mettre en évidence des périodes d'évolutions récurrentes d'une année à l'autre. D'autre part, les prélèvements ont été réalisés à des profondeurs variables ce qui peut influencer les valeurs de pH mesurées. Néanmoins, une différenciation importante peut être faite entre les pH des ouvrages Pe4 et Pe5 captant des formations de socle (ou du profil d'altération associé) et ceux des ouvrages Ip2 et Osp9 captant des calcaires métamorphiques. Les eaux issues de ces deux ouvrages sont en effet les seules à présenter des pH légèrement basiques, proches de la neutralité. L'ensemble des eaux prélevées par ailleurs présentent en effet des pH légèrement acides. Les pH des eaux des forages Ip2bis et Osp9 (respectivement 7,78 et 7,46 en moyenne) sont caractéristiques d'eaux souterraines s'écoulant au contact de matériaux calcaires.

3.1.2.3. La température

Avec des écarts types compris entre $\pm 0,09$ °C pour l'eau de la source Mac et $\pm 2,92$ °C pour l'eau du forage Osp9 (Tableau III-4), la température est le paramètre qui présente les variations les plus importantes. Ces variations sont représentées sur la Figure III-15.

Les mesures effectuées sur les eaux de sources montrent clairement une évolution saisonnière de la température des eaux souterraines. Au cours des deux cycles de mesure, ces dernières croissent de février à septembre puis diminuent pour atteindre un minimum entre février et mars, suivant les points de mesure.







Figure III-15. Variations temporelles de la température des eaux de sources et de forages et pluviométrie hebdomadaire

Pour les eaux de forages, la température minimum est atteinte en décembre 2010 et le maximum est observé en avril pour Pe5, en septembre pour Pe4 et Osp9 et en juin pour Ip2. Pour des raisons techniques, les températures des eaux de forages ont été mesurées à l'extérieur du puits, après le prélèvement. Il est donc probable que la température extérieure ait une influence sur la mesure effectuée.

Toutefois, ces résultats montrent une forte amplitude thermique au cours de l'année induite par les changements saisonniers de la température atmosphérique. Le pas de temps de mesure est cependant trop large pour observer la réactivité de ce paramètre aux évènements climatiques individuels comme les épisodes pluvieux du mois de juillet 2011.

3.1.2.4. Les ions majeurs

Les variations des concentrations en anions (HCO_3^- , CI^- et NO_3^-) sont présentées sur la Figure III-16 et celles des concentrations en cations (Ca^{2+} , Mg^{2+} et Na^+) sur la Figure III-17. Les évolutions observées sont faibles pour l'ensemble des éléments. Les concentrations mesurées sont parfois proches de la limite de détection, et les variations souvent voisines de la gamme d'incertitude. Quelques observations, détaillées ci-après, peuvent néanmoins être faites.

Concernant les bicarbonates, les écarts types sont compris entre $\pm 0,93 \text{ mg L}^{-1}$ (coefficient de variation de 6,2 % ; source La16l ; Tableau III-4) et $\pm 13,01 \text{ mg L}^{-1}$ (coefficient de variation de 9,4 % ; forage Ip2 ; Tableau III-4). Ces variations, visibles sur la Figure III-16, sont peu significatives.

Concernant les chlorures, les écarts types varient entre $\pm 0,84 \text{ mg L}^{-1}$ (coefficient de variation de 9,05 % ; source Ar1 ; Tableau III-4) et $\pm 3,51 \text{ mg L}^{-1}$ (coefficient de variation de 30,5 % ; source Ip6 ; Tableau III-4). La variabilité est donc plus importante pour les ions chlorures. Elle semble suivre une évolution saisonnière avec les valeurs les plus élevées entre juillet 2010 et septembre 2010 pour les eaux de sources et au mois de juin 2011 pour les forages Ip2, Pe4 et Pe5 (Figure III-16). Cette augmentation des concentrations en Cl⁻ dans les eaux de sources au cours de l'été 2010 n'est pas observée en 2011. Les ions chlorures ayant une origine purement atmosphériques, ce phénomène peut s'expliquer par des valeurs d'évapotranspiration plus importante en été (chapitre 2). L'enrichissement et donc les concentrations en chlorure des eaux infiltrées sont alors plus importants (ce paramètre sera développé dans le paragraphe 3.2.1.1). L'été 2011 semble relativement atypique avec un mois de juillet très pluvieux. Il est cependant important de nuancer cet effet estivale compte-tenu des faibles amplitudes des variations observées (de l'ordre de 5 mg L⁻¹ au maximum). Les concentrations en chlorures élevées dans les eaux du forage Osp9 sont attribuées à une origine anthropique.

Les concentrations en nitrates sont globalement faibles, mis à part dans quelques secteurs exposés à des activités agricoles, notamment les sources Ip6, La10c, Ar1, Sc4, La71 et Pe18 et les forages Pe4 et Osp9. Les concentrations en NO_3^- , quasi nulles dans les eaux captées par Osp9, s'expliquent par un phénomène de dénitrification qui sera détaillé dans le paragraphe 3.2.1.1. Les variations observées (Figure III-16) semblent relativement aléatoires et doivent être mises en relation avec l'occupation des sols et les activités en présence d'une part, et avec de faibles activités microbiennes de réduction des nitrates en hiver d'autre part.

Les concentrations en calcium sont particulièrement stables pour l'ensemble des eaux suivies. Les écarts types sont compris entre \pm 0,78 mg L⁻¹ (source Mac, Tableau III-4) et \pm 5,68 mg L⁻¹ pour les eaux du forage Ip2 (Tableau III-4). La diminution des concentrations de l'ensemble des points de mesure à partir de novembre 2010 (Figure III-17) peut être attribuée à un artefact de mesure dû en particulier au renouvellement de la colonne de chromatographie ionique. Les concentrations en Mg²⁺ sont également très stables avec des amplitudes de variations comprises entre 0,87 mg L⁻¹ (forage Pe5 ; Figure III-17) et 2,60 mg L⁻¹ (forage Pe4 ; Figure III-17). La moyenne des amplitudes est de 1,70 mg L⁻¹. Dans ce contexte, il est une nouvelle fois difficile de conclure quant à la représentativité de ces variations, les différences observées étant dans la gamme d'incertitude de la mesure. La même constatation peut être faite à propos des ions sodium (Figure III-17). Les variations les plus significatives concernent des amplitudes supérieures à 3 mg L⁻¹ pour les eaux des sources Sc2 et Sc4 et celles des forages Osp9 et Pe4. Néanmoins, ces différences restent particulièrement faibles et il semble difficile de les interpréter comme des variations naturelles des propriétés chimiques de l'eau.

3.1.2.5. <u>Bilan sur les évolutions temporelles des paramètres physico-</u> <u>chimiques</u>

Il semble donc que la physico-chimie des eaux souterraines mesurées soit relativement stable au cours de l'année. Seule la température montre des variations importantes sur l'ensemble des points de mesure au cours des deux cycles hydrologiques de mesure. La conductivité électrique et le pH présentent également des évolutions cycliques, en lien direct ou indirect avec les variations climatiques au cours de l'année.

Concernant les ions majeurs, des hypothèses ont été avancées à propos des évolutions annuelles des concentrations. Cependant, la précision analytique ne nous permet pas d'établir rigoureusement de cycles de variations. Dans ce contexte, les concentrations mesurées sont parfois proches de la limite de détection, et les variations observées voisines de la gamme d'incertitudes. Des interprétations de ces variations comme des modifications du signal chimique de l'aquifère pourraient donc être erronées.

L'utilisation d'appareil de mesure plus précis de types ICP (Induced coupled Plasma) ainsi qu'un pas de temps de mesures plus restreint nous auraient permis d'observer l'évolution temporelle des concentrations en ions majeurs de façon plus précise. Malgré tout, les mesures effectuées au cours de cette étude mettent bien en évidence une certaine stabilité du signal chimique. Nous verrons dans les paragraphes suivant que cette stabilité peut s'expliquer par les temps de séjour des eaux au sein de l'aquifère du massif de l'Ursuya. Compte-tenu des faibles variations temporelles décrites dans ce paragraphe, nous n'utiliserons que les moyennes présentées dans le Tableau III-4 par la suite.



Figure III-16. Variations temporelles des concentrations en bicarbonates, chlorures et nitrates des eaux de sources et de forages et pluviométrie hebdomadaire



Figure III-17. Variations temporelles des concentrations en calcium, magnésium et sodium des eaux de sources et de forages et pluviométrie hebdomadaire

3.1.3. Estimation des températures de recharge et de l'excès d'air

Les concentrations en gaz nobles (Ne et Ar) ont été utilisées afin d'estimer les températures de recharge et l'excès d'air dans les eaux prélevées (Herzberg et Mazor, 1979 ; Heaton et Vogel, 1981 ; Busenberg *et al.*, 1993). La répartition des points de mesures en relation avec l'excès d'air et la température de recharge est observable sur la Figure III-18. D'autre part, le Tableau III-5 récapitule l'ensemble des concentrations en gaz nobles mesurées. Les concentrations en Ne varient entre 9,38 10^{-9} mol L⁻¹ et 1,63 10^{-8} mol L⁻¹ et les concentrations en Ar entre 1,62 10^{-5} mol L⁻¹ et 2,05 10^{-5} mol L⁻¹ (Tableau III-5). La Figure III-18 permet également d'observer les différences entre les eaux issues des sources de celles prélevées en forage. La température de recharge moyenne estimée dans les forages est de 11 °C. Pour les eaux de source elle est de 12 °C.

L'excès d'air mesuré est compris entre 1,5 mL L^{-1} et 11 mL L^{-1} avec une moyenne de 6 mL L^{-1} . Deux groupes peuvent être distingués vis-à-vis de l'excès d'air. Les excès d'air supérieurs à 5 mL L^{-1} (sources C3, H2, H20, Ip6, La10c, Mac et Pe18 et les eaux des forages Ar3, Pit11, Ar5, Ip2, Osp5 et Pe5) signifient que de l'air a été piégé lors d'une recharge rapide, au travers de fractures très perméables (Busenberg et Plummer, 1992 ; Dunkle *et al.*, 1993, Koh *et al.*, 2007). Les quatre sources émergeant de la roche fissurée (C3, H20, Mac et La10c) appartiennent à ce groupe. Les valeurs d'excès d'air inférieures à 5 mL L^{-1} définissent la seconde classe. Parmi elles, les eaux des puits Pit16 et Pe4 et de la source La71 ont des excès d'air très faibles (de 1,5 mL L^{-1} à 2,5 mL L^{-1}). Entre ces deux extrêmes, les eaux de La16l, Pe5 et Osp9 présentent des excès d'air entre 3,5 mL L^{-1} et 5 mL L^{-1} .



Ne (mol.L-1)

Figure III-18. Concentrations en gaz dissous et estimation des températures de recharge et de l'excès d'air des eaux souterraines

Tableau III-5. Concentrations en gaz dissous et en tritium (N.M. : Non Mesuré)										
Turne	Nom	^{3}H	Ne	Ar	SF_6		CFC (pptv)		
Туре	Nom	(UT)	$(mol.L^{-1})$	$(mol.L^{-1})$	(pptv)	12	11	113		
	AR1	$2,6 \pm 0,6$	$1,65 imes 10^{-8}$	$1,79 imes 10^{-5}$	6,45	398,4	186,8	58,5		
	C3	$2{,}9\pm0{,}6$	$1,37 imes10^{-8}$	$1,79 imes10^{-5}$	4,77	509,7	227,4	74,6		
	H20	$3,6 \pm 0,3$	$1,43 imes 10^{-8}$	$1,\!80 imes10^{-5}$	5,03	453,5	224,7	71,5		
	H2	$3,1 \pm 0,3$	$1,37 imes 10^{-8}$	$1,86 imes 10^{-5}$	5,44	556,4	239,1	83,8		
	Ірб	$3,6 \pm 0,3$	$1,46 \times 10^{-8}$	$1,84 imes 10^{-5}$	2,25	526,0	246,2	76,9		

 $1,77 \times 10^{-5}$

 $1,79 \times 10^{-5}$

 $1,62 \times 10^{-5}$

5.69

6,38

476,7

554,0

232,9

200,5

71,5

71,5

68,8

70,6

N.M.

58,4

N.M.

N.M.

N.M.

84,1

61

46,7

55,2

9,1

6,2

62,9

73,2

66

 $1,26 imes 10^{-8}$

 $2,22 \times 10^{-8}$

 $1,02 \times 10^{-8}$

Chapitre III. Caractérisation physico-chimique et temps de séjour

$2{,}8\pm0{,}6$ 7,39 212,1 456,6 $1,74 \times 10^{-5}$ Mac $3,1 \pm 0,4$ $1,23 \times 10^{-8}$ 5,92 492,9 239,5 Esp $3,2 \pm 0,5$ N.M. N.M. N.M. N.M. N.M. $3,1 \pm 0,5$ $1,39 \times 10^{-8}$ $1,80 \times 10^{-5}$ 4,31 480,4 208,4 Pe18 Sc2 $3,0 \pm 0,5$ N.M. N.M. N.M. N.M. N.M. Sc4 $2,8 \pm 0,5$ N.M. N.M. N.M. N.M. N.M. $3,4 \pm 0,5$ N.M. N.M. N.M. N.M. N.M. Se3 $1,64 \times 10^{-8}$ $1,98 \times 10^{-5}$ Ar3 $3,0 \pm 0,5$ 4,7 577,1 245,5 1.25×10^{-8} 1.82×10^{-5} $3,3 \pm 0,3$ 5,41 493,2 219,5 Ar5 $1,38 \times 10^{-8}$ $1,87 \times 10^{-5}$ Ip2 $3,4 \pm 0,5$ 5,8 456,6 212,1 $1,33 \times 10^{-8}$ $1,83 \times 10^{-5}$ 263,4 Osp5 $3,7 \pm 0,3$ 5,58 432,9 Forages Osp9 $3,0 \pm 0,3$ $1,12 \times 10^{-8}$ $1,71 \times 10^{-5}$ 9,75 321,3 24,4 $1,04 \times 10^{-8}$ $1,67 \times 10^{-5}$ Pe4 $3,3 \pm 0,5$ 3,26 158,8 12,2 Pe5 $2,9 \pm 0,4$ 1.14×10^{-8} 1.71×10^{-5} 4,55 465,7 214,5 1.64×10^{-8} $2,05 \times 10^{-5}$ Pit11 $3,0 \pm 0,5$ 4,65 570,3 231,5 $3,3 \pm 0,5$ $1,38 \times 10^{-8}$ $1,95 \times 10^{-5}$ 6,09 231,2 Pit16 524,6

Т

 $3,3 \pm 0,5$

 $2,5 \pm 0,5$

La10c

La16l

La7l

Sources

3.1.4. Evaluation des temps de résidence

Des eaux jeunes 3.1.4.1.

Les concentrations en tritium mesurées dans l'ensemble des échantillons prélevés sont présentées dans le Tableau III-5 et sur la Figure III-19. Les concentrations observées sont comprises entre 2,5 \pm 0,5 UT et 3,7 \pm 0,3 UT avec une valeur moyenne de 3,1 \pm 0,4 UT. Ces valeurs sont proches de la moyenne observée dans les pluies à Dax, station située à une cinquantaine de kilomètres de la zone d'étude. Cette station est la seule pour laquelle les concentrations en tritium des eaux de pluies soient connues à proximité du massif de l'Ursuya. Sept échantillons ont été prélevés entre 1997 et 1998 et une moyenne de 3,1 UT a été obtenue (Petelet-Giraud et al., 2005 ; Jirakova et al., 2009). Les concentrations en tritium des pluies et celles des eaux souterraines du massif de l'Ursuva sont très proches (Figure III-19), avec une valeur moyenne égale, indiquant une recharge de l'aquifère relativement récente.



Figure III-19. Concentrations en ³H mesurées dans les eaux souterraines du massif de l'Ursuya et dans les eaux de pluies à Dax

3.1.4.2. <u>Des temps de séjour hétérogènes</u>

Les concentrations en CFCs et SF_6 mesurées dans les eaux souterraines du massif de l'Ursuya varient entre 2,25 pptv et 9,75 pptv pour le SF₆, entre 158,8 pptv et 577,1 pptv pour le CFC-12, entre 12,2 pptv et 263,4 pptv pour le CFC-11 et entre 6,2 pptv et 84,1 pptv pour le CFC-113 (Tableau III-5).

Le Tableau III-6 présente les âges apparents calculés suivant les trois modèles présentés dans le paragraphe 2.3.4 ainsi que le résultat choisi. Ce choix est basé sur les conditions géologiques et hydrogéologiques du point de prélèvement ainsi que sur la validation par un maximum de traceurs. Le modèle piston donne les meilleurs résultats pour l'ensemble des traceurs utilisés. Il est le plus adapté pour quatre sources (eau récente à 22 ans) et cinq forages (10 ans à 42 ans). Le modèle de mélange binaire est le plus approprié pour deux sources (mélange entre 30 % et 45 % d'eau de 25 ans avec une eau récente) et quatre forages (5 % à 95 % d'eau récente mélangée avec une eau de 25 ans). Enfin, le modèle exponentiel est le meilleur pour les quatre sources émergeant de la roche fissurée (C3, H20, Mac et La10c ; MRT entre 10 ans et 15 ans ; Tableau III-6).

Une dégradation du CFC-11 et du CFC-113 est suspectée dans les eaux du forage Osp9. Une dégradation microbienne est envisagée suivant les processus décrits dans le paragraphe 2.3.5.5. Dans ce cas, seul le CFC-12 a pu être pris en compte pour le calcul de l'âge apparent.

Tableau III-6. Age apparent, MRT et proportions d'eau récente et ancienne calculées suivant les trois modèles de mélanges appliqués et choix du modèle (résultat en gras). Le terr
eau récente fait référence à un âge apparent entre 0 et 10 ans et le terme eau ancienne se rapporte à un âge supérieur à 50 ans.

Type	Nom	Modèle piston (années)	Modèle exponentiel (MRT)	Mélange binaire	Commentaires/conclusions
	AR1	26 (invalide pour SF ₆)	25 (invalide pour SF ₆)	Eau récente + 30 % d'eau ancienne	Les 4 traceurs sont cohérents seulement avec le mélange binaire
	C3	20	11	Eau récente + 10 % d'eau ancienne	Les 3 modèles sont cohérents mais la nappe est libre (roche fissurée)
	H20	20 (invalide pour SF ₆)	15	Eau récente + 10 % d'eau ancienne	Les 3 modèles sont cohérents mais la nappe est libre (roche fissurée)
	H2	24	10 (invalide pour CFC-12 et	Eau récente + 5 % d'eau ancienne	Les 4 traceurs sont cohérents seulement avec le modèle piston
			CFC-113)	(valide seulement pour CFC-11)	
	Ip6	20	8 (invalide pour SF ₆)	Invalide	Les 4 traceurs sont cohérents seulement avec le modèle piston
Sources	La10c	18 (invalide pour SF ₆)	14	Eau récente + 8 % d'eau ancienne	2 modèles sont cohérents mais la nappe est libre (roche fissurée)
	La16l	Eau récente	Invalide	Eau récente + 5 % d'eau ancienne	Les 4 traceurs sont cohérents seulement avec le modèle piston
				(valide seulement pour CFC-113)	
	La7l	22 (invalide pour SF ₆)	Invalide	Invalide	3 traceurs sont cohérents seulement avec le modèle piston
	Mac	18 (invalide pour SF ₆)	13	Eau récente + 10 % d'eau ancienne	2 modèles sont cohérents mais la nappe est libre (roche fissurée)
	Pe18	24 (invalide pour SF ₆)	Invalide	Eau récente + 45 % d'eau de 25 ans	Les 4 traceurs sont cohérents seulement avec le mélange binaire
	Ar3	10	Invalide	Invalide	Les 4 traceurs sont cohérents seulement avec le modèle piston
	Ar5	24 (invalide pour SF ₆)	17 (invalide pour SF ₆ et CFC-12)	Eau récente + 20 % d'eau de 30 ans	Les 4 traceurs sont cohérents seulement avec le mélange binaire
	Ip2bis	26	Invalide	Invalide	Excès en SF ₆ (non utilisé)
					Les 3 CFC sont cohérents seulement avec le modèle piston
	Osp5	23	25 (seulement valide pour CFC-	Eau récente + 25 % d'eau ancienne	Excès en SF ₆ (non utilisé)
			113)	(valide seulement pour CFC-113)	Les CFC sont cohérents seulement avec le modèle piston
	Osp9	30	200	Invalide	Excès en SF ₆ , dégradation des CFC-11 et 113 (seulement le CFC-12
Fougoog					est utilisé). Le traceur est cohérent pour les modèles exponentiels et
Forages					piston mais le MRT calculé est incohérent
	Pe4	42	200 (seulement valide pour CFC-	Invalide	Les 4 traceurs sont cohérents seulement avec le modèle piston
			11 CFC-113)		
	Pe5	24 (invalide pour SF ₆)	Invalide	Eau récente + 45 % d'eau de 25 ans	Les 4 traceurs sont cohérents seulement avec le mélange binaire
	Pit11	Invalide	14 (invalide pour CFC-12)	Eau récente + 15 % d'eau ancienne	Les 4 traceurs sont cohérents seulement avec le mélange binaire
	Pit16	Invalide	Invalide	Eau récente +5% d'eau ancienne	Les 4 traceurs sont cohérents seulement avec le mélange binaire

Une contamination par le SF_6 d'origine terrigène est suspectée pour quelques échantillons (Ip2, Osp5 et Osp9). Les conditions dans lesquelles du SF_6 terrigène peut exister sont présentées dans le paragraphe 2.3.5.6.

3.2. Discussion autour de la minéralisation et des temps de séjour

Les diverses classifications, effectuées au travers des caractéristiques géologiques des points de prélèvements, des analyses physico-chimiques, de l'évaluation de l'excès d'air et de l'âge apparent sont résumées dans le Tableau III-7. Cette classification sera la base d'une discussion ayant pour but de préciser les différents types d'écoulements observés au sein de l'aquifère de l'Ursuya.

3.2.1. Acquisition de la minéralisation

3.2.1.1. Apports du signal d'entrée et processus de minéralisation

Afin de comparer les propriétés chimiques des eaux souterraines avec celles des eaux de recharge, les concentrations des eaux d'infiltration ont été estimées. Un facteur d'enrichissement (FE) dû à l'effet de l'évapotranspiration a été déterminé en prenant en compte les hauteurs annuelles de précipitations ($H_{précipitations}$) et d'évapotranspiration ($H_{évapotranspiration}$) présentées dans le chapitre 2, selon la formule suivante (Appelo et Postma ; 2005) :

 $FE = \frac{H_{pr\acute{e}cipitations}}{H_{pr\acute{e}cipitations} - H_{\acute{e}vapotranspiration}}$

Équation 29

La concentration de l'eau d'infiltration peut ensuite être calculée pour chaque élément :

$$[X] = FE \times [X]_{pr\acute{e}cipitation}$$

avec $[X]_{précipitation}$ la concentration moyenne annuelle de l'élément X dans l'eau de pluie (chapitre 2) et [X] la concentration du même élément dans l'eau infiltrée.

Le facteur d'enrichissement calculé est de 2,31. Les concentrations déterminées pour les éléments Na⁺ (6,45 mg L⁻¹), Mg²⁺ (1,36 mg L⁻¹), Cl⁻ (9,42 mg L⁻¹) et NO₃⁻ (2,92 mg L⁻¹) sont présentées sur la Figure III-20 en parallèle des concentrations observées dans les eaux souterraines. Des concentrations supérieures dans les eaux souterraines indiquent l'existence d'une source de l'élément considéré dans le réservoir souterrain. Une concentration inférieure met en évidence l'existence de processus entrainant un appauvrissement au sein de l'aquifère. Cependant, la méthode utilisée pour déterminer les concentrations dans l'eau d'infiltration peut entrainer une légère incertitude sur ces valeurs. Ainsi, seules les différences réellement significatives seront considérées comme un appauvrissement ou un enrichissement.

Tableau III-	7. Classificatio	n des points de preievements en fonction des caracteristiques geo	ologiques observee	s et des analyses physico-chi	imiques effectuees	
Type	Nom	Résultats de datation	Type d'eau	Excès d'air (mL L^{-1})	<i>Minéralisation</i> ($\mu S \ cm^{-1}$)	Lithologie
	Sc4	Non mesuré	Ca-Cl	Non mesuré	Moy. = 180	Influence anthropique
	C3		Ca- HCO3		$M_{OV} = 61$	Roche fissurée
	H20	Modèle exponentiel	Na-Cl	<u>\</u> 5	Moy. = 01 $Max. = 84$ $Min = 44$	
	Mac	(11 <mrt<15)< td=""><td>25</td></mrt<15)<>		25		
	La10c				WIIII. — 44	
	Pe18	Mélange binaire (Eau récente + 45 % d'eau de 25 ans)		<u>\</u> 5	— Moy. = 93 Max. = 116	
Sources	Ip6	Modèle piston (20 ans)	Na-Cl	- 5		
	Sc2	— Non mesurá		— Non mosurá		
	Se3	Non mesure				
	La71	- Modèle niston (eau récente et de 22 ans)	Na- HCO3	- 5		Altérites
	La161	Modele piston (cau recente et de 22 ans)		< 5	Min. = 71	
	AR1	Mélange binaire (eau récente + 30 % d'eau ancienne)	Ca-HCO3	< 5		
	H2	Modèle piston (24 ans)		> 5		
	Esp	Non mesuré		Non mesuré		
	Pe4	M_{2} (10 + 12 + 12)			$\begin{array}{c} LL \end{array}) \qquad Mineralisation (\mu S \ cm \) \qquad Lth \\ \hline \\ Moy. = 180 \qquad \qquad Infl \\ antl \\ \hline \\ Moy. = 61 \\ Max. = 84 \\ fiss \\ \hline \\ \\ \hline \\ \\ \hline \\ \\ \\ \hline \\ \\ \\ \hline \\ \\ \\ \\ \hline \\$	
	Ar3	— Modele piston (10 et 42 ans)		Æ	Moy. = 117 Max. = 177	Gneiss/
	Pit16		- Ca-HCUS	< 3		
	Pit11	Mélange binaire (eau récente + 5 % à 45 % d'eau de 25				paragneiss
Г	Pe5	à plus de 50 ans)	Na-Cl	~ 5	- WIII. $-$ 04	
Forages	Ar5		Ca-HCO3	- >5		
	Osp9			<5	Mc 201	
	Osp5	$\sum_{i=1}^{n} \left(\frac{1}{2} \left(\frac{1}{2} \right) + \frac{1}{2} \left($	Ca-HCO3	. 5	- Moy. = 321	
	Ip2	Niodele piston (20 a 30 ans)		>)	$\frac{1}{2}$	Cipolins
	*				101111. = 3/4	

____ . . 1



Figure III-20. Histogramme des concentrations en Na⁺, Mg²⁺, Cl⁻ et NO₃⁻ dans les eaux souterraines (et écart types correspondants) mis en parallèle avec les concentrations de la pluie efficace (traits en pointillé)

La Figure III-20 permet de mettre en évidence l'existence de sources de sodium dans le réservoir souterrain. En effet, même si une majorité des échantillons d'eaux souterraines présentent des concentrations équivalentes avec les eaux de recharges, six échantillons sont largement plus chargés en Na⁺ (les eaux des sources Sc4, Ip6 et La7l et des forages Ip2, Osp9 et Pe4). Cet enrichissement peut être attribué à l'altération des minéraux silicatés (Berner et Berner, 1987 ; Negrel *et al.*, 2007) riches en sodium tels que l'albite selon l'Équation 19 par exemple.

Cette altération, et l'enrichissement en sodium de l'eau qui l'accompagne sont facilités par de longues durées d'interactions eau-roches. Les eaux concernées par cet enrichissement font effectivement partie des plus anciennes (Tableau III-6). La relation entre l'âge apparent et la minéralisation des eaux sera développée dans le paragraphe 3.2.2.

Les concentrations en Mg^{2+} des eaux souterraines sont quant à elles majoritairement supérieures à celles des précipitations efficaces. Les sources de magnésium sont nombreuses dans les minéraux constitutifs des gneiss et des paragneiss du massif de l'Ursuya. Ainsi, la biotite, les amphiboles ou encore la cordiérite font partie du cortège de minéraux au contact de l'eau souterraine au sein de cet aquifère (Boissonnas *et al.*, 1974 ; James *et al.*, 2009). L'enrichissement des eaux souterraines en magnésium est donc également issu de mécanismes d'interactions eau-roches par des processus d'altération des minéraux tels que la biotite selon l'Équation 23 par exemple.

Une nouvelle fois, le temps de contact entre l'eau et la roche aura une influence prépondérante sur la capacité de l'eau à se charger en magnésium. Les données de datation permettront de corroborer cette hypothèse dans le paragraphe 3.2.2. D'autre part, nous verrons dans le paragraphe 3.2.1.2 que les matériaux en présence jouent également un rôle prépondérant dans la variabilité spatiale de la minéralisation des eaux souterraines rencontrées sur le massif de l'Ursuya.

En ce qui concerne les ions Cl⁻ et NO₃⁻, les processus mis en jeu sont différents. Les concentrations en ions Cl⁻ dans les eaux souterraines sont majoritairement équivalentes à celles des eaux infiltrées. Les seuls points de mesures pour lesquels un enrichissement en chlorures peut être avéré sont les sources Sc4, et les forages Osp5, Osp9 et Pe4. Concernant les nitrates, les concentrations inférieures ou égales à celle du signal d'entrée s'expliquent par une absence d'influence anthropique ou par des processus de dénitrification (Gourcy et al., 2009). Les principales sources de nitrates sont en effet liées à l'utilisation d'engrais et à l'épandage de fumier. Dans des climats tempérés et des terrains occupés par une végétation forestière et/ou herbacés, les concentrations naturelles en NO₃⁻ dans les eaux souterraines sont inférieures à 10 mg L⁻¹ (Einsiedl et Mayer, 2006 ; Foster *et al.*, 1982 ; Bertrand *et al.*, 2010). Les faibles concentrations en nitrates correspondent effectivement à des points de mesures situés dans des secteurs où les activités anthropiques sont inexistantes. L'occupation des sols confirme cette hypothèse, mis à part pour les forages Osp9 et Pe4, situés dans des champs de pâturage. Huit points de prélèvements sont clairement affectés par une influence anthropique avec des concentrations en nitrates supérieures à 10 mg L^{-1} . Parmi eux, seuls les sources Ip6 $(17,6 \pm 4,36 \text{ mg L}^{-1})$, La7l $(17,9 \pm 3,20 \text{ mg L}^{-1})$, Sc4 $(32,0 \pm 5,44 \text{ mg L}^{-1})$ et le forage Osp5 (18,8 mg L^{-1} ; une seule mesure) présentent des concentrations très élevées. Les eaux prélevées en ces points présentent également des concentrations en chlorures élevées, toujours au dessus des concentrations calculées pour les pluies efficaces. D'autre part, une corrélation positive entre les concentrations en Cl⁻ et en NO₃⁻ (r = 0,77) est observée pour ces eaux. L'ensemble de ces indices conduit à imputer une origine également anthropique à l'enrichissement en chlorure observé dans ces eaux de sources et forages (Saffigna et Keeney, 1977 ; Hamilton et Helsel, 1995 ; Martin et al., 2004).

En ce qui concerne les forages Osp9 et dans une moindre mesure Pe4, cette relation entre les chlorures et les nitrates n'existe pas. En effet, ces ouvrages captent des eaux riches en chlorures (respectivement $18,90 \pm 3,10 \text{ mg L}^{-1}$ et $12,12 \pm 2,02 \text{ mg L}^{-1}$) mais présentent des concentrations en nitrates faibles à très faibles avec des valeurs de $0,18 \pm 1,12 \text{ mg L}^{-1}$ pour Osp9 et $6,30 \pm 4,6 \text{ mg L}^{-1}$ pour Pe4. Cette concentration moyenne en nitrate proche de 0 mg L⁻¹ dans les eaux du forage Osp9, par rapport à une concentration moyenne en chlorures très élevée s'explique par un processus de dénitrification. La réduction des nitrates couplée avec l'oxydation de la pyrite au sein des aquifères est un phénomène bien connu (Strebel *et al.*, 1989 ; Postma *et al.*, 1991 ; Robertson *et al.*, 1996 ; Appelo et Postma, 2005 ; Ayraud *et al.*, 2006 et 2008 ; Tarits *et al.*, 2006 ; Vencelides *et al.*, 2010). La présence de minéraux sulfurés est mentionnée sur le massif de l'Ursuya par Boissonnas *et al.* (1974). La pyrite a effectivement été exploitée dans le proche village d'Itxassou jusqu'en 1954.

Ce processus de dénitrification a lieu dans des conditions anoxiques selon l'équation suivante (Nordstrom et Southam, 1997) :

$$5FeS_2 + 14NO_3^- + 4H^+$$
 Équation 30

$$\approx 7N_2 + 10SO_4^{2-} + 2H_2O + 5Fe^{2+}$$

Cette hypothèse est confirmée par les conditions physico-chimiques observées dans le forage Osp9, avec une saturation en oxygène de l'ordre de 2,3 %. Cette faible saturation en oxygène est observable sur la Figure III-21 qui présente les résultats des diagraphies effectuées dans les forages Osp9 et Pe4 en juillet 2010. D'autre part, la concentration moyenne en sulfates dans les eaux du forage Osp9 est très élevée par rapport à l'ensemble des eaux suivies au cours de cette étude (33,86 ± 3,51 mg L⁻¹; Tableau III-4). L'Équation 30 montre effectivement un enrichissement de l'eau en sulfates au cours du processus de dénitrification. Le même processus de dénitrification peut être présumé pour les eaux du forage Pe4. La saturation en oxygène est nulle à partir de 25 m de profondeur jusqu'au fond du puits (Figure III-21) et la concentration moyenne en SO₄²⁻ est relativement élevée avec une valeur de $14,2 \pm 7,26$ mg L⁻¹.



Figure III-21. Résultats des diagraphies de qualité de l'eau effectuées dans les forages Osp9 et Pe4

3.2.1.2. <u>Précisions des interactions eau-roches</u>

La forte variabilité géographique des paramètres physico-chimiques présentés dans le Tableau III-4 et sur les figures 10 à 12 est donc en partie liée à la mise en place de processus physicochimiques au sein du milieu souterrain ainsi qu'à l'occupation des sols, mais également aux interactions eau-roches. Nous avons vu dans le chapitre précédent que ces interactions eau-roches semblent affecter différemment les eaux échantillonnées.

Les différentes classes de minéralisation définies dans le paragraphe 3.1.1 et résumées dans le Tableau III-7 sont en partie liées aux matériaux rencontrés par l'eau au cours de son parcours dans le sous-sol. Cette relation est illustrée sur les Figures III-22 et III-23.

Pour les eaux de sources, trois classes de minéralisation ont été définies. La première classe concerne les eaux souterraines sous influence anthropique et présentant les minéralisations les plus importantes ($180 \pm 9,68 \ \mu\text{S cm}^{-1}$ en moyenne pour Sc4). La seconde classe regroupe les eaux de sources présentant une conductivité électrique moyenne (moyennes de 71 $\mu\text{S cm}^{-1}$ à 116 $\mu\text{S cm}^{-1}$). Les eaux appartenant à ce groupe sont issues de sources émergeants dans les altérites (Figure III-22 et Tableau III-7). Les sources émergeants dans la zone fissurée définie dans le chapitre 1 sont regroupées dans la troisième classe (Figure III-22 et Tableau III-7). Cette dernière regroupe les eaux les moins minéralisées observées sur le massif de l'Ursuya (44 $\mu\text{S cm}^{-1}$ à 61 $\mu\text{S cm}^{-1}$).



Figure III-22. Box plots présentant la conductivité électrique des eaux souterraines en fonction de la lithologie à l'émergence (les points représentent des prélèvements uniques)

En ce qui concerne les forages, une telle classification est difficile du fait d'un manque de connaissances sur les caractéristiques des horizons exploités et des processus géochimiques discutés dans le paragraphe précédent. Néanmoins, les eaux souterraines circulant dans les gneiss et paragneiss fissurés se distinguent fortement de celles s'écoulant au contact des cipolins (Figure III-23 et Tableau III-7). Les calcaires métamorphiques en question ont été observés pendant la foration (Armand *et al.*, 1995 ; Armand et Triscos, 1997, 1999) et leur influence est clairement marquée sur la géochimie des eaux avec des conductivités électriques (265 μ S cm⁻¹ à 374 μ S cm⁻¹) largement supérieures à celles observées en règle général dans les aquifères de socles. Cette minéralisation élevée est majoritairement dûe aux concentrations en HCO₃⁻, Ca²⁺ et Mg²⁺ (Tableau III-4).

Cette relation entre les matériaux en présence et la minéralisation de l'eau est également valable pour les concentrations en ions HCO_3^- , Ca^{2+} , Mg^{2+} et Na^+ (Figure III-23). Les bicarbonates, le calcium et le magnésium sont en effet des éléments principalement issus des interactions eau-roches. Il a également été démontré dans le paragraphe 3.2.1.1 que des ions sodium peuvent être apportés par l'altération des matériaux silicatés selon l'Équation 19. Les sources émergeants dans les altérites ont des concentrations moyennes en HCO_3^- , Ca^{2+} , Mg^{2+} et Na^+ majoritairement plus fortes que celles s'écoulant uniquement dans la zone fissurée. Cette relation, bien visible sur la Figure III-23, est précisée dans le Tableau III-8.

Tableau III-8. Différences de concentrations en éléments terrigènes entre les eaux issues des altérites et celles issues de la roche fissurée

		Altérites		Zone fissurée			
	Minimum	Moyenne	Maximum	Minimum	Moyenne	Maximum	
$HCO_3^{-} (mg L^{-1})$	11	23	36	5	12	16	
$Ca^{2+}(mg L^{-1})$	4,87	8,40	16,38	1,79	4,02	6,83	
$Mg^{2+}(mg L^{-1})$	2,52	3,66	4,77	1,61	1,93	2,85	
$Na^+ (mg L^{-1})$	6,64	8,28	10,42	5,34	6,19	7,23	

Cette observation est donc valable pour l'ensemble des éléments d'origine exclusivement et partiellement terrigène. Ce gradient de minéralisation est à la fois le résultat de processus d'altérations des silicates différents suivant les matériaux géologiques rencontrés (altérites ou roche fissurée) mais également des conditions de circulation. Ces dernières, et en particulier les temps de séjours, vont être discutées dans le paragraphe suivant.

Cette relation n'est pas observée pour les éléments d'origine purement atmosphérique et/ou anthropique (Figure III-23). Les concentrations en chlorures dans les eaux souterraines sont globalement équivalentes à celles des eaux infiltrées, mis à part dans le cas d'apports anthropiques (source Sc4). Les concentrations en nitrates sont dépendantes de l'occupation du sol et des processus de dénitrification présentés dans le paragraphe 3.2.1.1.



Figure III-23. Box plots présentant les concentrations moyennes en Cl⁻, NO₃⁻, HCO₃⁻, Na⁺, Mg²⁺, et Ca²⁺ des eaux souterraines en fonction de la lithologie à l'émergence (les points représentent des prélèvements uniques)

3.2.2. Relation entre les interactions eau-roches et les âges apparents

La Figure III-24 montre la relation entre la minéralisation des eaux souterraines et l'âge apparent. Il peut sembler difficile de comparer des âges apparents déterminés *via* des modèles de mélanges différents. Néanmoins, la définition de ces modèles (paragraphe 2.3.4) permet cette comparaison.

Sur la Figure III-24, les points correspondent à l'âge apparent pour le modèle piston, au MRT pour le modèle exponentiel et à la valeur de l'âge de la proportion ancienne pour les mélanges binaires (proportion donnée en % sur la figure). Les doubles flèches entre 0 et 10 ans représentent des eaux récentes et les flèches au delà de 50 ans représentent des eaux anciennes (d'âge supérieur à 50 ans). Concernant les MRT représentés sur cette figure, il est important de rappeler qu'il représente l'âge pour lequel 2/3 des lignes d'eaux sont plus récentes. Le mélange exponentiel peut donc être considéré comme un mélange entre une proportion de 66 % d'eau d'âge compris entre 0 année et la valeur du MRT et une proportion de 33 % d'eau plus ancienne que la valeur du MRT.

Une relation entre l'âge apparent et la minéralisation est clairement visible sur cette figure. La gamme de conductivité des eaux souterraines prélevées dans les trois ouvrages forés dans les cipolins est largement supérieure à celle des autres points de mesure. Il est donc difficile de comparer ces trois échantillons avec les 16 autres en ce qui concerne la conductivité électrique. Pour les quatre sources émergeants dans la zone fissurée, les conductivités électriques sont dans la gamme la plus faible observée sur le massif de l'Ursuya (entre 44 μ S cm⁻¹ et 61 μ S cm⁻¹). Le modèle exponentiel est appliqué et le MRT calculé est faible, entre 11 ans et 15 ans. Quand le modèle piston est appliqué, l'âge apparent est clairement corrélé avec la conductivité électrique. L'eau de la source La161 présente un âge apparent faible (0 à 10 ans) et une conductivité électrique parmi les plus faibles observées. Au contraire, l'eau circulant au sein du forage Pe4 a l'âge piston le plus élevé et la plus forte conductivité électrique. Entre ces deux extrêmes, une corrélation positive apparait entre les âges apparents calculés à partir du modèle piston et la minéralisation. Pour les mélanges binaires, l'influence de la proportion d'eau la plus ancienne sur la minéralisation globale est très marquée. Par exemple, les eaux des forages Pit11 et Pit16 ont une faible proportion d'eau ancienne (plus de 50 ans).



Figure III-24. Conductivité électrique et concentrations moyennes en Mg²⁺ en fonction de l'âge apparent (des précisions sont données dans le texte)

Cependant, malgré cette faible proportion, la minéralisation globale est forte pour ces deux points de mesure. Ceci s'explique par une conductivité électrique très forte de la proportion ancienne par rapport à celle du pôle plus récent. De la même façon, la minéralisation plus faible de l'eau de Pit16 par rapport à celle de Pit11 s'explique par une proportion plus faible d'eau ancienne.

L'ensemble de ces informations montrent que le temps de séjour de l'eau au sein du milieu souterrain est un facteur majeur contrôlant la géochimie des eaux souterraines. Cela démontre également que pour un même contexte géologique, plus le temps de résidence est long, plus la minéralisation est forte.

La Figure III-24 permet également l'observation de la relation entre les concentrations moyennes en Mg^{2+} et l'âge apparent. De la même façon que pour la conductivité électrique, il s'établit une corrélation positive entre les concentrations en magnésium et l'âge apparent. Si l'on considère que l'origine du magnésium est exclusivement terrigène (biotite, amphiboles et cordiérite notamment ; Boissonnas *et al.*, 1974 ; Jammes *et al.*, 2009), cette corrélation peut être reliée aux interactions eau-roches qui progressent avec le temps de transit. Les indices de saturations calculés en utilisant le code PHREEQC (Parkhurst et Appelo, 2005) sont tous négatifs (excepté pour la calcite et la dolomite pour les eaux du forage Ip2 : 0,87 et 1,04 respectivement). L'équilibre n'est donc jamais atteint et la dissolution des minéraux est continue tout au long du trajet de l'eau dans le sous-sol. Ceci explique les concentrations plus élevées en Mg²⁺, de même que la minéralisation globale, dans les eaux les plus anciennes ou celles mélangées avec des eaux anciennes. Cette observation est valable pour l'ensemble des éléments d'origine terrigène.

3.2.3. Mise en évidence des différents chemins d'écoulements

3.2.3.1. <u>Cas général</u>

La variabilité spatiale des paramètres physico-chimiques de l'eau souterraine du massif de l'Ursuya peut donc être attribuée à la fois au temps de résidence dans le sous-sol et aux différents matériaux géologiques rencontrés. Ces différentes couches constituant le système aquifère vont également impacter les modes d'écoulement de l'eau souterraine.

Les différentes couches du profil d'altération décrites au chapitre 1 ont chacune leurs propres propriétés hydrauliques, qui définissent les conditions d'écoulement des eaux souterraines. Dans la couche de roche fissurée, l'eau circule majoritairement le long de fissures et de fractures ouvertes, et les écoulements sont principalement gouvernés par les propriétés physiques de la roche et de ses hétérogénéités comme l'ouverture, l'espacement et la connectivité (Chapitre 1 ; Singhal et Gupta, 1999 ; Berkowitz, 2002 ; Cook, 2003 ; Neuman, 2005). Quand la roche fissurée est à l'affleurement, ces conditions sont combinées pour permettre un écoulement rapide des eaux souterraines en conditions non captives. Au contraire, la couche d'altérites agit comme un milieu poreux qui possède une fonction plus ou moins importante d'emmagasinement (Mazurek *et al.*, 1996 ; Taylor et Howard, 2000 ; Bonnet *et al.*, 2001 ; Berkowitz, 2002 ; Aquilina *et al.*, 2004 ; Maréchal *et al.*, 2004 ; Wyns *et al.*, 2004 ; Ayraud *et al.*, 2008) et entraine donc des temps de séjour plus longs.

La géochimie des eaux circulant dans les altérites est caractérisée par des concentrations en éléments terrigènes et une minéralisation globale plus importante, du fait d'un temps de transit plus long et d'une solubilité plus importante des matériaux traversés. Ces temps de séjour et cette minéralisation sont cependant nuancés en fonction du degré d'altération. Les différents degrés d'altération définis dans cette couche (chapitre 1) résultent en des épaisseurs très variables d'altérites et en des propriétés hydrodynamiques plus ou moins favorables à l'écoulement.

Dans le cas d'un degré d'altération faible, les propriétés hydrodynamiques permettent la circulation de fluide dans les altérites, mais également dans l'horizon fissuré sous-jacent. Dans ce cas, un mélange entre des eaux circulant dans ces deux horizons est possible. Lorsque le degré d'altération est fort et l'épaisseur importante, les altérites peuvent être imperméables et agir comme une barrière hydraulique. Dans ce cas, les flux dans cette couche vont être faibles à nuls. Les écoulements souterrains sont alors possibles uniquement dans les matériaux sous-jacents moins altérés ou non altérés (roche fissurée notamment). Dans ce cas, la minéralisation de l'eau est très différente de celle circulant dans la roche fissurée à l'affleurement. Les temps de transit sont plus longs et il est probable que l'eau se soit chargée en minéraux lors de son parcours dans le sous-sol, en traversant une couche d'altérites perméable avant d'atteindre la roche fissurée sous-jacente.

Ces différents milieux et modes d'écoulements sont bien représentés sur le massif de l'Ursuya et peuvent être observés sur la Figure III-25. Celle-ci montre la relation entre les âges apparents (et le modèle de mélange associé) et les horizons d'écoulement.

Dans la zone fissurée à l'affleurement, seul le modèle exponentiel est utilisé et les âges apparents sont proches les uns des autres, avec des MRT entre 10 et 15 ans. Ces valeurs confirment les écoulements rapides et les conditions non captives décrits ci-dessus. La géochimie des eaux souterraines de cet horizon est caractéristique d'un transfert rapide avec une faible minéralisation.

Dans les altérites, le modèle piston et celui du mélange binaire sont appliqués. Quand le degré d'altération est fort, le mélange n'est pas possible entre les eaux présentes dans les altérites et celles circulant dans la roche fissurée sous-jacente. Le modèle piston représente parfaitement cette situation. Sur la Figure III-25, l'âge apparent des eaux des sources H2 et La16l est relativement faible par rapport aux autres sources émergeants dans les altérites. Dans ce cas, nous pouvons conclure à la présence d'altérites de faible épaisseur (du fait de l'érosion par exemple) permettant des écoulements significatifs à faible profondeur malgré un fort degré d'altération. A l'inverse, les mélanges binaires donnent une bonne approximation d'un mélange entre des eaux issues des altérites et de la roche fissurée sous-jacente.

Les âges apparent calculés avec le modèle mélange binaire sur le massif de l'Ursuya sont le résultat d'un mélange entre des eaux circulant dans des altérites faiblement développées et des eaux plus anciennes s'écoulant dans l'horizon fissuré sous-jacent après un long temps de séjour.



Figure III-25. Ages apparents des eaux souterraines émergeants des altérites et de la roche fissurée et captées par les forages

La différence entre ces deux derniers milieux d'écoulement est bien illustrée par la comparaison entre les forages Pe4, Pe5 et la source Pe18. Les investigations menées sur ces trois points de mesures sont détaillées dans le paragraphe suivant.
3.2.3.2. <u>Focus sur un exemple type</u>

Les diagraphies de qualité de l'eau effectuées au sein du puits Pe4 ont mis en évidence l'existence de deux niveaux d'écoulement, sans mélange entre les deux (Figure III-21).

Le premier niveau (0 à 25 m de profondeur) correspond au milieu altéritique avec des eaux présentant une conductivité de 110 μ S cm⁻¹. Cette minéralisation est comprise dans la gamme des eaux de source circulant dans les altérites (Tableau III-7 et Figure III-23).

Le second niveau correspond à l'horizon fissuré sous-jacent aux altérites. Ce niveau a été prélevé pour les mesures de concentrations en CFC et SF₆. La conductivité électrique est plus importante (200 μ S cm⁻¹) et l'âge apparent est élevé (modèle piston : 42 ans). Enfin, un essai de pompage conduit en 2010 a indiqué l'existence de conditions d'écoulement semi-captives. Le processus de dénitrification décrit au paragraphe 3.2.1.1 est un autre indice de ce confinement.

Au contraire, les eaux souterraines au sein du forage Pe5 ont un âge apparent dans la même gamme que les sources émergeant dans les altérites (mélange binaire avec 45 % d'eau de 25 ans), de même que la minéralisation (64 μ S cm⁻¹) et l'ensemble des paramètres physico-chimiques mesurés (Tableau III-4). Ces paramètres sont stables sur toute la colonne d'eau.

Ces deux puits sont géographiquement très proches l'un de l'autre (environ 100 m) ainsi que de la source Pe18 (Figure I-22 et Tableau I-6). De plus, les caractéristiques physico-chimiques des eaux de Pe5 et de Pe18 sont également très similaires (Tableau III-4). Des diagraphies de flux effectuées au cours de l'été 2011 dans le forage Pe5 ont montré que les arrivées d'eau sont localisées dans les 15 premiers mètres sous la surface du sol, dans les altérites. Par conséquent, l'eau émergeant de Pe18 est la même que celle captée par le forage Pe5. Dans ce cas, il n'y a aucun signe de confinement. Le mélange binaire observé dans les eaux de ce puits et de cette source correspond à un mélange entre une eau infiltrée dans des altérites peu développées et une eau plus ancienne circulant dans la roche fissurée sous-jacente.

3.3. Mise en place d'un modèle d'écoulement conceptuel

Sur la base des paramètres physico-chimiques des eaux souterraines, des âges apparents et des différentes situations lithologiques, il est possible de définir trois modes d'écoulement différents pour les sources et deux pour les forages (Figure III-26).

Pour les sources :

- 1) Dans la roche fissurée, quand elle est à l'affleurement, l'eau est faiblement minéralisée et l'âge apparent est jeune. Le modèle exponentiel est le plus approprié avec un MRT autour de 10 ans. La nappe est libre et le flux d'eau souterraine est rapide au travers des fissures et fractures des gneiss et paragneiss. La minéralisation est faible, du fait du temps de contact eau-roches court et de la faible solubilité des matériaux interceptés (Figure III-26-1).
- 2-a) Dans les altérites, les eaux des sources sont plus minéralisées que celles issues de la roche fissurée à l'affleurement et les temps de séjour peuvent être plus longs. Le modèle mélange binaire ou le modèle piston sont possibles. Dans le cas d'un mélange binaire, la couche d'altérites n'est pas assez développée pour engendrer une barrière hydraulique entre les deux horizons (altérites et roche fissurée). Cette couche peut alors être considérée comme un horizon de transition. Cette configuration permet un mélange entre des eaux infiltrées dans un horizon altéritique peu développé et des eaux plus anciennes circulant dans la roche fissurée sous jacente. L'eau plus ancienne est plus minéralisée du fait d'un temps de transit et donc d'une durée d'interaction eau-roches plus importante. La géochimie globale du mélange est fortement influencée par cette eau ancienne. La minéralisation globale et les concentrations en éléments terrigènes sont donc plus fortes (Figure III-26-2 a).
- 2-b) Si les altérites sont assez développées, le mélange entre les deux niveaux d'écoulement est impossible. Le flux d'eau souterraine prend alors place uniquement dans les altérites à travers des chemins d'écoulements isolés avec des temps de séjours variables (modèle piston de 11 ans à 22 ans ; Figure III-26-2 b) et des minéralisations positivement corrélées à l'âge apparent.

Pour les forages :

• 3) Le modèle piston est le plus réaliste pour les forages qui captent les eaux les plus minéralisées. Dans ce contexte, la nappe captée est semi-captive. Les essais de pompages conduits en 2010 dans les ouvrages Ip2, Osp9 et Pe4 le confirment. Les forages exploités n'ont pas fait l'objet d'essais de pompages. Les écoulements se font ici dans la roche fissurée et/ou dans les altérites, mais sans mélange entre les deux. La couche d'altérites est alors assez développée (en terme d'épaisseur comme en terme de degré d'altération) pour empêcher les mélanges. Le temps de séjour est long (26 à 42 ans) dans le cas d'écoulements dans la roche fissurée enfouie (Figure III-26-3). L'âge apparent observé ici peut être relié à celui de la proportion ancienne des mélanges binaires dans les eaux de sources (25 ans à plus de 50 ans ; Figure III-26-2 a).

L'âge apparent est plus faible dans le cas de circulations dans la couche d'altérites susjacentes (10 ans dans le forage AR3). Le temps de contact entre l'eau et la roche définit en partie la minéralisation des eaux. Les minéralisations plus élevées dans les ouvrages forés dans les cipolins sont attribuées aux matériaux en présence, mais le fonctionnement est similaire.

4) La dernière catégorie concerne les forages interceptant des mélanges d'eau (Figure III-26-4). Dans cette situation, les modalités d'écoulement sont similaires à celles observées pour les eaux de sources issues de mélanges binaires (Figure III-26-2 a). La minéralisation globale du mélange est définie par la minéralisation des deux pôles et leurs proportions. Ainsi, une faible proportion d'eau ancienne très minéralisée résulte en un mélange global présentant une forte conductivité électrique comparée à celles généralement observées sur le massif de l'Ursuya.



Figure III-26. Modèle conceptuel des écoulements souterrains dans les altérites et les gneiss et paragneiss du massif de l'Ursuya. Des détails sont donnés dans le texte.

4. BILAN

La comparaison de la géochimie de l'eau de recharge avec celle des aquifères est un outil pertinent permettant de préciser les caractéristiques globales des écoulements souterrains. Dans cette étude, la stabilité du signal géochimique des eaux souterraines s'explique par des conditions de mélanges au sein de l'aquifère de l'Ursuya permettant un lissage des variations chimiques et isotopiques observées dans la pluie.

A l'échelle du cycle hydrologique, les principales différences observées entre le signal d'entrée et les eaux souterraines sont en grande partie expliquées par un gradient altitudinal des compositions isotopiques, une recharge préférentielle en hiver et en automne, des interactions eau-roches et des influences anthropiques plus ou moins importantes, et l'existence de processus physico-chimiques d'oxydo-réduction au sein du milieu souterrain comme le phénomène de dénitrification.

Dans un second temps, l'utilisation combinée des CFCs et SF_6 pour dater des eaux souterraines au temps de séjour peu élevés (quelques années à quelques décennies) s'avère être une approche adaptée, même dans le cas de scénarios de mélanges complexes et avec une faible densité de points de prélèvements. Une caractérisation géologique et hydrogéologique est cependant un pré-requis indispensable pour mener de telles investigations. Le couplage de ces données de datation aux mesures géochimiques et isotopiques fourni des informations précises et précieuses sur les différents modes d'écoulement en présence, en particulier dans le cas d'un système mal connu comme celui de l'Ursuya.

La division des aquifères cristallins selon le profil d'altération décrit dans le Chapitre 1, impacte fortement les conditions hydrodynamiques des circulations d'eaux souterraines. Ainsi, la présence de matériaux d'altération engendre des temps de séjour et des minéralisations plus importants. Le degré d'altération est également un facteur primordial puisque de lui dépend la probabilité de mélanges d'eaux entre les différents horizons de l'aquifère composite. Les écoulements au sein de la roche fissurée sont gouvernés par ces hétérogénéités, fractures et fissures en particulier. En dépit des difficultés d'accès à des informations précises sur ces aspects, des modes d'écoulements différents ont malgré tout été mis en évidence dans cet horizon. Ainsi, lorsqu'il est à l'affleurement, l'eau y circule rapidement et elle est peu minéralisée. Lorsqu'il est captif, les temps de séjour sont plus longs, les minéralisations plus fortes et des mélanges sont possibles avec les écoulements dans les altérites sus-jacentes.

Chapitre IV. Vers une vision quantitative : caractérisation hydrogéologique et modélisation hydrodynamique

L'étude des paramètres physico-chimiques de l'eau souterraine du massif de l'Ursuya a permis d'améliorer la compréhension du fonctionnement de cet aquifère. Cependant, la gestion globale de cette ressource en termes d'exploitation, nécessite également une vision quantitative des écoulements. Celle-ci est présentée dans ce chapitre qui a pour but de préciser les caractéristiques hydrodynamiques des différents horizons en présence, de déterminer les spécificités des flux d'eau souterraine et de proposer un outil d'aide à la gestion de cet aquifère.

L'approche hydrodynamique détaillée dans ce chapitre sera présentée en deux temps. Les premiers paragraphes concernent les différentes investigations de terrain menées dans un but de caractérisation des propriétés hydrodynamiques des horizons captés. Le suivi des variations piézométriques sera également interprété de façon à préciser les modalités d'écoulement au sein de l'aquifère. Dans un second temps, la réalisation d'un modèle numérique hydrodynamique sera présentée. Les différentes étapes de construction de ce modèle seront détaillées et les choix de certains paramètres seront justifiés. Les résultats des simulations en régimes permanent d'une part et transitoire d'autre part permettront de valider la cohérence de ce modèle et apporteront des précisions sur le fonctionnement de l'aquifère. Enfin, l'évolution à moyen terme des écoulements au sein de l'aquifère sera évaluée au regard des modifications climatiques prévues.

1. CARACTERISATION HYDRODYNAMIQUE

1.1.Essais de pompages

1.1.1. Résolution des essais de pompages

Les caractéristiques des essais de pompages réalisés au sein des forages non exploités sont résumées dans le Tableau IV-1. Comme précisé dans le chapitre 1, les méthodes d'interprétations classiques de type Theis et Jacob, développées pour des aquifère homogènes, ne décrivent pas de façon adéquate les circulations au sein de l'aquifère de l'Ursuya. Nous nous sommes donc appuyés sur les concepts de double porosité (Warren et Root, 1963) et sur le modèle d'aquifère semi-captif (Hantush, 1956). Ces deux méthodes d'interprétation sont en effet celles qui correspondent le mieux aux variations de charges observées lors des essais de pompages effectués. Après avoir rappelé le principe de ces modèles d'interprétation, nous présenterons les résultats des tests réalisés.

Tustena I + I culture institutes des essais de pompages enteredes											
Ouvrages		Pompage		Observation de							
	Position de la pompe (m/sol)	Durée (s)	$Q(m^3 h^{-1})$	la remontée (s)							
Pe4	12,76	7680	5	22260							
Pe5	14,70	8040	4,6	7560							
Ip2	18,50	7740	4,5	9540							
Ōsp9	25,00	12780	4,6	9480							

Tableau IV-1. Caractéristiques des essais de pompages effectués

1.1.1.1. <u>Le modèle de double porosité</u>

Selon le concept de double porosité, la formation fracturée est considérée comme une combinaison de deux systèmes : le réseau de fractures et la matrice rocheuse, chacun ayant ses caractéristiques propres. Deux porosités et deux perméabilités sont considérées : la porosité primaire et la perméabilité faible de la matrice, la perméabilité forte et l'emmagasinement faible des fractures. Cette méthode est basée sur les hypothèses suivantes (Kruseman et Rider, 2000) :

- l'aquifère est confiné et d'extension infinie ;
- l'épaisseur de l'aquifère est uniforme sur toute la surface influencée par le pompage ;
- le puits traverse au moins une fracture dans son intégralité ;
- le pompage est à débit constant ;
- avant le pompage, la surface piézométrique est horizontale sur toute la surface qui sera influencée par le pompage ;
- le régime d'écoulement est transitoire.

Parmi les différents modèles développés à partir du concept de double porosité, certains considèrent un régime pseudo-permanent des écoulements entre la matrice rocheuse et les fractures (Warren et Root, 1963). Pour d'autre le régime d'écoulements est supposé transitoire entre ces deux milieux (Kazemi, 1969), et l'interprétation de l'essai de pompage nécessite alors des informations supplémentaires sur les échanges entre les discontinuités et la matrice. Nous avons donc utilisé le modèle d'interprétation de Warren et Root qui présument que la distribution des charges à l'intérieur des blocs de la matrice rocheuse est indéfinie. Les fractures et la matrice présentent chacune des charges hydrauliques propres, moyennées dans un volume élémentaire représentatif (Kruseman et Rider, 2000).

L'ampleur de l'écoulement induit est proportionnelle à la différence de charge hydraulique (Moench, 1984). Ce type de modèle a été utilisé pour déterminer les caractéristiques hydrodynamiques de l'aquifère au droit du forage Ip2. En plus des paramètres classiques (perméabilité K en m s⁻¹, transmissivité T en m² s⁻¹ et emmagasinement S, sans dimension) le concept de double porosité s'appuie sur la définition du coefficient d'interposrosité (λ , sans dimensions) qui définit la capacité du fluide à passer de la matrice rocheuse aux fractures selon la formule suivante :

$$\lambda = \alpha \times r^2 \times \frac{K_m}{K_f}$$
 Équation 31

Avec

 α : facteur de forme, caractéristique de la géométrie de la matrice (sans dimensions) ;

r : rayon du puits (m) ;

 K_m et K_f : respectivement les perméabilités de matrice et de fissures (m s⁻¹).

Le coefficient d'interporosité, le facteur de forme et le rapport de perméabilité sont déterminés par ajustement des rabattements théoriques avec les rabattements observés, de même que les paramètres hydrodynamiques habituels.

1.1.1.2. <u>Le modèle de Hantush</u>

Quand un puits capte une nappe développée dans un aquifère semi-captif, l'eau est extraite non seulement de l'aquifère lui-même, mais également de la couche semi-perméable surincombant. Dans le contexte qui nous intéresse, on comprend que le rôle de couche semiperméable peut être joué par la couche d'altérite surmontant l'horizon capté. Cette épaisseur de matériel peu perméable, issu de l'altération de la roche, possède une forte capacité d'emmagasinement de l'eau précipitée, celle-ci pouvant être transmise au système inférieur par le biais des fissures et fractures développées dans la roche composant le massif. Plusieurs solutions existent pour interpréter les essais de pompages en milieux semi-captifs. La méthode utilisée (Hantush, 1960) prend en compte l'emmagasinement au sein de la formation semi-perméable et est basée sur les hypothèses suivantes (Kruseman et Ridder ; 2000) :

- l'aquifère est semi-captif ;
- l'aquifère et la couche semi-perméable ont une extension infinie ;
- l'aquifère et la couche semi-perméable sont homogènes, isotropes, et d'épaisseur constante sur la surface influencée par le pompage ;
- avant le pompage, la surface piézométrique est horizontale sur toute la surface qui sera influencée par le pompage ;
- le débit de pompage est constant ;
- le puits pénètre toute l'épaisseur de l'aquifère et les écoulements sont horizontaux ;
- les écoulements dans la couche semi-perméable sont verticaux ;
- le rabattement au sein de la couche semi-perméable est négligeable ;
- la couche semi-perméable est incompressible ;
- le régime d'écoulement est transitoire.

Cette méthode prend en compte le paramètre de résistance hydraulique de la couche semiperméable (en secondes) définit par :

$$c = \frac{e_{aquitard}}{K_{aquitard}}$$

Avec

 $e_{aquitard}$: l'épaisseur de la formation semi-perméable (m) ;

 $K_{aquitard}$: la perméabilité de la formation semi perméable (m s⁻¹).

1.1.2. Résultats

Pour les forages Osp9 et Ip2, les résultats ont été interprétés directement au puits de pompage du fait de l'absence de puits d'observation au voisinage. En revanche, la proximité des forages Pe4 et Pe5 (Figure I-22 et Tableau I-6) nous a permis d'utiliser ces derniers comme puits d'observations, afin de nous affranchir des perturbations liées aux effets de puits. Ainsi, le pompage au sein du forage Pe4 a été interprété grâce aux rabattements observés dans Pe5 et inversement. Les méthodes d'interprétations classiques (Theis et Jacob) ont été testées, mais comme attendu celles de Warren et Root et Hantush retranscrivent mieux les rabattements observés (Figure IV-1 et Tableau IV-2).

Équation 32



Figure IV-1. Rabattements observés et simulés (les paramètres déterminés sont présentés dans le Tableau IV-2)

1 abicau 1 v - 2. j	Resume des resultats des e	ssais ut pompages		
	IP2	Osp9	Pe4	Pe5
$K(m s^{-1})$	6,70×10 ⁻⁶	2,20×10 ⁻⁷	$6,75 \times 10^{-5}$	$1,10 \times 10^{-4}$
S	$5,70 \times 10^{-2}$	$2,30 \times 10^{-2}$	$9,50 \times 10^{-5}$	$9,30 \times 10^{-5}$
$T(m^2 s^{-l})$	3,80×10 ⁻⁴	$1,10 \times 10^{-5}$	3,80×10 ⁻³	5,20×10 ⁻³
Méthode	Double porosité	Nappe semi-	Nappe semi-	Nappe semi-
de calcul	(Warren et Root)	captive (Hantush)	captive (Hantush)	captive (Hantush)

Tableau IV-2. Résumé des résultats des essais de pompages

1.1.2.1. Forage Ip2

Le rabattement induit par le pompage est relativement faible (moins de 50 cm ; Figure IV-1) montrant une forte productivité de l'ouvrage liée à une transmissivité de fissures relativement bonne pour ce type d'aquifère $(3,80 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}; \text{Tableau IV-2})$. On trouve souvent dans la littérature des valeurs proches de $1 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ (Taylor et Howard, 2000) et jusqu'à $5 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ (Maréchal *et al.*, 2004) pour des aquifères du même type. Les valeurs de transmissivité comprises entre $1 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ et $1 \times 10^{-1} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ apparaissent en général dans des zones où d'importantes fractures tectoniques sont définies, ces valeurs s'accompagnant de coefficients d'emmagasinement compris entre 1×10^{-3} et 1×10^{-1} (Dewandel *et al.*, 2005). Nous nous trouvons donc dans cette situation avec un coefficient d'emmagasinement de 5,66×10⁻² (Tableau IV-2).

En revanche, la lenteur de la remontée montre la difficulté de l'aquifère à se régénérer, du fait d'une perméabilité relativement faible $(6,67 \times 10^{-6} \text{ m s}^{-1})$. Cette valeur de perméabilité englobe les écoulements qui ont lieu à la fois au sein des fractures et de la matrice, ce qui peut expliquer cette faible valeur. Les valeurs de λ et α sont respectivement de 10 et de 2×10^3 . Selon l'Équation 31, on obtient un rapport K_m / K_f de 0,42. La perméabilité de fracture est donc à peine deux fois plus élevée que la celle de la matrice rocheuse. Il faut cependant noter que la théorie veut que cette formule soit appliquée entre deux puits, c'est-à-dire r correspondant à la distance entre le puits de pompage et un puits d'observation. Malheureusement, nous ne disposons pas de puits d'observations. Ce résultat est donc à nuancer. Nous sommes finalement en présence d'un aquifère fracturé, fortement productif car situé sur une zone très fracturée, mais dont la perméabilité globale ne permet pas une remise à l'équilibre rapide.

1.1.2.2. <u>Forage Osp9</u>

La nappe captée par le forage Osp9 est semi-captive. En effet, le modèle de Hantush pour un aquifère semi-captif est celui qui permet le mieux de corréler les données de rabattements théoriques avec les rabattements observés (Figure IV-1). D'autre part, nous avons vu dans le chapitre 3 que les caractéristiques physico-chimiques de l'eau captée par ce forage montrent des signes de confinement. Cependant, du fait de la très faible résistance hydraulique de la couche semi-perméable déterminée par ajustement des rabattements simulés avec les rabattements observés ($4,40 \times 10^5$ s soit 5 jours), il est clair que le confinement est très léger. Ceci peut être dû à une épaisseur d'altérites faible ou à une perméabilité conséquente de cet horizon. Nous observons une transmissivité moyenne (1×10^{-5} m² s⁻¹), et une conductivité hydraulique particulièrement faible ($2,20 \times 10^{-7}$ m s⁻¹; Tableau IV-2).

La fin de la courbe de rabattement est marquée par une diminution de pente signifiant une alimentation extérieure à l'aquifère. Les eaux de surface peuvent constituer cette limite d'alimentation. En effet, les eaux du ruisseau s'écoulant à quelques mètres en aval du captage ont pu être sollicitées par le pompage. On peut également imaginer la présence d'une fracture plus productrice à proximité du forage qui n'aurait été sollicitée qu'après environ 95 minutes de pompage.

Nous sommes donc ici en présence d'un aquifère semi-captif, les altérites sus-jacentes jouant le rôle d'éponte semi-perméable. Cet horizon peu perméable contient tout de même de l'eau, du fait d'une importante porosité caractéristique des matériaux d'altérations. Cette eau est transmise à l'aquifère proprement dit par la création d'un gradient hydraulique local, engendré par le pompage. Les caractéristiques hydrauliques de l'aquifère capté sont relativement médiocres, malgré l'existence d'une zone d'alimentation cependant difficile à caractériser et à identifier.

1.1.2.3. <u>Forages Pe4 et Pe5</u>

Les forages Pe4 et Pe5 étant peu éloignés l'un de l'autre nous avons pu les utiliser à tour de rôle comme puits de pompage et comme piézomètre d'observation. Ainsi, lors du pompage en Pe4, la descente et la remontée du niveau d'eau ont également été enregistrées au sein du forage Pe5 et inversement. Nous avons fait le choix de présenter les courbes de rabattements (Figure IV-1) et les résultats obtenus aux piézomètres d'observation, afin de nous affranchir des effets de puits pouvant influencer les observations. Les résultats aux puits de pompages sont en effet souvent différents de ceux aux piézomètres car entachés de bruit de fond induit par les pertes de charges quadratiques et les effets pariétaux. Les transmissivités et les coefficients d'emmagasinement calculés sont proches pour les deux ouvrages (Tableau IV-2). Les transmissivités élevées ($3,83 \times 10^{-3} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ pour Pe4 et $5,25 \times 10^{-3} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ pour Pe5) sont caractéristiques d'une fracturation importante contrastant avec les faibles coefficients d'emmagasinement (entre $9,50 \times 10^{-5}$ et $9,33 \times 10^{-5}$). Ces derniers dénotent une faible fonction capacitive du réservoir. Les perméabilités ($6,75 \times 10^{-5} \text{ m s}^{-1}$ et $1,12 \times 10^{-4} \text{ m s}^{-1}$), comme les transmissivités, sont plus élevées que celles observées pour les puits Osp9 et Ip2.

1.1.3. Bilan

Les paramètres hydrodynamiques déterminés par ces investigations permettent de mettre en évidence d'un point de vue physique l'hétérogénéité de l'aquifère de l'Ursuya. Les propriétés hydrodynamiques déterminées mettent en évidence des modalités d'écoulements très variables en fonction des horizons considérés (milieu fissuré, roche altérée poreuse et perméable, altérites plus ou moins perméables en fonction du degré d'altération). Le rôle de confinement des altérites est ici illustré avec des influences plus ou moins importantes suivant la mise en place du profil d'altération (degré d'altération, épaisseur). Les propriétés hydrodynamiques des quatre ouvrages investigués sont peu propices aux écoulements avec des valeurs de perméabilité et/ou des coefficients d'emmagasinement assez faibles.

Toutefois, compte-tenu de la variabilité verticale des matériaux traversés par les forages investigués, il est intéressant de déterminer lesquels d'entre eux sont les plus productifs. Cette information a été évaluée grâce aux diagraphies de productivité.

1.2. Diagraphies de productivité

1.2.1. Diagraphies réalisées

Les diagraphies de production ont été réalisées grâce à un fluxmètre à hélice, de type micromoulinet, permettant d'estimer les vitesses de flux. Ces mesures ont été réalisées avec et sans pompages (Tableau IV-3). Les débits de pompages et la position de la pompe ont été adaptés aux capacités de l'ouvrage. Un équilibre a dû être trouvé afin que le débit soit suffisant pour observer des venues d'eau significatives sans dénoyer la pompe.

Tableau IV-	Tableau IV-3. Mesures de diagraphies de production								
Ormanaa	Mesure de flux naturels	Productivité en pompage							
Ouvrage	Profondeur investiguée	Position de la pompe ; débit	Profondeur investiguée						
Pe4	De –5,0 m/sol à –47,0 m/sol	$-12, 20 \text{ m/sol}; 20 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$	De -17,0 à -47,0 m/sol						
Pe5	De -7,0 m/sol à -42,0 m/sol	-12,20 m/sol; 20 m ³ h ⁻¹	De -18,0 m/sol à -42 m/sol						
Ip2	De -12,20 m/sol à -53,50 m/sol	-15,0 m/sol; 40 m ³ h ⁻¹	De -18,80 à -52,90 m/sol						
Osp9	De -6,20 m/sol à -48,30 m/sol	$-20, 0 \text{ m/sol}; 7,5 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$	De -24,20 à -48,90 m/sol						

La valeur du flux est déterminée par la vitesse de rotation de l'hélice du micromoulinet. Il est donc important de préciser que les vitesses mesurées peuvent être induites par des perturbations liées au passage de la sonde de mesure dans la colonne d'eau. Le diamètre du tubage du forage influence également les vitesses mesurées. Des flux très faibles, inférieurs au m³ h⁻¹, sont donc peu significatifs, en particulier lorsqu'ils sont observés au droit de tubages non crépinés. Les valeurs de production naturelle sont très faibles voir nulles sur l'ensemble des ouvrages investigués (Figure IV-2 et Tableau IV-4). En revanche, sans pouvoir donner une répartition précise des arrivées d'eau, les diagraphies en pompage permettent de mettre en évidence des niveaux productifs.

1.2.2. Résultats des diagraphies de productivité

Concernant le forage Ip2, le débit est produit sur l'ensemble de la zone crépinée (de 22 m/sol à 49 m/sol), celle-ci captant les formations de calcaires métamorphiques. Les flux décroissent avec la profondeur pour atteindre une valeur nulle au droit du tube de décantation. Des volumes d'eau importants sont donc présents dans les formations de cipolins captées par cet ouvrage.



Figure IV-2. Résultats des diagraphies de productivité dans les forages non exploités

Le débit du forage Osp9 est produit exclusivement entre 30 m/sol et 41 m/sol. Aucun flux n'est observé dans la partie la plus profonde des crépines (entre 41 m/sol et 48 m/sol). Une nouvelle fois, les formations métamorphiques observées au sein de cet ouvrage font l'objet d'écoulements souterrains incontestables. Néanmoins, les caractéristiques hydrodynamiques peu favorables (paragraphe 1.1) et le faible débit de pompage durant la mesure (7,5 m³ h⁻¹; Tableau IV-3) nous conduisent à nuancer cette observation.

Au sein du forage Pe4, le débit est produit exclusivement dans les premiers mètres de la zone crépinée, cette dernière n'ayant pas été investiguée dans son intégralité compte-tenu de la position de la pompe durant la mesure. Ainsi, la zone productive observée (17 m/sol à 21 m/sol) est potentiellement plus importante. Les paragneiss altérés observés à cette profondeur sont donc les formations les plus productives au sein de ce forage. Néanmoins, les mesures physico-chimiques (chapitre 3) ont démontré l'existence d'écoulements souterrains au sein des paragneiss non altérés sous-jacents. Ces derniers n'ont pas pu être mis en évidence par les mesures de productivité et sont donc très faiblement productifs.

La mesure de productivité effectuée au sein du forage Pe5 a également été contrainte par le fort rabattement induit par le pompage et donc par la position de la pompe. Celle-ci ne nous à pas permis de mesurer les flux sur la totalité de la zone crépinée. Cependant, il semble que l'intégralité du débit soit produite dans les premiers mètres crépinés. En effet, les flux les plus importants sont entre 18 m/sol et 20 m/sol et ne permettent pas de répondre au débit de pompage (20 m³ h⁻¹; Tableau IV-3). Ceci prouve l'existence de flux plus importants au dessus de la zone investiguée, entre 15 m/sol et 18 m/sol.

		IP2	Osp9	Pe4	Pe5	
Flux naturel	Niveaux productifs	Homogène sur la colonne d'eau	Venues d'eau diffuses face aux crépines (31 à 48 m/sol)	Homogène sur la colonne d'eau	Homogène sur la colonne d'eau	
	Formation	Cipolins	Cipolins	Altérites et Paragneiss altérés/fissurés	Altérites et Paragneiss altérés/fissurés	
Flux en pompage	Niveaux productifs	A partir de 17 m/sol puis décroissant le long de la colonne d'eau	Entre 25 et 41 m/sol	Entre 17 et 21 m/sol	Valeurs légèrement supérieurs entre 18 et 20 m/sol	
	Formation	Cipolins	Cipolins	Paragneiss altérés/fissurés	Paragneiss altérés	

Tableau IV-4. Résumé des résultats de diagraphies de productivité (les coupes géologiques des forages sont disponibles dans le chapitre 1, Figure I-23)

1.2.3. Bilan

L'importante hétérogénéité de l'aquifère de l'Ursuya est une nouvelle fois mise en exergue par les diagraphies de production. Les horizons productifs sont très variables, aussi bien du point de vue de leurs lithologies que des flux observés. Les calcaires métamorphiques sont marqués par la présence de volumes d'eau souterraine importants. De même, les paragneiss altérés semblent plus productifs que les matériaux non altérés et fissurés sous-jacents. Du fait de l'implantation et des caractéristiques techniques des ouvrages investigués, il n'a pas été possible de mesurer directement les flux existant au sein des altérites proprement dites. Cet horizon fait en effet systématiquement l'objet d'un masquage par un tubage plein. En ce qui concerne les forages Pe4 et Pe5, les débits observés font certainement appels à des contributions issues des arènes sus-jacentes lors des pompages. En effet, les flux mesurés ne permettent pas de répondre aux débits prélevés lors des mesures. D'autre part, les diagraphies n'ont pas révélées de flux issus de la formation fissurée, contrairement à ce que les mesures physico-chimiques locales des eaux amenaient à penser (chapitre 3). En ce qui concerne le forage Pe5, un mélange entre une eau récente circulant dans les altérites de surface et une eau de 25 ans provenant de l'horizon fissuré sous-jacent a été établi. Ce mélange s'effectue en amont du forage. En revanche, il a été démontré que les eaux captées par le forage Pe4 ne subissent pas de mélange et deux niveaux d'écoulements séparés ont bien été mis en évidence. Les volumes d'eau présents dans l'horizon de roche fissurée n'ont donc pas été mobilisés par le pompage effectué lors de la mesure de flux.

Les résultats présentés au sein de ces deux premiers paragraphes sont issus de mesures liées à la mobilisation de volumes d'eau par forçage artificiel, *via* la création d'un gradient hydraulique local engendré par un pompage. Les deux paragraphes suivant s'intéressent aux variations de charges, en réponse aux impulsions naturelles liées au signal d'entrée.

1.3. Chroniques piézométriques

Les niveaux piézométriques, au sein des quatre forages non exploités, ont été suivis au pas de temps horaire entre juin 2009 et juillet 2012. Ces ouvrages n'ont pas fait l'objet de prélèvements au cours des mesures (hormis lors des essais de pompages et des investigations diagraphiques présentés ci-dessus) et ne sont donc pas influencés par les prélèvements effectués dans les ouvrages environnant. Les chroniques enregistrées ont été ré-échantillonnées au pas de temps journalier.

Le calcul, pour chaque chronique, des moyennes et des écarts-types permet d'appréhender l'amplitude des variations piézométriques mesurées (Tableau IV-5). Cette approche offre ainsi la possibilité d'observer les différences de comportement selon les localisations et selon les formations captées. Les quatre chroniques enregistrées seront interprétées individuellement avant de faire l'objet d'une inter-comparaison (Figure IV-3).

TubleauTV	en en derer istigues des em emques pre-	sometriques			
Ouvrage	Formation captée	Charge moyenne (m)	Charge min. (m)	Charge max. (m)	Ecart type (m)
Ip2	Cipolins	141,19	140,52	141,91	0,32
Osp9	Cipolins	192,87	192,41	194,41	0,27
Pe4	Matériaux altérés + roche fissurée	222,59	219,76	227,18	1,53
Pe5	Matériaux altérés + roche fissurée	229,38	226,63	234,29	1,49

Tableau IV-5. Caractéristiques des chroniques piézométriques

1.3.1. Forage Ip2

Ce forage capte des formations de calcaire métamorphique sous une épaisseur de matériaux d'altération de l'ordre de 15 m. La charge moyenne est de 141,19 m et les variations sont de faible amplitude (Tableau IV-5). Avec un écart-type de 0,32 m, l'amplitude entre les charges les plus basses et les plus élevées est de 1,39 m. Une cyclicité annuelle apparaît, les niveaux piézométriques les plus faibles étant observés en octobre (Figure IV-3). Les charges remontent ensuite plus rapidement pour atteindre un maximum au printemps, entre avril et mai. A ces évolutions saisonnières s'ajoutent des variations de faibles amplitudes, en réponse aux évènements météoriques individuels. L'influence de l'épisode pluvieux du 16 juin 2010 par exemple (plus de 130 mm de précipitations en 24 heures) est bien visible sur la Figure IV-3. La charge est alors passée de 141,25 m le 16 juin 2010 à 141,44 m le 19 juin, soit une augmentation de 19 cm en quatre jours. Cette observation sur un cas extrême est également valable pour des évènements d'intensité plus habituelle avec une relation discrète entre piézométrie et pluviosité. Néanmoins, le comportement de la nappe captée ici confirme l'importante fonction d'emmagasinement déterminée par les essais de pompage (paragraphe 1.1), se traduisant par un effet réservoir avec stockage d'eau durant les périodes de recharge et restitution du stock au cours des périodes les moins humides.

1.3.2. Forage Osp9

L'ouvrage Osp9 capte des formations rocheuses fissurées sous une dizaine de mètres de matériaux altérés. La charge moyenne est de 192,87 m (Tableau IV-5). Les évolutions en réponse aux épisodes pluvieux sont rapides et d'amplitudes métriques. La différence de charge entre la valeur la plus haute et la plus basse au cours de la période d'observation est de 2 m. L'évolution du niveau piézométrique est ici bien corrélée à la pluviométrie. La courbe représentant l'évolution de la charge au cours des trois années de suivi (Figure IV-3) met en évidence une recharge rapide par les précipitations et une vidange en deux étapes. Après une crue, le niveau piézométrique baisse d'abord rapidement puis plus lentement. La première phase peut être reliée à la limite d'alimentation mise en évidence par essai de pompage (paragraphe 1.1.2.2.). La mise en charge de drains activés lors de la phase de crue peut être supputée. Ces derniers se vidangent rapidement lors de la décrue. Au cours de la seconde phase, la nappe retrouve un comportement classique. Il est intéressant de noter que lorsque l'intensité pluvieuse est suffisante pour influencer les niveaux piézométriques, ceux-ci réagissent très rapidement, le temps de réponse étant de l'ordre de la journée. Ceci démontre l'existence d'une relation hydraulique étroite entre le milieu souterrain et la surface du sol. Néanmoins, la chronique enregistrée au sein de ce forage montre une capacité d'emmagasinement non négligeable avec une décroissance des charges relativement lente.



Figure IV-3. Chroniques piézométriques (en noir) et pluviométriques (en gris) enregistrées entre juillet 2009 et juillet 2012

1.3.3. Forages Pe4 et Pe5

Les ouvrages Pe4 et Pe5 captent principalement les formations de paragneiss altérés sous les altérites proprement dites. Les résultats du suivi physico-chimique et de la datation des eaux (chapitre 3) ont cependant mis en évidence l'existence d'une alimentation par l'horizon de roche fissurée sous-jacente avec des modalités d'écoulements différentes entre ces deux ouvrages. Ainsi, le degré d'altération des arènes est tel au droit de Pe4 que les eaux captées dans les formations altérées et fissurées circuleraient de manière indépendante, sans mélange. Au contraire, dans Pe5, un mélange existerait entre les écoulements au sein des formations altérées et ceux de la roche fissurée, du fait d'un degré d'altération moindre. Cette différence ne s'observe pas d'un point de vue hydrodynamique. Les chroniques piézométriques sont en effet similaires. Les évolutions de charge enregistrées dans ces forages sont donc traitées conjointement puisque les comportements observés sont similaires. Les charges moyennes calculées sont de 222,59 m et 229,38 m pour Pe4 et Pe5 respectivement (Tableau IV-5). L'écart maximum relevé sur les séries de mesure est de 7,42 m pour Pe4 et de 7,66 m pour Pe5. Ici, l'influence de la pluviométrie sur les niveaux piézométriques est parfaitement marquée (Figure IV-3). La recharge est très rapide avec une réactivité de la nappe de l'ordre de la journée. L'amplitude des crues est également largement supérieure à celle observée pour les forages Osp9 et Ip2. L'emmagasinement particulièrement faible présenté au paragraphe 1.1 est parfaitement illustré ici, avec des courbes de vidange qui décroissent très rapidement. Ceci démontre une capacité de stockage du système très limitée au niveau de ces ouvrages.

1.3.4. Bilan

L'analyse des chroniques piézométriques de quatre forages non exploités illustre de nouveau l'hétérogénéité particulièrement importante du système aquifère de l'Ursuya. La capacité de stockage est en effet très variable, de même que la réactivité de la nappe vis-à-vis du signal d'entrée. Ces paramètres sont fonction des formations captées et de leurs caractéristiques propres, elles mêmes très hétérogènes compte-tenu du contexte hydrogéologique (altérites plus ou moins poreuses et perméables, roche plus ou moins fissurée et/ou fracturé, discontinuités plus ou moins ouvertes, longues et interconnectées...).

La comparaison directe des séries pluviométriques et piézométriques permet d'approcher de manière très subjective un degré d'influence du signal d'entrée. Un essai de quantification de ces relations a été effectué à partir de l'analyse corrélatoire simple et croisée des séries temporelles.

1.4. Analyses corrélatoires

1.4.1. Principe des analyses corrélatoires simples et croisées

L'analyse corrélatoire permet de décrire la structure de la variabilité d'un phénomène. La dépendance des évènements entre eux est décrite à travers une fonction d'autocorrélation à partir de l'analyse corrélatoire simple. L'étude corrélatoire croisée permet quant à elle de tester la dépendance entre deux chroniques de type « signal d'entrée - signal de sortie » (Larroque, 2004). Cette méthodologie est largement utilisée pour l'analyse du fonctionnement de systèmes karstiques (Larocque *et al.*, 1998). L'utilisation des analyses corrélatoires simples et croisées peut permettre d'approcher les temps potentiels de transferts de pression et de masse pour un aquifère libre soumis à une recharge météorique (Dupuy, 1997).

L'analyse corrélatoire simple évalue le caractère répétitif et l'éventuelle cyclicité des chroniques, par comparaison avec elles-mêmes, pour des pas de temps croissants. Le degré de ressemblance est déterminé grâce à la fonction d'autocorrélation r_k définie comme la valeur de corrélation linéaire entre les valeurs des deux séries (Jenkins et Watts, 1968). r_k est calculé selon la formule :

$$r_k = \frac{C_k}{C_0}$$
Équation 33

Équation 34

où

$$C_k = \frac{1}{N} \sum_{t=1}^{N-k} (x_t - x_m) (x_{t+k} - x_m)$$

avec r_k : fonction d'autocorrélation ;

C_k : corrélogramme ;

k : pas de temps (k = 0, 1, ..., m);

- m : point de troncature ;
- N : longueur de la chronique ;
- x_t : événements au temps t ;
- x_m : moyenne des évènements.

Le terme m détermine la borne supérieure de la fenêtre d'observation. Il est recommandé d'utiliser la chronique la plus longue possible mais en pratique, une valeur générique déterminée empiriquement de m=N/3 est utilisée, sachant que pour des valeurs supérieures à N/2, les résultats sont fortement altérés (Mangin, 1984). Le paramètre k (troncature de la série) agit comme un filtre qui réduit l'influence des coïncidences dans le signal.

L'interprétation du corrélogramme s'effectue en observant sa décroissance en fonction de k. Plus un événement, pris à un instant donné, a une influence à long terme, plus la décroissance du corrélogramme est lente. Par conséquent, le corrélogramme traduit la capacité de mémoire du système, liée à son inertie. Si le corrélogramme tend rapidement vers zéro, le phénomène analysé peut être considéré comme quasi-aléatoire, les évènements se succédant de manière indépendante (Dupuy, 1997). Deux conditions sont toutefois nécessaires à l'application des méthodes d'analyse corrélatoire : les séries chronologiques doivent être complètes et suffisamment longues pour pouvoir mettre en évidence les éléments qui les composent.

L'analyse corrélatoire croisée est appliquée pour identifier la dépendance de deux séries de données. Dans le cas des écoulements souterrains non confinés, la pluviométrie est considérée comme variable d'entrée du système et la variation piézométrique comme variable de sortie. Si d'un point de vue physique, on ne peut considérer directement les chroniques piézométriques, ces variables d'état peuvent être utilisées comme indicateur de la dynamique du système, puisque potentiellement influencées par la variable d'entrée (Larocque *et al.*, 1998). L'expression du corrélogramme croisé de deux séries (x) et (y) représentant respectivement l'entrée et la sortie peut s'écrire comme suit :

$$r_{-k} = r_{xy} (k) = \frac{C_{xy} (k)}{\sigma_x \times \sigma_y}$$
 Équation 35

et

$$r_{+k} = r_{yx} (k) = \frac{C_{yx} (k)}{\sigma_x \times \sigma_y}$$
 Équation 36

où

$$C_{xy}(k) = \frac{1}{N} \sum_{t=1}^{N-k} (x_t - x_m) (y_{t+k} - y_m)$$
 Équation 37

et

$$C_{yx}(k) = \frac{1}{N} \sum_{t=1}^{N-k} (y_t - y_m) (x_{t+k} - x_m)$$
 Équation 38

avec r_k : fonction de corrélation croisée ;

 $C_{xy}(k)$: corrélogramme croisé ;

- x_t : chronique d'entrée ;
- y_t : chronique de sortie ;

 σ_x et σ_y : écart-types des séries temporelles x_t et y_t .

Si la fonction d'entrée du système est aléatoire ou peut être considérée comme telle, et si le système est invariant, alors le corrélogramme croisé correspond à la réponse impulsionnelle du système, notion traduisant la capacité du système à transmettre l'information et donc la durée d'influence d'un signal d'entré (Dupuy, 1997).

1.4.2. Analyses corrélatoires simples

Les chroniques de niveaux piézométriques enregistrées au sein des forages non exploités, présents sur le massif de l'Ursuya, ont été examinées par analyses corrélatoires simples sur une période de 1096 jours, du 06/06/2009 au 05/06/2012 (Figure IV-4). Les fonctions d'autocorrélation ont donc été calculées pour un paramètre de troncature de 365 jours.



Figure IV-4. Corrélogramme simple des niveaux piézométriques (pas = 1 jour ; m = 365 jours)

La fonction d'autocorrélation du forage Ip2 traduit une structuration importante des niveaux piézométriques dans le temps au sein de cet ouvrage. La valeur k pour $r_k = 0$ y est atteinte au bout de 92 jours traduisant une inertie importante. Cet effet mémoire est en effet le plus important observé par rapport aux 3 autres forages investigués, soulignant une relation marquée entre les événements. Cette valeur peut-être associée à la durée moyenne du transfert de masse entre la surface du sol et la nappe (Dupuy, 1997). Concernant le forage Osp9, la décroissance est plus rapide. Néanmoins, la valeur k pour $r_k = 0$ est atteinte au bout de 81 jours, valeur qui témoigne d'une inertie non négligeable. En revanche, le signal est beaucoup moins bien structuré pour les forages Pe4 et Pe5. Le coefficient d'autocorrélation diminue ici plus rapidement, pour atteindre la valeur de 0 au bout de 55 jours.

Par ailleurs, les courbes des forages Osp9 et Ip2 croisent l'axe des abscisses et continuent de diminuer, indiquant l'existence d'un phénomène cyclique. L'apparition d'une structure périodique est un indice de l'inertie du système, pouvant être relié à la notion de réserve et de stockage. La demi-période est égale à 210 jours pour Ip2 et 219 jours pour Osp9, soit une périodicité moyenne de 429 jours. Même si cette période dépasse celle du cycle hydrologique, elle peut grossièrement être assimilée à un phénomène de saisonnalité. Cette inertie est cependant moins marquée sur Osp9 où le signal est beaucoup moins structuré. De plus, nous avons vu dans le paragraphe 1.3.2 que les charges mesurées au sein de cet ouvrage sont fortement influencées par les évènements météoriques. En ce qui concerne les forages Pe4 et Pe5, la forme peu structurée du corrélogramme ne permet pas de mettre en évidence cette notion de cyclicité. Au contraire, les évènements se succèdent de façon quasi-indépendante démontrant une faible inertie du système au droit de ces ouvrages.

1.4.3. Analyses corrélatoires croisées

L'analyse du signal d'entrée à l'aide d'un corrélogramme simple (Figure IV-5) confirme la nature aléatoire de la pluviométrie sur la fenêtre temporelle d'observation. Les résultats montrent que les valeurs de r_k décroissent rapidement pour rester centrées autour de 0. Ce résultat nous autorise donc à utiliser les analyses corrélatoires croisées entre la pluviométrie et les variations piézométriques pour estimer la réponse impulsionnelle du système.



Figure IV-5. Corrélogramme simple des précipitations (pas = 1 jours ; m = 365 jours)

Les corrélogrammes croisés pluie/niveaux ont été réalisés sur la même période que les corrélogrammes simples (Figure IV-6). La réponse impulsionnelle se détermine sur le corrélogramme croisé par l'abscisse du premier pic. Cette valeur correspond au déphasage entre le signal d'entrée et le signal de sortie et elle s'assimile au temps de transfert de pression entre la surface du sol et la nappe. Elle est de 11 jours pour Ip2, 7 jours pour Osp9, et 15 et 14 jours pour Pe4 et Pe5 respectivement.

Les corrélogrammes réalisés présentent des structures complexes. D'une manière générale, les r(k) sont faibles, montrant l'atténuation des signaux des précipitations à leur entrée dans le système. La zone non saturée agit comme un filtre, tamponnant l'impact de la pluviosité sur les formations aquifères. Les altérites peu profondes assurent ainsi une fonction de stockage temporaire et entrainent le déphasage estimé précédemment. Les différences de déphasages entre les puits peuvent être induites par la variabilité d'épaisseur ou de degré d'altération des arènes sus-jacentes.



Figure IV-6. Corrélogramme croisé de la pluviométrie et des niveaux piézométriques (pas = 1 jours ; m = 365 jours)

1.5. En résumé

Les investigations hydrodynamiques réalisées sur les quatre forages non exploités présents sur le massif de l'Ursuya ont permis d'acquérir des données primordiales pour la compréhension du fonctionnement de cet aquifère. Malgré le faible nombre de points d'observations sur l'étendue du site d'étude, les informations apportées permettent de mettre en évidence des propriétés intéressantes en vue de la mise en place d'un modèle numérique hydrodynamique.

Tout d'abord, les essais de pompages ont permis d'estimer les valeurs des propriétés hydrodynamiques rencontrées sur le massif et ont mis en exergue le rôle de confinement des altérites. Ce confinement est très variable et fonction du degré d'altération et de l'épaisseur des arènes. L'aquifère n'est cependant jamais totalement isolé de la surface du sol et les altérites jouent finalement un rôle de régulation temporelle et quantitative de la recharge par la mise en place d'une zone tampon.

Dans un second temps, les diagraphies de productivité ont permis d'identifier les horizons les plus productifs. Ainsi, les lentilles de calcaires métamorphiques décrites par Boissonnas *et al.* (1974) contiennent des volumes d'eau significatifs, malgré des caractéristiques hydrodynamiques peu favorables à une exploitation sur le long terme. D'autre part, l'horizon de roche fissurée au droit des forages Pe4 et Pe5 semble faiblement productif au regard des matériaux altérés sus-jacents. Cependant, et même s'ils sont faibles, des écoulements existent pourtant au sein de cet horizon, comme ils ont été mis en évidence par les résultats physico-chimiques (chapitre 3).

L'analyse des chroniques piézométriques confirme les résultats des essais de pompages avec une capacité de stockage forte pour les environnements du forage Ip2, moindre pour Osp9 et très réduite pour les ouvrages Pe4 et Pe5. Enfin, la réalisation d'analyses corrélatoires permet d'appuyer ces observations. Le système aquifère au droit du forage Ip2 possède un effet mémoire important. Cette inertie est légèrement plus faible pour Osp9 et elle est très limitée pour les ouvrages Pe4 et Pe5.

Outre les informations apportées localement par chaque ouvrage, ces résultats montrent, une nouvelle fois, l'aspect très hétérogène de l'aquifère étudié. Cette variabilité, déjà observée *via* les mesures physico-chimiques de l'eau souterraine, se retrouve dans le comportement physique de la nappe. La réalisation d'un modèle numérique hydrodynamique sera donc compliquée par cette hétérogénéité, d'autant plus que les points d'observations sont rares. Toutefois, la réalisation d'un modèle de type « poreux équivalent » permettra d'aboutir aux objectifs visés, à savoir la construction d'un outil d'aide à la gestion quantitative de l'aquifère de l'Ursuya. Après avoir rappelé les principaux aspects de la modélisation numérique hydrodynamique en milieu fissuré, les paragraphes suivant présentent en détail le modèle réalisé, depuis son élaboration jusqu'à l'interprétation des résultats obtenus.

2. MODELISATION HYDRODYNAMIQUE

L'objectif de la modélisation numérique hydrodynamique de l'aquifère de l'Ursuya est de proposer aux différents gestionnaires exploitant l'eau souterraine sur le massif un outil d'aide à la décision quant à la gestion de cette ressource. L'outil de modélisation présenté dans les paragraphes qui suivent est construit sur la base de l'ensemble des connaissances acquises au cours de cette étude. Un modèle n'étant pas figé, ce dernier est amené à évoluer et à s'améliorer au fil de l'acquisition de données supplémentaires, bien après les travaux présentés ici. La réalisation de nouveaux forages par exemple, sera l'occasion de préciser la géométrie des différents horizons ainsi que leurs caractéristiques hydrodynamiques. La modélisation présentée ici et les résultats qui en découlent constituent donc la première phase d'un processus qui devra se poursuivre afin d'obtenir un outil toujours plus performant. Même si nos connaissances de l'aquifère de l'Ursuya permettent de retranscrire numériquement des écoulements souterrains au plus proche de la réalité, les informations dont nous disposons à l'heure actuelle sont souvent très locales. Il est donc important de toujours garder un esprit critique quant à l'utilisation de ce modèle, ce qui est par ailleurs valable pour tout modèle.

Après de brefs rappels sur les principes de modélisation en milieu discontinu, l'élaboration du modèle numérique sera détaillée. Les simulations en régimes permanent et transitoire permettront ensuite de valider la qualité du modèle et d'apporter des précisions quant aux écoulements souterrains de l'aquifère de l'Ursuya.

2.1. Rappels sur la modélisation numérique hydrodynamique en milieu fissuré

Un modèle est un « système » constitué soit par un ensemble abstrait (équations, relations, opérations), soit par un ensemble concret (modèle réduit, modèle analogique) représentant tout ou partie du comportement d'un système réel (Bonnet, 1978). Les modèles hydrogéologiques représentent mathématiquement les écoulements souterrains, afin d'améliorer la compréhension de phénomènes précis (influence de pompages, migration de polluants, ...) ou d'obtenir une représentation aussi précise que possible du comportement d'un système réel actuel ou futur. La modélisation numérique hydrodynamique est donc un outil précieux pour améliorer la compréhension du comportement d'un système aquifère. Le modèle numérique offre un cadre permettant de synthétiser des données issues de différentes investigations et de préciser sur le long terme le comportement des écoulements et des facteurs qui les contrôlent (Cook, 2003). Les modèles peuvent ainsi servir de base à la prise de décisions dans un cadre de gestion de la ressource, mais ils sont également un outil d'amélioration de la compréhension de phénomènes hydrodynamiques souterrains.

Les résultats présentés dans les chapitres précédents ont démontré que le système aquifère de l'Ursuya est composé de deux principaux horizons d'écoulements aux propriétés distinctes et plus ou moins en connexion hydraulique : les altérites et la zone fissurée. Ces deux horizons sont séparés par une zone de transition d'épaisseur souvent non négligeable. Les propriétés hydrodynamiques sur l'ensemble du site sont très hétérogènes spatialement, du fait de la présence de discontinuités, des différences de lithologies et des variations spatiales de l'altération des matériaux. Ainsi, si les altérites peuvent être considérées comme un milieu poreux, le milieu fissuré est plus complexe à modéliser. La modélisation des aquifères en milieux discontinuité ; l'échelle spatiale du problème ; l'objectif dans lequel le modèle est développé (NRC, 1996) et surtout les informations disponibles sur les différents paramètres mis en jeu. Les trois principaux concepts utilisés pour décrire les hétérogénéités des milieux discontinus sont les suivants (Figure IV-7) :

- L'approche dite « milieu poreux équivalent » (Davison, 1985 ; Hsieh et Neuman 1985 ; Carrera *et al.*, 1990 ; Boronina, 2003 ; Durand, 2005... ; Figure IV-7-B et C) : les fractures ne sont pas explicitement intégrées dans ce type de modèle mais l'hétérogénéité du système fracturé peut-être représentée par des secteurs de propriétés différentes. Les porosités primaires (de matrice) et secondaires (de fissures) et les distributions de perméabilités sont remplacées par un milieu poreux continu avec des propriétés hydrauliques équivalentes. Dans ce cas, les équations habituellement usitées (équation de continuité notamment) pour simuler les écoulements en milieu poreux peuvent être utilisées. En revanche, les milieux discontinus étant largement anisotropes, et comme l'anisotropie n'est pas prise en compte dans cette approche, la simulation du transport de solutés *via* une approche de type poreux équivalent peut s'avérer difficile et peu réaliste (Cook, 2003).
- Les modèles double porosité (Pruess et Narasimhan, 1988; Reeves et al., 1991; Moutsopoulos et Tsihrintzis, 2009...; Figure IV-7-D): ce type de modèle prend en compte les écoulements à la fois dans les fractures et dans la matrice rocheuse. Ils peuvent être appliqués dans le cas de matrices poreuses par l'évaluation des flux de la matrice vers le réseau de discontinuités. La géométrie du réseau de fractures est idéalisée et le système aquifère est représenté par le biais de deux milieux poreux superposés. Les propriétés hydrauliques sont définies par la perméabilité, la porosité et le coefficient d'emmagasinement du réseau de fractures d'une part et de la matrice rocheuse d'autre part. L'équation exprimant l'écoulement de fluide à travers le réseau de fractures contient des termes sources pour tenir compte des flux de la matrice vers les fractures. Une seconde série d'équations décrit l'écoulement dans les blocs de la matrice. Le principal avantage du modèle double porosité est qu'il permet de tenir compte du facteur de retard induit par les faibles perméabilités de la matrice. Cependant, cette approche à tendance à trop idéaliser la géométrie du réseau de discontinuités et les paramètres propres aux fractures et à la matrice rocheuse sont difficiles à obtenir de façon individuelle (NRC, 1996).



Figure IV-7. Différentes approches de modélisation des aquifères discontinus (A : réseau de fracture naturelle ; B : modèle poreux équivalent avec des paramètres uniformes ; C : modèle poreux équivalent avec des perméabilités plus élevées dans les zones très fracturées ; D : modèle double porosité ; E : réseau de fracture discrètes dans lequel les fractures majeures sont explicitement modélisées ; adapté de Cook, 2003)

L'approche « réseau de fracture discrètes » (Dershowitz *et al.*, 1991 ; Herbert *et al.*, 1991 ; Sudicky et McLaren, 1992 ; Wang *et al.*, 2001 ; Le Goc, 2009...Figure IV-7-E) : cette approche s'appuie sur une caractérisation précise et explicite des propriétés du réseau de discontinuités (ouverture, orientation, longueur, connectivité...). Les écoulements sont simulés individuellement au sein de chaque fracture, comme des flux entre deux plaques uniformes séparées par un espace équivalent à l'ouverture de la discontinuité. Les écoulements au sein de la matrice peuvent être simulés conjointement. Dans le cas contraire, la porosité de la matrice de l'aquifère est considérée nulle. Cette approche est généralement limitée par la disponibilité de données sur les discontinuités. De plus, suivant la complexité du réseau de fractures, la puissance de calcul nécessaire à ce type de simulations peut être rédhibitoire. Pour ces raisons, cette approche est à ce jour majoritairement utilisée pour des études à petites échelles (du laboratoire à la parcelle kilométrique) et les paramètres déterminés sont souvent utilisés dans un deuxième temps, à plus grande échelle, pour des applications de type poreux équivalent (Cook, 2003).

Des modèles hybrides combinant ces différentes approches ont également été réalisés (Oda *et al.*, 1987 ; Cacas *et al.*, 1990 ; Smith *et al.*, 1990...) et des approches de caractérisation statistique de la fracturation (modèles stochastiques) ont également montrés de bon résultats (Neuman et Depner, 1998...).

La simulation mathématique des flux au sein des aquifères discontinus reste aujourd'hui encore un challenge pour les modélisateurs. Néanmoins, l'expérience montre que, en fonction des objectifs à atteindre et des données disponibles, les solutions présentées ci-dessus permettent d'atteindre la précision nécessaire à la réalisation de modèles réalistes (NRC, 1996). D'autre part, l'approche qui semble la plus appropriée pour la simulation numérique des écoulements dans une optique de gestion de la ressource en eau, qui plus est à une grande échelle spatiale et quand elle ne s'intéresse pas au transport de solutés, est celle du milieu poreux équivalent. Compte-tenu de l'objectif recherché, de l'emprise géographique du site étudié et des données disponibles, c'est cette approche qui a été choisie pour réaliser la modélisation hydrodynamique de l'aquifère de l'Ursuya.

2.2. Elaboration du modèle numérique de l'aquifère de l'Ursuya

2.2.1. Méthodologie utilisée

Le modèle a été réalisé sous Feflow 6.0 (Finite Element Subsurface Flow & Transport Simulation System ; Trefry et Muffels, 2007, Diersch, 2010). La résolution de l'équation de l'écoulement dans Feflow utilise la technique numérique des éléments finis. Notre choix s'est en effet porté sur cette technique plutôt que sur celle des différences finies. Les éléments finis offrent une souplesse plus importante. Ils permettent d'adapter facilement le maillage aux topographies accidentés et la prise en compte de discontinuités est également facilitée par cette propriété. La réalisation d'un modèle numérique hydrodynamique nécessite dans un premier la discrétisation du domaine spatial en cellules, selon les trois directions de l'espace, ainsi que la discrétisation du domaine temporel pour permettre la résolution de l'équation d'écoulement en régime transitoire. L'élaboration d'un modèle hydrodynamique numérique nécessite différentes étapes : l'implémentation de la géométrie, des paramètres hydrodynamiques des formations et des variables d'entrées et de sorties. Ces différentes étapes sont développées et détaillées dans les paragraphes qui suivent.

2.2.2. Discrétisation spatiale

2.2.2.1. Discrétisation horizontale

L'emprise du secteur retenu pour le modèle prend en compte la totalité du massif de l'Ursuya, selon les limites définies dans le chapitre 1 (Figure IV-8). Il couvre une superficie de 45 km² discrétisée via un maillage triangulaire de 74777 éléments en surface. Cette triangulation irrégulière s'appuie sur l'ensemble des points où une information est disponible. Ainsi, le maillage est affiné au niveau des sources et des forages et le long des linéaments cartographiés ainsi que des cours d'eau. D'autre part, la méthode de résolution de l'équation de l'écoulement par éléments finis implique que les calculs se fassent aux nœuds de chaque élément. Chaque émergence et chaque forage correspond donc à un nœud du maillage. Le critère de Delaunay a été respecté pour la construction de ce maillage grâce à l'utilisation de l'algorithme « Triangle Mesh Generator© » (http://www-2.cs.cmu.edu/~quake/triangle.html) développé par Shewchuk (2002). Une triangulation respecte le critère de Delaunay (1934) si aucun sommet des triangles du maillage n'est à l'intérieur des cercles circonscrits aux triangles.

2.2.2.2. <u>Discrétisation verticale</u>

Le modèle réalisé étant tridimensionnel, la topographie du site a été implémentée grâce au MNT présenté dans le chapitre 1 (Figure IV-9). La discrétisation verticale des différents horizons pris en compte dans le modèle est reproduite au travers de 5 couches de calcul (altérites, horizon de transition, horizon fissuré supérieur, horizon fissuré inférieur, roche saine). L'extension des lentilles de calcaire métamorphique n'étant pas connue, elles ont été assimilées aux horizons de roche fissurée ou de roche saine le cas échéant. De même, les paragneiss et les gneiss, présentant des caractéristiques hydrodynamiques similaires, n'ont pas été différenciés au sein du modèle numérique. La discrétisation du domaine spatial associé au mode de résolution par éléments finis nécessite une continuité des différentes couches de simulation. La simulation numérique impose la continuité de toutes les couches sur l'ensemble du domaine simulé. Ainsi, la continuité des couches de simulation numérique a été réalisée en attribuant localement une épaisseur fictive minimale (10 cm) et les propriétés hydrodynamiques de la couche sous-jacente.



Figure IV-8. Maillage du modèle numérique



Figure IV-9. Géométrie du modèle numérique (un facteur 2 est appliqué à l'axe vertical)

La représentation de l'extension horizontale des différents horizons est basée sur la cartographie présentée au paragraphe 4.4. du chapitre 1. En revanche, les épaisseurs des différents horizons souffrent d'un manque de connaissances sur le massif de l'Ursuya. Afin de représenter au mieux la réalité, l'extension verticale des différentes couches a été approchée grâce aux divers sondages effectués sur le massif au cours des dernières décennies (Tableau IV-6). D'autre part, les données bibliographiques nous ont permis de conforter nos estimations (Tableau IV-7). Les descriptions lithologiques des horizons observés en cours de foration ne sont pas toujours homogènes. Lorsque ceux-ci sont peu développés, il peut notamment être difficile de déterminer l'emplacement de la zone de transition dans le profil. De la même façon, les divers auteurs cités ne différencient pas toujours explicitement les matériaux d'altération de l'horizon de transition les séparant de la roche fissurée. Nous avons donc estimé les épaisseurs moyennes des différents horizons de la façon la moins arbitraire possible, en nous basant à la fois sur les connaissances acquises directement sur le site, mais également sur les travaux effectués dans des milieux géologiquement analogues.

Les altérites, lorsqu'elles sont présentes, sont représentées par une couche de 20 m d'épaisseur au maximum. L'apparition des altérites sus-jacentes à l'horizon de transition a été représentée par un gradient latéral d'épaisseur croissante (5 m d'épaisseur sur 20 m de longueur, puis 10 m d'épaisseur sur 30 m de longueur, puis 15 m d'épaisseur sur 30 m de longueur, puis 20 m d'épaisseur ; Figures IV-9 et IV-10).

L'horizon de transition entre les altérites et la roche fissurée sous-jacente est simulé par l'intermédiaire d'une couche de 10 m d'épaisseur au maximum. Comme pour les altérites, un gradient latéral d'épaisseur marque l'apparition d'un horizon de transition sus-jacent à la roche fissurée (1 m d'épaisseur sur 20 m de longueur, puis 5 m d'épaisseur sur 30 m de longueur, puis 10 m d'épaisseur ; Figures IV-9 et IV-10).

La roche fissurée a fait l'objet de deux couches de calculs. En effet, les caractéristiques hydrodynamiques dans cet horizon sont verticalement hétérogènes. Cette hétérogénéité pourra être simulée par le biais de ces deux couches. Les sondages réalisés sur le massif de l'Ursuya font état d'épaisseurs de roche fissurée entre 5 m et plus de 48 m pour une moyenne de l'ordre de 23 m (Tableau IV-6). Dans la littérature (Tableau IV-7), les épaisseurs de cet horizon varient entre 30 m et 57 m, pour une moyenne de 43 m. Nous avons donc estimé une épaisseur maximum de 35 m, simulée *via* une couche de 15 m d'épaisseur maximum et une couche sous-jacente de 20 m d'épaisseur (Figures IV-9 et IV-10). L'horizon de roche fissurée est très fortement altéré dans la vallée de la joyeuse (à l'est du massif). Dans cette vallée, l'épaisseur de la couche 3 (roche fissurée supérieure) est donc nulle et l'horizon fissuré n'est représenté que par la couche 4. La couche 4, quant à elle, est représentée de façon homogène (20 m d'épaisseur) sur l'ensemble du secteur modélisé.

Coordonnées Sondage (Lambert II ; m)		Altérites			Horizo	Horizon de transition		Horizon fissuré			Roche Saine			
0	X	Y	Toit	Mur	Ep. (m)	Toit	Mur	Ep. (m)	Toit	Mur	Ep. (m)	Toit	Mur	Ep. (m
Pe4	299245	1822520	218	202	16	202	200	2	200	188	12	188	<171	>17
Pe5	299322	1822449	224	216	8	216	204	12	212	198	14	198	<180	>18
Ipl	299447	1824254	159	154	5	N.O.	N.O.		154	<109	>45	N.O.	N.O.	
Ip2	299421	1824044	161	147	14	N.O.	N.O.		147	<122	>25	N.O.	N.O.	
Ip2bis	299411	1824105	160	146	15	146	144	2	144	110	35	110	<103	>7
Ār3	301594	1824277	252	242	10	242	238	4	238	<215	>23	N.O.	N.O.	
Ar5	301636	1824169	268	252	16	252	237	15	237	<225	>12	N.O.	N.O.	
Caml	303832	1823929	268	262	6	262	247	15	247	231	16	231	<219	>12
Cam2	303757	1823885	257	237	20	237	230	7	230	<212	>18	N.O.	N.O.	
Cam3	303736	1823829	172	143	29	143	136	7	136	131	5	131	<123	>8
Bet4	303348	1823512	N.O.	N.O.		322	317	5	317	<300	>17	N.O.	N.O.	
Osp5	303982	1824538	N.O.	N.O.		169	164	5	164	<116	>48	N.O.	N.O.	
Osp6	304124	1824599	N.O.	N.O.		165	149	16	149	<119	>30	N.O.	N.O.	
Osp7	303813	1824389	N.O.	N.O.		188	179	9	N.O.	N.O.		N.O.	N.O.	
Osp8	303432	1824410	N.O.	N.O.		215	212	3	N.O.	N.O.		N.O.	N.O.	
Osp9	303633	1824420	189	175	14	175	161	14	N.O.	N.O.		N.O.	N.O.	
Osp10	303763	1824339	N.O.	N.O.		185	172	13	N.O.	N.O.		N.O.	N.O.	
Osp20	303993	1824509	N.O.	N.O.		169	149	20	149	<117	>32	N.O.	N.O.	
Pit11	302596	1823998	288	276	12	276	272	4	272	257	15	257	<247	>10
Pit12	302556	1824080	223	203	20	203	197	6	197	187	10	187	<180	>7
Pit13	302449	1824071	307	287	20	287	279	8	279	<254	>25	N.O.	N.O.	
Pit14	302330	1824092	316	306	10	N.O.	N.O.		N.O.	N.O.		N.O.	N.O.	
Pit15	302386	1824066	311	292	19	292	288	5	288	271	17	271	<263	>8
Pit16	302394	1824069	311	300	11	N.O.	N.O.		300	265	35	265	<259	>6
Lar16	305779	1825657	200	159	41	159	145	14	N.O.	N.O.		N.O.	N.O.	
Lar17	306069	1825756	190	168	22	168	157	11	N.O.	N.O.		N.O.	N.O.	
Moyennes					16			9			>23			>10

Tableau IV-6. Epaisseur des horizons issus des coupes lithologiques des sondages (Ep. = épaisseur ; N.O. = Non Observé)

Chapitre IV. Vers une vision quantitative

Auteur (s)	Année	Lieux d'observation	Altérites (ép. en m)	Altérites + transition non différenciées (ép. en m)	Horizon de transition (ép. en m)	Horizon fissuré (ép. en m)
Davis et Turk	1964	Cas général		3 à 30		
Chilton et Smith- Carington	1984	Malawi	15 à 30		10 à 20	
Acworth	1987	Cas général	15 à 45		1 à 30	1 à 20
Larsson	1987	Afrique du Sud		30 à 150		
		Soudan		10 à 50		
		Swaziland		10 à 30		
		États-Unis		15 à 30		
		Brésil		5 à 20		
		Inde		12 à 15		
Chilton et Foster	1995	Afrique tropicale	5 à 30		>20	>20
Taylor et Howard	2000	Cas général		20		20
Lachassagne et Wyns	2002	Cas général		20 à 30		40 à 60
Wyns et al.	2004	Cas général		20 à 30		40 à 60
Dewandel et al.	2006	Inde		10 à 15		15 à 20
Ayraud et al.	2008	Bretagne		0 à 35		35 à 75
Lachassagne et al.	2008	Cas général		20 à 30		40 à 60
Banks et al.	2009	Australie		1 à 20		
Hoareau	2009	Sri-Lanka		10 à 70		>70
Koita	2010	Côte d'Ivoire		25 à 70		5 à 20
Lachassagne et al.	2011	Cas général		25 à 100		50 à 200
.,			Moy. min. = 12	Moy. min. = 14	Moy. min. = 10	Moy. min. = 30 Moy. max. =
Moyennes			Moy. max. = 35	Moy. max. = 44 Moyenne = 29	Moy. max. = >20 Moyenne = >15	57 Moyenne = 43
Epaisseur (m) : 18 : 16 .10 : 24 : 22 : 20 . 14 .12 ∞ ... 9 .. 4 2 0 Epaisseur de la couche 4 (horizon fissuré inférieur) Epaisseur de la couche 3 (horizon fissuré supérieur) 1 000 m 1 000 m Ø ً⊘ Epaisseur de la couche 2 (horizon de transition) Epaisseur de la couche 1 (altérites) 1 000 m 1 000 m ً⊘ 2

Figure IV-10. Epaisseurs des couches du modèle

La dernière couche de calcul correspond à la roche saine. Cette couche ne présente pas d'intérêt hydrodynamique particulier, puisque la roche saine est considérée comme imperméable. Des discontinuités tectoniques à grandes profondeurs n'ayant pas été mises en évidence au cours de cette étude, le toit de cette couche peut être considéré comme le mur de l'aquifère. Des propriétés hydrodynamiques particulièrement faibles seront donc attribuées à cette couche. Ne connaissant pas la puissance de la roche saine à la base du massif de l'Ursuya, nous avons fait le choix de situer le mur de cette couche a une grande profondeur (–600 m NGF; Figure IV-9), afin de parfaitement dissocier la limite hydrodynamique de la limite géométrique du modèle.

2.2.3. Conditions aux limites

Les conditions aux limites représentent des conditions hydrodynamiques imposées au système. Elles permettent d'intégrer les relations existantes entre le système aquifère modélisé et les réservoirs environnants, qu'il s'agisse du réseau hydrographique ou d'aquifères adjacents au système étudié. Ces relations sont simulées par l'implémentation de conditions de charges et de flux connues ou supposées. Le choix des conditions aux limites est une étape cruciale de la modélisation puisqu'elles influencent considérablement les modalités d'écoulement. Ces variables d'entrées sont parmi les plus sujettes à erreur (Franke *et al.*, 1987).

2.2.3.1. <u>Potentiels imposés</u>

Leurs contextes géologique étant proches, les systèmes de l'Ursuya et celui du Baïgura au sud-est peuvent tout-à-fait être en continuité hydraulique. Les calcaires et marnes du Jurassique du massif de l'Arberque au nord font également l'objet d'écoulements souterrains et des échanges avec l'aquifère de l'Ursuya ne sont pas à exclure. Nous avons donc choisi de représenter ces limites *via* des conditions de potentiels imposés. S'ils existent, ces échanges ne peuvent être quantifiés en l'état des connaissances actuelles sur les aquifères adjacents. Nous avons donc choisi d'imposer des potentiels correspondant à la valeur de l'élévation du sol diminué de 10 m aux nœuds considérés. Cette valeur, même si elle est arbitraire, permet d'imposer un sens d'écoulement à la nappe vers l'extérieur de l'aquifère. Seule la limite ouest, constituée par la vallée de la Nive, a été simulée par des conditions de débordement (paragraphe 2.2.3.2).

2.2.3.2. <u>Réseau hydrographique</u>

L'ensemble des cours d'eau présents sur la zone d'étude a été pris en compte de manière à simuler les relations entre le réseau superficiel et les écoulements souterrains en utilisant des conditions limites mixtes de Cauchy. La Nive (limite ouest du massif de l'Ursuya) a également été simulée *via* ces conditions de drains. Ces conditions limites ont été appliquées sur la couche affleurante. Ce type de condition limite permet d'appliquer une charge de référence de débordement associée à un paramètre de conductance, qui définit les conditions de transfert entre le milieu souterrain et la surface. Cela permet de simuler les échanges entre le cours d'eau et la nappe sous-jacente, au travers d'une couche plus ou moins colmatée.

Le calcul prend en compte la charge observée dans le cours d'eau (assimilée à l'altitude du niveau d'eau) et la conductance de son lit, selon la formule suivante :

$$Q = A \times C \times (h_{ref} - h)$$
Équation 39

avec Q = flux entrant ou sortant du modèle (m³ s⁻¹)

A = aire de la cellule (m²)

 h_{ref} = altitude du niveau d'eau du ruisseau (m)

h = charge hydraulique de la nappe (m)

et

$$C = \frac{K_c}{e_c}$$
Équation 40

Avec C =conductance (s^{-1})

 K_c = perméabilité de la couche colmatée (lit du cours d'eau) (m s⁻¹)

 e_c = épaisseur de la couche colmatée (m)

Compte-tenu des fortes pentes observées sur le massif de l'Ursuya, les cours d'eau simulés sont toujours peu profonds (de quelques cm à environ 1 m au maximum). h_{ref} a donc été considérée comme égale à l'élévation du sol. Le paramètre C n'étant pas connu, il a été ajusté au cours de la phase de calage. La conductance est finalement estimée à 1×10^{-6} s⁻¹ lorsque les cours d'eau s'écoulent sur la roche fissurée affleurante et à 1×10^{-7} s⁻¹ lorsqu'ils s'écoulent sur les altérites et sur l'horizon de transition.

2.2.4. Discrétisation temporelle

La période de simulation dans le cadre de la construction et la validation d'un modèle doit s'appuyer sur une période assez longue pour laquelle les données disponibles sont suffisamment précises et complètes. Les données nécessaires à la calibration du modèle en régime transitoire consistent principalement en des données de recharge, de prélèvements et de suivis de charges hydrauliques au sein de points d'observation. Sur le massif de l'Ursuya, l'ensemble de ces données est précisément enregistré depuis juillet 2009. Nous avons donc choisi de calibrer ce modèle sur une période de trois ans, entre juillet 2009 et juillet 2012.

La résolution de l'équation de l'écoulement en régime transitoire nécessite que la période de simulation soit subdivisée en pas de temps, constants ou non, et pour lesquels les conditions sont considérées connues. La sélection du pas de temps constitue une étape critique puisque les valeurs d'espace et de temps de discrétisation influencent fortement les résultats numériques (Anderson et Woessner, 1992). Idéalement, l'utilisation de pas de temps courts est recommandée afin de pouvoir restituer des phénomènes de courte période. Néanmoins, le choix du pas de temps est largement contraint par divers paramètres, notamment la fréquence des mesures effectuées (prélèvements et recharges) ou encore les capacités informatiques et les temps de calculs qui en découlent. Pour le modèle présenté ici, une discrétisation hebdomadaire a été choisie, les pas de temps des données de prélèvements, de recharge et de variations piézométriques à notre disposition allant de l'heure à la semaine. D'autre part, compte-tenu de la réactivité du système (paragraphes 1.3 et 1.4), la discrétisation hebdomadaire permet de retranscrire avec suffisamment de précisions les différents états de la nappe au cours de l'année.

2.2.5. Points d'observations

Les points d'observations permettent le calage et la validation du modèle numérique. Les forages étant peu nombreux sur le massif de l'Ursuya, nous nous sommes dans un premier temps appuyés sur les 198 émergences pérennes répertoriées pour caler le modèle en régime permanent. L'altitude de ces sources peut en effet être assimilée au niveau piézométrique de la nappe. Le calage en régime transitoire nécessite l'observation des variations de la piézométrie au cours du temps. L'ensemble des forages (4 non exploités et 5 exploités), a donc été utilisé dans cette seconde phase de calage du modèle. Les 8 stations limnimétriques présentées dans les chapitres 1 et 2 ont également été intégrées au modèle numérique. Les données enregistrées permettront ainsi de préciser les relations entre les écoulements superficiels et souterrains sur la base des hauteurs d'eau observées d'une part et des volumes écoulés d'autre part. La localisation de ces points d'observation est rappelée sur la Figure IV-11.

Concernant les forages exploités, des précisions doivent être apportées quant aux chroniques piézométriques disponibles. Les forages Ar3 et Ar5 font l'objet d'une mesure du niveau d'eau par semaine. Cette mesure ne peut rigoureusement être considérée comme représentative de la piézométrie hebdomadaire au sein de l'ouvrage, d'autant plus que celle-ci est influencée par les prélèvements. D'autre part, les chroniques de l'année 2010 ne sont pas disponibles pour ces deux ouvrages et les données de 2011 s'arrêtent en mai pour Ar3.



Figure IV-11. Localisation des points d'observation

Concernant les ouvrages Osp5, Pit11 et Pit16, les chroniques enregistrées posent un autre problème. Le pas de temps de mesure est ici journalier, mais seules les charges journalières minimum et maximum sont enregistrées. La moyenne entre ces deux valeurs ne peut être rigoureusement considérées comme le niveau piézométrique moyen journalier. La moyenne hebdomadaire calculée à partir des moyennes journalières a cependant été utilisée pour la calibration du modèle numérique. Enfin, l'exploitation de ces ouvrages n'est pas homogène au cours de l'année, ni même au cours d'une semaine ou encore d'une journée (paragraphe 2.2.6). Ainsi, le pompage au sein d'un forage peut durer une heure comme 20 heures par jour, en fonction de la demande. Le niveau piézométrique étant influencé par ces prélèvements, la charge mesurée est fortement liée à l'état d'exploitation au moment de la mesure. Par exemple, une mesure du niveau d'eau au sein d'Ar3 ou Ar5 en pompage sera considérée pour le calage du modèle comme le niveau hebdomadaire. Pourtant, à l'arrêt du pompage, la charge piézométrique retournera vers son niveau d'équilibre.

Ces chroniques, même si elles présentent certaines imperfections, sont les seules disponibles au sein de ces ouvrages. Le nombre de points d'observations étant relativement restreint sur le massif de l'Ursuya, il n'aurait pas été judicieux de se passer de ces données.

2.2.6. Prélèvements

Les chroniques de prélèvements intégrées au modèle ont été fournies par les différents exploitants, notamment la régie des eaux de Bayonne et celle de Hasparren pour l'exploitation des forages. L'exploitation des eaux de source n'a pas été directement intégrée au modèle, mais sera par la suite utilisée à des fins de bilan volumétrique. Quelques sources et puits sont exploités par des propriétaires privés, principalement pour l'alimentation en eau du bétail. Les volumes prélevés dans ce cas ne sont pas connus et n'ont pas pu être intégrés au modèle.

Les volumes prélevés au sein des forages Ar3 et Ar5 sont enregistrés de façon hebdomadaire. Comme pour les variations piézométriques, les chroniques de prélèvements ne sont pas disponibles pour l'année 2010 sur ces deux ouvrages. Les prélèvements effectués dans les forages Osp9, Pit11 et Pit16 sont enregistrés à un pas de temps journalier. Les volumes prélevés au sein de ces puits ne sont pas homogènes au cours de l'année. Ainsi, l'exploitation est maximale en été, lorsque la demande est la plus forte et que les sources sont les moins productives. Ces ouvrages sont en effet exploités en appui des émergences et leur utilisation est réduite au maximum afin de diminuer les coûts économiques d'exploitation. Les volumes prélevés mensuellement au sein de ces cinq forages sont présentés sur la Figure IV-12.



Figure IV-12. Volumes prélevés dans les cinq forages exploités

2.2.7. Alimentation

La difficulté d'estimation de la recharge de l'aquifère a été abordée dans le chapitre 2. Les résultats présentés font état d'une hauteur de précipitation efficace annuelle moyenne comprise entre 512,5 mm et 618,8 mm suivant la RFU considérée. Ces valeurs correspondent respectivement à 36 % et 43 % des précipitations totales. Les précipitations efficaces correspondent à la lame d'eau qui ne retourne pas dans l'atmosphère et qui est disponible pour l'infiltration mais également pour l'écoulement de surface et de subsurface. Si l'estimation des précipitations efficaces est soumise à de nombreuses incertitudes, il en est de même pour la lame d'eau infiltrée. En 1992, Chigot et Chevillot estiment que les volumes disponibles pour la recharge de l'aquifère sur le massif de l'Ursuya correspondent à 38 % de la pluie efficace. En considérant les hauteurs de pluie efficace calculées au cours de cette étude, cette estimation correspondrait à une recharge potentielle moyenne de 194 mm an⁻¹ (pour une RFU de 100 mm) à 235 mm an⁻¹ (pour une RFU de 50 mm).

L'ensemble de ces données a été considéré pour l'intégration au modèle de l'alimentation de l'aquifère. Des corrections ont par la suite été apportées au cours du calage en régime permanent effectué sur les données de l'année 2011. Ces corrections s'appuient principalement sur la nature et l'occupation du sol ainsi que sur la restitution de la piézométrie par le modèle. 4 zones ont ainsi été définies (Figure IV-13) :

- La première zone correspond à celle pour laquelle l'infiltration est la plus faible. La lame d'eau de percolation est estimée à 20 % des précipitations efficaces, soit 80,4 mm pour l'année 2011 (année ayant été utilisée pour le calage du modèle en régime permanent) en considérant une RFU de 100 mm. Cette alimentation relativement faible se justifie par l'observation d'un sol bien développé de type classiquement argileux à limoneux et la présence de forêts de feuillus au droit des secteurs en question. La lame d'eau atteignant le sol est largement réduite par ce couvert végétal dense.
- La seconde zone concerne un secteur recouvert d'un sol du même type que celui décrit précédemment. En revanche, l'occupation du sol est marquée par une diminution des forêts de feuillus et une augmentation des surfaces agricoles dédiées à des activités de pâturages. La recharge est estimée à 30 % de la pluie efficace, soit une lame d'eau de 121 mm pour l'année 2011 (avec une RFU de 100 mm).
- La troisième zone délimitée correspond à une recharge moyenne avec une lame d'eau de percolation estimée à 40 % des précipitations efficaces, soit 167 mm en 2011 (RFU de 100 mm). Ce secteur concerne globalement des terres où l'occupation du sol est composée de prairies et de zones de pâturage. Quelques parcelles sont labourées, ce qui facilite l'infiltration des précipitations dans le sous-sol.

 La quatrième zone est celle pour laquelle la lame d'eau de percolation est la plus importante. Elle correspond à 90 % de la pluie efficace, soit 400 mm pour l'année 2011 (avec une RFU de 100 mm). Les secteurs concernés par cette valeur d'infiltration sont situés au centre du massif de l'Ursuya, et à l'extrémité est. Au cœur du site, la roche fissurée est affleurante et on constate une quasi absence de sol.

A l'échelle régionale, la perméabilité de cet horizon est particulièrement faible (paragraphe 2.3.2.3), en revanche, à l'échelle de l'affleurement, les nombreuses discontinuités observées permettent une infiltration importante des pluies efficaces. D'autre part, l'occupation du sol est constituée exclusivement de landes et de broussailles. Le secteur situé à l'est du site est majoritairement occupé par des parcelles agricoles labourées permettant une infiltration importante.



Figure IV-13. Zones de recharge

Pour l'année 2011, la recharge de l'aquifère répondant à ce découpage correspond à un volume de 8,26 Mm³. Ces quatre zones et les valeurs de recharge appliquées ont été validées au cours de la phase de calage en régime permanent. Les hauteurs d'eau de recharge hebdomadaires intégrées au modèle pour le calage en régime transitoire entre juillet 2009 et juillet 2010 sont présentées sur la Figure IV-14.



Figure IV-14. Lame d'eau de recharge affectée par zones pour la période de juillet 2009 à juillet 2010

2.3. Simulation en régime permanent

Le modèle hydrogéologique a été dans un premier temps calibré en régime permanent. Cette première phase de simulation a été réalisée à partir des données de l'année 2011, période pour laquelle les données disponibles sont les plus complètes. Même si l'aquifère ne peut être considéré en état d'équilibre hydrodynamique, cette étape de validation en régime permanent permet de s'assurer du fonctionnement correct du modèle (validation de la géométrie et des conditions aux limites), de cerner les modalités d'écoulement globales et d'ajuster les champs de perméabilités et de recharge. Cette étape permet une première évaluation du modèle avant le passage au régime transitoire.

2.3.1. Processus de calibration et validation

Le calage en régime permanent a été réalisé sur les 198 sources pérennes répertoriées sur le massif. L'altitude des émergences correspondant au niveau piézométrique de la nappe, l'objectif de cette phase de calibration a consisté en la restitution de niveaux piézométriques simulés en adéquation avec l'élévation des émergences (Figure IV-15). Sur les 198 points d'observations, 170 présentent un écart inférieur à 10 m entre les valeurs simulées et observées, dont 120 présentent un écart inférieur à 5 m. 22 points de contrôles présentent des écarts compris entre 10 et 15 m et les niveaux simulés présentent un écart de 15 m à 20 m avec les niveaux observés pour 6 sources.

Les paramètres de calage révèlent un résultat globalement bon avec un résidu moyen \overline{R} (moyenne des écarts entre les valeurs observées et simulées) de 0,89 m. Les mesures surestimées et sous-estimées se compensant, le calcul du résidu moyen absolu $|\overline{R}|$ (moyenne des écarts absolus) fournit une meilleure indication. La valeur calculée est logiquement plus élevée (4,85 m), mais elle reste acceptable compte-tenu de l'échelle du modèle. Cette valeur correspond en effet à 1,03% de la gamme de piézométrie observée. En outre, cette simulation en régime permanent ne constitue qu'une étape de validation du modèle avant l'étape du régime transitoire.



Figure IV-15. Hauteurs piézométriques calculées et observées, droite de régression $(y = 1,0016 x - 0,0024 ; r^2 = 0,99)$ et intervalle de confiance à 95 %

2.3.2. Paramètres hydrodynamiques implémentés

Les capacités d'un système aquifère à conduire le flux et à stocker l'eau sont déterminées par ses propriétés hydrodynamiques, paramétrées à l'aide de la perméabilité et du coefficient d'emmagasinement. Afin de simuler des écoulements souterrains au plus proche de la réalité, les valeurs de perméabilités et d'emmagasinement utilisées dans le modèle sont basées sur les quelques données obtenues par essais de pompages (Tableau IV-2) et sur les valeurs relevées dans la littérature pour des systèmes analogues (Tableau IV-8). Ces valeurs ont ensuite été ajustées durant les phases de calage en régimes permanent (pour la perméabilité) et transitoire (perméabilité et emmagasinement), notamment afin de préciser l'influence des discontinuités sur les écoulements souterrains au sein du massif de l'Ursuya.

Les valeurs de perméabilité utilisées dans le modèle numérique sont présentées sur la Figure IV-16. Elles sont détaillées pour chaque couche dans les paragraphes 2.3.2.1 à 2.3.2.4. L'emmagasinement est ensuite plus succinctement abordé.

2.3.2.1. <u>Altérites</u>

Les valeurs de perméabilité observées pour des milieux altérés de type arènes granitiques sont comprises entre $2,0\times10^{-9}$ m s⁻¹ et $2,3\times10^{-4}$ m s⁻¹, pour une moyenne de $2,0\times10^{-5}$ m s⁻¹ (Tableau IV-8). Sur le massif de l'Ursuya, les valeurs observées après calage du modèle numérique sont comprises entre $5,0 \times 10^{-8}$ m s⁻¹ et $5,0 \times 10^{-7}$ m s⁻¹ (Figure IV-16). Cette gamme de perméabilité est en adéquation avec les valeurs parmi les plus faibles relevées dans la littérature (Tableau IV-8). Les valeurs de perméabilités des altérites sont légèrement plus faibles à l'ouest du massif (lieux dits Mendurria et Sohano ; Figure IV-16) que sur le reste du site avec des valeurs de 1.0×10^{-7} m s⁻¹. Ceci montre que les processus de mise en place (ou d'érosion) des altérites sont localement variable, impliquant un degré d'altération et donc des propriétés hydrodynamiques hétérogènes pour cet horizon. Seule une zone au sud-ouest (proche du lieu dit Olhasso) présente des perméabilités beaucoup plus faibles avec une valeur de 5.0×10^{-8} m s⁻¹. La carte géologique (chapitre 1) indique la présence de pegmatites dans ce secteur. L'altération de ces roches éruptives engendre donc des matériaux d'altération très différents des altérites gneissiques classiquement observées sur le massif de l'Ursuva. La présence de cette lentille de pegmatite explique les perméabilités plus faibles déterminées dans ce secteur géographique.

Horizon	Páfáranca	Contaxta	Máthoda d'astimation	$K (m s^{-1})$		
nonzon	Kejerence	Comexie	Methode a estimation	Min.	Moy.	Max.
	Houston et Lewis, 1988*	Granite (Province Victoria)	Essais de pompages	$6,0 \times 10^{-7}$	$3,0 \times 10^{-6}$	4,0×10 ⁻
	McFarlane, 1992*	Roches cristallines (Malawi)	Essais de pompages	$5,0 \times 10^{-7}$	$5,5 \times 10^{-7}$	5,0×10
	Wright, 1992*	Roches cristallines (Afrique)	Essais de pompages	2.0×10^{-7}	4.0×10^{-6}	4,0×10
	Chilton et Foster, 1995	Roches cristallines (Afrique)	Revue bibliographique	4.6×10^{-7}	2.5×10^{-6}	4,6×10
	Campaore et al., 1997*	Granite (Burkina Faso)	Essais de pompages	7.0×10^{-8}	1.0×10^{-6}	1.0×10
Altérites	Lee et Lee. 2000	Gneiss (Corée)	Tracages, essais de pompages	2.7×10^{-6}	3.0×10^{-5}	5.7×10
linernes	Taylor et Howard, 2000*	Roches cristallines (Uganda)	Essais de pompages	5.8×10^{-5}	1.4×10^{-4}	2.3×10^{-10}
	Dewandel <i>et al.</i> 2005	Ophiolites (Oman)	Essais de pompages porosité mercure	2.0×10^{-9}	5.0×10^{-7}	1.0×10
	Banks <i>et al.</i> 2009	Roches métamorphiques (Australie)	Essais de pompages	4.6×10^{-7}	1.5×10^{-5}	2.9×10^{-1}
	Lachassagne <i>et al</i> 2011	Cas général	Revue hibliographique	4,0/10	$1,5\times10^{-6}$	2,7~10
	Lachassagne et ut., 2011	Cas general	Movonnos	7 0×10 ⁻⁶	$1,0\times 10^{-5}$	4.6~10
	Chilton at Smith Comington 1094*	Rachas aristallings (Malawi)	Econic de nomneges	$7,0\times10$	$\frac{2,0\times10}{7.0\times10^{-6}}$	4,0×10
	Chinton et Sintil-Carrington, 1984*	Roches cristannies (Malawi)	Essais de poinpages	$2,0\times10$	7,0×10	2,0×10
<i></i>	Kushton et weller, 1985*	Granite (Inde)	Essais de pompages	$4,0\times10^{-7}$	$5,0\times10^{-6}$	6,0×10
Horizon de	McFarlane, 1992*	Roches cristallines (Malawi)	Essais de pompages	9,0×10 ⁻⁷	$3,0\times10^{-6}$	8,0×10
transition	Taylor et Howard, 2000*	Granite (Uganda)	Essais de pompages	$5,0\times10^{-7}$	2,0×10 °	8,0×10
	Dewandel et al., 2006	Granites (Inde)	Mesures de flux	7,0×10	4,0×10 °	3,0×10
			Moyennes	1,6×10 ⁻⁶	4,2×10 ⁻⁶	1,4×10
	Uhl et Sharma, 1978*	Roches cristallines (Inde)	Essais de pompages	$1,0\times10^{-6}$	$4,0\times10^{-5}$	4,0×10⁻
	Rushton et Weller, 1985*	Granite (Inde)	Essais de pompages	$4,0\times10^{-3}$	$5,0\times10^{-5}$	6,0×10
	Houston et Lewis, 1988*	Granite (Province Victoria)	Essais de pompages		$3,0\times10^{-6}$	
	Howard <i>et al.</i> , 1992*	Roches cristallines (Uganda)	Essais de pompages	$1,0 \times 10^{-9}$	$1,0 \times 10^{-7}$	3,0×10
	Chilton et Foster, 1995	Roches cristallines (Afrique)	Revue bibliographique	$9,2 \times 10^{-7}$	$4,5 \times 10^{-6}$	8,1×10
Horizon fissuré	Leveinen et al., 1998	Roches cristallines (Finlande)	Essais de pompages	$5,0 \times 10^{-6}$	9,0×10 ⁻⁶	1,3×10
	Guimerà et Carrera, 2000	Cas général	Réinterprétation d'essais de traçages	$1,0 \times 10^{-9}$	$5,0 \times 10^{-4}$	1,0×10 ⁻
	Lee et Lee, 2000	Gneiss (Corée)	Traçages, essais de pompages	$3,1 \times 10^{-6}$	$1,7 \times 10^{-5}$	3,0×10⁻
	Taylor et Howard, 2000*	Granite (Uganda)	Essais de pompages	$3,0 \times 10^{-7}$	$2,0\times10^{-6}$	4,0×10 ⁻
	Maréchal et al., 2004*	Granite (Inde)	Essais de pompages	1.0×10^{-6}	2.0×10^{-5}	1,0×10
	Dewandel et al., 2005	Ophiolites (Oman)	Essais de pompages, porosité mercure	1.0×10^{-7}	5.0×10^{-6}	1,0×10
	Dewandel et al., 2006	Granites (Inde)	Mesures de flux	5.0×10^{-6}	2.0×10^{-5}	9.0×10
	Chandra <i>et al.</i> , 2008	Granites fracturés (Indes)	Essais de pompages et géophysique	9.0×10^{-7}	5.5×10^{-6}	1.0×10
	Banks et al 2009	Roches métamorphiques (Australie)	Essais de pompages	1.7×10^{-5}	8.8×10^{-5}	1.6×10
	Dewandel <i>et al</i> 2011	Granites (Inde)	Essais de pompages	1,7.110	1.0×10^{-5}	1,010
	Lachassagne $et al = 2011$	Cas général	Revue hibliographique		1.0×10^{-5}	
	Edendssägne et ut., 2011	Cas general	Moyonnos	5 7×10 ⁻⁶	1,0×10 1 0×10 ⁻⁵	2 2~10
Roche saine	Aquiling at al 2004	Granite profond	Essais de nomnages et de tracages	<u>6.6×10⁻⁸</u>	1.2×10 ⁻⁶	2 2 v 10
	Aquinna et al. 2004 Maráchal et al. 2004*	Granite protonu Granita (Inda)	Essais de pompages et de traçages	7.0×10^{-10}	$1,2\times 10$ 5 0×10 ⁻⁸	$2,3\times10$
	Dowondol at al. 2005	Orbiolitos (Omon)	Essais de pompages peresité mercure	1.0×10^{-7}	$5,0\times10$	1,0×10
fracturée	Dewandel <i>et al.</i> , 2005	Opmontes (Oman)	Essais de pompages, porosite mercure	$1,0\times10^{-6}$	$3,0\times10^{-5}$	1,0×10
-	Dewandel et al., 2006	Granites (Inde)	mesures de liux	4,2×10 °	2,5×10 ⁻⁶	4,2×10
			Moyennes	1,1×10 °	7,3×10 °	1,4×10



Figure IV-16. Cartes de perméabilités (la toponymie indiquée est mentionnée dans le texte)

2.3.2.2. <u>Horizon de transition</u>

Concernant l'horizon de transition, les données de perméabilité présentées dans la littérature sont plus rares. En effet, cet horizon est rarement individualisé et de ces matériaux de transition sont souvent inclus dans les altérites sus-jacentes ou dans l'horizon fissuré sousjacent. Néanmoins, une gamme de perméabilité peut être établie entre 5.0×10^{-7} m s⁻¹ et $3,0\times10^{-5}$ m s⁻¹ (moyenne de $4,2\times10^{-6}$ m s⁻¹) pour les matériaux de transition (Tableau IV-8). Avec une valeur de $3,0 \times 10^{-7}$ m s⁻¹ (hormis quelques exceptions discutées ci-après) les perméabilités déterminées pour les matériaux de transition sur le massif de l'Ursuya, sont une nouvelle fois dans la gamme basse des valeurs observées dans la littérature (Figure IV-16). Le secteur d'Olhasso abordé précédemment présente une nouvelle fois des caractéristiques différentes avec une perméabilité plus faible de l'ordre de $7,0\times10^{-8}$ m s⁻¹. Les valeurs de perméabilité de l'horizon de transition dans les secteurs de Mendurria et Sohano sont les mêmes que pour les altérites sus-jacentes $(1,0 \times 10^{-7} \text{ m s}^{-1})$. D'autre part, il est particulièrement intéressant d'observer que certaines discontinuités commencent d'ores et déjà à impacter les écoulements souterrains. En effet, la fracturation du massif de l'Ursuya engendre des perméabilités significativement plus importantes de l'horizon de transition au droit de quelques linéaments $(1.0 \times 10^{-6} \text{ m s}^{-1} \text{ à } 1.0 \times 10^{-5} \text{ m s}^{-1})$.

2.3.2.3. <u>Horizon fissuré</u>

Les valeurs de perméabilité répertoriées dans la littérature pour l'horizon fissuré sont comprises entre $1,0\times10^{-9}$ m s⁻¹ et $1,0\times10^{-3}$ m s⁻¹ avec une moyenne de $4,9\times10^{-5}$ m s⁻¹ (Tableau IV-8). Nous avons fait le choix de représenter cet horizon au travers de deux couches (horizon fissuré supérieur et horizon fissuré inférieur ; Figure IV-9) afin de simuler au mieux les variations verticales de perméabilités au sein de cet horizon.

Horizon fissuré supérieur

L'horizon fissuré supérieur, lorsqu'il n'est pas affleurant, (donc sous jacent à l'horizon de transition), présente des propriétés hydrodynamiques très proches de celles de la couche de transition ($K = 1 \times 10^{-7}$ m s⁻¹), mis à part sur les secteurs géographiques de Petchoénéa et Sohano (Figure IV-16). L'horizon fissuré est en effet peu perméable au sud ouest de la vallée de Petchoénéa avec une perméabilité de 7×10^{-8} m s⁻¹. Les forages Pe4 et Pe5 sont situés à l'extrémité nord est de ce secteur. Les diagraphies de flux présentées dans le paragraphe 1.2 de ce chapitre ont mis en évidence les très faibles flux en dessous des matériaux d'altération au sein de ces deux ouvrages. Les perméabilités observées ici sont donc en adéquation avec ces observations, à savoir des écoulements majoritaires dans les matériaux altérés et de transition dans ce secteur. Néanmoins, les résultats physico-chimiques (chapitre 3) ont prouvé que des écoulements dans le milieu fissuré existent, malgré de faibles flux. En ce qui concerne le secteur de Sohano, la perméabilité est encore plus faible avec une valeur de 5×10^{-8} m s⁻¹. Ce secteur n'ayant pas fait l'objet de sondages, les propriétés hydrodynamiques intégrées au modèle peuvent être soumises à incertitudes. Toutefois, elles permettent de bien retranscrire la piézométrie indiquée par les sources émergeant dans cette zone géographique.

L'horizon fissuré supérieur est affleurant dans deux secteurs du massif de l'Ursuya : dans la vallée de la Nive d'une part (limite ouest du site) et au cœur du massif d'autre part (autour du Mont Ursuya). Dans la vallée de la Nive, la perméabilité est de 1×10^{-6} m s⁻¹. Au contraire, elle est très faible en altitude, autour du Mont Ursuya (5×10^{-8} m s⁻¹). Comme pour le secteur de Sohano, la détermination des propriétés hydrodynamiques de ces deux secteurs s'est appuyée uniquement sur les altitudes des émergences. La très faible perméabilité observée dans le secteur du Mont Ursuya contraste avec les nombreuses fissures d'échelles métriques observées à l'affleurement. Celles-ci sont donc majoritairement comblées et/ou non connectées. Cependant, les nombreuses émergences observées dans cette zone géographique impliquent l'existence de discontinuités hydrodynamiquement actives. A l'échelle du site, de nombreux linéaments de taille kilométrique sont marqués par des zones de plus fortes perméabilités (5×10^{-6} m s⁻¹ à $3,5 \times 10^{-4}$ m s⁻¹) et donc d'écoulement préférentiels. Ce phénomène corrobore l'ensemble des hétérogénéités (géologiques, physico-chimiques, hydrodynamiques) observées sur le massif de l'Ursuya.

Horizon fissuré inférieur

Mis à part pour les secteurs géographiques particuliers abordés dans le paragraphe précédent, la perméabilité de l'horizon fissuré inférieur est supérieure à celle de la couche sus jacente. Une valeur de perméabilité de 1×10^{-6} m s⁻¹ est en effet majoritairement appliquée sur cette couche (Figure IV-16). Les secteurs de très faible perméabilité (K = 5×10^{-8} m s⁻¹) sont les mêmes que pour la couche précédente (Petchoénéa, Sohano et Mont Ursuya). A ceux-là s'ajoutent le secteur géographique de Mendurria ainsi qu'une zone au sud du Mont Ursuya, avec une perméabilité de 1×10^{-7} m s⁻¹. Cette valeur est similaire à celle appliquée à la couche supérieure. L'horizon fissuré est donc verticalement homogène dans ces deux secteurs.

Les discontinuités ouvertes sont les mêmes que celles révélées sur l'horizon fissuré supérieur. Elles présentent des perméabilités comprises entre 5×10^{-4} m s⁻¹ et 1×10^{-5} m s⁻¹, globalement plus élevées que pour la couche sus-jacente. Cet horizon présente globalement les perméabilités les plus favorables aux écoulements souterrains.

2.3.2.4. Roche saine

La roche saine présente logiquement des perméabilités très faibles ($K = 1 \times 10^{-8} \text{ m s}^{-1}$; Figure IV-16). Les valeurs présentées dans le Tableau IV-8 sont principalement issues d'investigations dans des contextes où des fractures tectoniques sont présentes. Il est donc normal d'obtenir des perméabilités plus faibles dans notre cas. Néanmoins, certaines de ces valeurs relevées dans la littérature confortent nos estimations avec des perméabilités minimum de l'ordre de $1 \times 10^{-10} \text{ m s}^{-1}$ (Maréchal *et al.*, 2004). Cependant, des forages profonds dans la roche saine du massif de l'Ursuya permettraient d'affiner cette estimation et montreraient certainement des propriétés localement plus favorables aux écoulements souterrains profonds au droit de certaines fractures. Toutefois, dans un objectif d'exploitation pour l'alimentation en eau potable, cet horizon peut être considéré comme le mur de l'aquifère.

2.3.2.5. <u>Emmagasinement spécifique</u>

Les données d'emmagasinement spécifique disponibles dans la littérature sont plus rares. Pour des matériaux d'altération, on trouve des valeurs allant de $2,0 \times 10^{-3}$ m⁻¹ à $5,5 \times 10^{-3}$ m⁻¹ (Dewandel *et al.*, 2006). Concernant la roche fissurée, des valeurs comprises entre $7,0 \times 10^{-3}$ m⁻¹ (Dewandel *et al.*, 2011) et $2,7 \times 10^{-6}$ m⁻¹ (Lee et Lee, 2000) sont proposées. Les valeurs obtenues sur la massif de l'Ursuya après la phase de calibration du modèle sont de 5×10^{-4} m⁻¹ pour les altérites, 1×10^{-4} m⁻¹ pour la zone de transition, 5×10^{-5} m⁻¹ pour l'horizon fissuré (la valeur est identique pour les horizons fissurés supérieur et inférieur) et 1×10^{-5} m⁻¹ pour la roche saine. Ces valeurs sont plus faibles que celles disponibles dans la littérature, notamment en ce qui concerne les altérites. Cependant, le nombre de données bibliographiques ne permet pas de les généraliser. En revanche, les valeurs d'emmagasinement déterminées sont proches de celles obtenues par essais de pompage dans les forages Pe4 et Pe5 (paragraphe 1.1.2.3) et elles permettent d'obtenir des variations de niveaux de nappes simulées en adéquation avec les variations piézométriques observées.

Les valeurs d'emmagasinement observées par essais de pompages dans les ouvrages Ip2 et Osp9, beaucoup plus élevées que celles intégrées dans le modèle numérique, sont attribuées à des lentilles de cipolins et semblent très localisées. L'extension des calcaires métamorphiques n'est pas connue et paraît relativement restreinte (Boissonas *et al.*, 1974). Ils n'ont donc pas été intégrés au modèle numérique.

2.3.3. Bilan quantitatif et piézométrie restituée

La connaissance des volumes écoulés au sein des cours d'eau est également un bon moyen de contrôler la validité du modèle numérique. Sept ruisseaux ont en effet fait l'objet de mesures de hauteur d'eau en continu entre août 2009 et juin 2012. Les volumes écoulés ont été approché *via* l'établissement de courbes de tarages (annexe A). Les volumes prélevés au sein des sources de débordement pour l'alimentation en eau potable sont également connus. Ces prélèvements constituent un volume d'eau qui ne participera pas aux écoulements de surface et doivent donc être pris en compte pour établir un bilan entre les écoulements de surface mesurés et simulés. Bien que les écoulements de surface ne soient pas directement simulés, ils peuvent être approchés par les volumes sortant du modèle, au niveau des cellules à condition de drain. Le bilan quantitatif entre les écoulements de surface mesurés et simulés est présenté dans le Tableau IV-9. La surface contrôlée correspond aux sept bassins versants hydrologiques pour lesquels les débits des cours d'eau sont connus. Avec une superficie de 12,5 km², cette surface correspond à 30 % de la superficie du massif de l'Ursuya.

		Duálas amonto da		V. de	Différence	
	Cours d'eau	surface	V. total mesuré	débordement simulé	Simulé – mesuré	% du V. simulé
Surface contrôlée	9884208 m ³ an ⁻¹ 27080 m ³ j ⁻¹	1265417 m ³ an ⁻¹ 3467 m ³ j ⁻¹	11149625 m ³ an ⁻¹ 30547 m ³ j ⁻¹	11680693 m ³ an ⁻¹ 32002 m ³ j ⁻¹	531068 m ³ an ⁻¹ 1455 m ³ j ⁻¹	4,5
Surface totale	9884208 m ³ an ⁻¹ 27080 m ³ j ⁻¹	1647187 m ³ an ⁻¹ 4513 m ³ j ⁻¹	11531395 m ³ an ⁻¹ 31593 m ³ j ⁻¹	32610925 m ³ an ⁻¹ 88779 m ³ j ⁻¹	$\begin{array}{c} 21079529 \ m^3 \ an^{-1} \\ 57752 \ m^3 \ j^{-1} \end{array}$	65

Tableau IV-9	. Bilan entre les	écoulements de	e surface mesur	és et simulés ((V. = volume)
Insiena I / >		eeouremento at	· sar lace mesar		(

Le Tableau IV-9 permet de mettre en évidence une bonne restitution par le modèle des volumes écoulés en surface pour les bassins versants contrôlés. Le volume d'eau sortant à la surface du modèle au niveau des cellules à condition de drain est très légèrement supérieur à la somme des volumes mesurés au sein des cours d'eau et des prélèvements de surface. La différence entre les flux observés et simulés correspond en effet à 4,5% du volume simulé.

A l'échelle du modèle, la différence entre les écoulements de surface simulés et mesurés représente 65 % des volumes simulés. C'est-à-dire que seul 35 % des flux sortant du modèle ont été mesurés. Cette différence peut être reliée à la superficie des bassins versants contrôlés par des stations limnimétriques. Celle-ci correspond en effet à 30 % de la superficie totale du massif. Les 65 % de volume simulé supplémentaires par rapport aux flux mesurés peuvent globalement correspondre aux 70 % de surface non contrôlée.

La simulation en régime permanent permet donc de retranscrire des modalités d'écoulements en adéquation avec les observations, que ce soit du point de vue de la piézométrie comme de celui des écoulements de surface. Ces observations illustrent la cohérence du modèle en régime permanent. La restitution de la piézométrie de l'aquifère par le modèle numérique peut donc être considérée comme réaliste, dans les limites d'application d'un régime stationnaire à un état observé non stationnaire.

La piézométrie restituée par le modèle numérique en régime permanent (Figure IV-17) montre logiquement des conditions d'écoulement globalement radiales, du centre du massif, vers l'extérieur. Les flux sortants du système aquifère de l'Ursuya *via* les conditions de potentiels imposés sont de 11872 m³ j⁻¹ pour 4487 m³ j⁻¹ entrants. L'influence du réseau hydrographique est également particulièrement marquée. En effet le drainage de la nappe par les cours d'eau, dont les flux ont été détaillés plus haut, est bien visible sur la carte piézométrique. La forme des isopièzes indique clairement une alimentation des cours d'eau par la nappe.



Figure IV-17. Charges hydrauliques calculées en régime permanent

2.4. Simulations en régime transitoire

2.4.1. Processus de calibration et interprétation

La simulation en régime transitoire a été réalisée sur une période de trois ans, entre juin 2009 et juin 2012. Elle a permis de préciser la distribution des paramètres hydrodynamiques en affinant le calage des conductivités hydrauliques et des coefficients d'emmagasinement implémentés. La comparaison des chroniques piézométriques calculées et observées permettra de valider le modèle numérique, mais également de mettre en avant certaines imprécisions. La relation entre les écoulements souterrains et le réseau hydrographique sera également précisée grâce aux simulations en régime transitoire.

2.4.1.1. Chroniques piézométriques

La comparaison des chroniques piézométriques mesurées et simulées (Figure IV-18) révèle une bonne restitution de la piézométrie par le modèle, malgré quelques imprécisions. Le résidu moyen \overline{R} de -0,3 m et le résidu moyen absolu $|\overline{R}|$ de 2,2 m confirment la représentativité du modèle numérique. Néanmoins, la comparaison des variations de charges observées et simulées dans certains forages mérite d'être détaillée. Les résidus moyens et moyens absolus caractérisant la différence entre les charges simulées et observées sont présentés pour chaque forage individuellement dans le Tableau IV-10. La comparaison des chroniques simulées et observées pour les forages Osp9 et Ip2 (Figure IV-18) montre une très bonne qualité du calage. Cette observation est confirmée par la valeur du résidu absolu moyen pour ces deux forages (0,29 m et 0,32 m respectivement ; Tableau IV-10).

Pour les forages Pe4 et Pe5, la simulation en régime transitoire met en évidence la difficulté du modèle à restituer les variations rapides et de forte amplitude des niveaux piézométriques en réponse aux impulsions pluvieuses. En effet, même si les augmentations de charges simulées sont synchrones avec les mesures, leur amplitude est en revanche plus faible, en particulier pour Pe4. La réactivité très rapide et puissante de la nappe et la faible inertie du système au droit de ces deux ouvrages (paragraphes 1.3 et 1.4 de ce chapitre) est difficilement simulable au pas de temps hebdomadaire utilisé pour ce modèle.

Concernant les forages exploités, les chroniques observées pour Ar5 sont très proches des chroniques simulées (Figure IV-18). Le résidu moyen absolu confirme le bon calage du modèle pour cet ouvrage (0,74 m ; Tableau IV-10). Le calage est en revanche moins bon pour le forage Ar3 ($|\bar{R}| = 2,56$ m), néanmoins la faible période de mesures disponible pour celui-ci (40 semaines) ne nous permet pas de comparer les chroniques simulées et observées sur un cycle hydrologique complet.

Forage	Utilisation / donnees disponibles	R(m)	R (m)
Osp9	Non exploité / donnée horaire	0,18	0,29
Ip2	Non exploité / donnée horaire	0,07	0,32
Pe4	Non exploité / donnée horaire	-2,59	2,62
Pe5	Non exploité / donnée horaire	-0,52	1,38
Osp5	Exploité / Charges min. et max. journalières	4,85	6,44
Pit11	Exploité / Charges min. et max. journalières	1,34	1,56
Pit16	Exploité / Charges min. et max. journalières	-4,05	4,39
Ar3	Exploité / 1 mesure par semaine (non disponible pour 2010 et depuis mai 2011)	-2,52	2,56
Ar5	Exploité / 1 mesure par semaine (non disponible pour 2010)	0,22	0,74

151

 Tableau IV-10. Résultats de calage en régime transitoire et chroniques piézométriques disponibles



Figure IV-18. Chroniques piézométriques mesurées et calculées

La problématique du mode d'enregistrement des niveaux piézométriques des forages Pit11, Pit16 et Osp5 (valeur minimum et maximum journalière) se répercute sur le calage du modèle au droit de ces ouvrages, particulièrement pour Pit16 et Osp5. Sur la Figure IV-18, la représentation des chroniques mesurées dans ces trois puits correspond à la moyenne arithmétique entre les valeurs minimum et maximum journalières, bien que cette valeur ne représente pas rigoureusement le niveau moyen de la nappe. Pour ces trois points d'observation, le calage a consisté à représenter au mieux les variations de charges, tout en restant dans la plage définie par les valeurs maximum et minimum observées. Le calage du forage Pit11 reste acceptable avec un résidu moyen absolu de 1,56 m (Tableau IV-10). Les variations de charges simulées pour le forage Pit16 sont globalement synchrones avec les variations observées, malgré un niveau moyen simulé plus bas. Concernant le forage Osp5, la plage de variation des charges simulées correspond à la plage de variation des moyennes journalières mesurées. D'autre part, même si elles ne sont pas parfaitement corrélées, les variations de charge simulées sont globalement concordantes avec les chroniques calculées sur la base des minima et maxima journaliers.

Cette comparaison entre les chroniques piézométriques simulées et observées met en exergue la nécessité de mesures de charge précises et régulières pour la calibration d'un modèle numérique hydrodynamique, particulièrement pour des simulations en régime transitoire de durée relativement courte. La calibration de ce modèle en régime transitoire nous a permis d'approcher au mieux les conditions d'écoulement réelles. Des imperfections persistent néanmoins, celles-ci pouvant être attribuées pour partie à la qualité du calage, mais également à la qualité de la mesure disponible. Toutefois, la restitution du modèle numérique dans sa globalité est acceptable.

2.4.1.2. <u>Chroniques limnimétriques</u>

Le bilan quantitatif effectué sur une année complète en régime permanent (paragraphe 2.3.3) ainsi que la forme des isopièzes (Figure IV-17) ont mis en évidence des relations étroites entre les écoulements souterrains et le réseau hydrographique. La simulation effectuée en régime transitoire entre juin 2009 et juin 2012 permet de préciser ces échanges nappe-rivières.

Avec un écart absolu moyen de 10 cm, on constate tout d'abord la bonne corrélation entre les niveaux de bases simulés et observés (Tableau IV-11). Ainsi, l'écart maximum est observé pour le ruisseau Urcuray, avec une différence de 24 cm entre les niveaux de base simulé et observé.

	Mesuré		Simulé		Amplituda simuláa	
Ruisseau	Niveau	Amplitude	Niveau	Amplitude	(on % do l'amplitudo mosuráo)	
	de base	maximum	de base	maximum	(en /o de i amplitude mesuree)	
Urrutia	142,02	0,10	142,11	0,08	80	
Costaitsia	133,15	0,11	133,00	0,05	45	
Louhosso a	105,56	0,15	105,52	0,01	7	
Etcheandi a	105,09	0,09	105,01	0,02	22	
Urcuray	83,52	0,16	83,28	0,13	81	
Bassebour e	58,12	0,12	58,08	0,02	17	
Lattiaénéa	71,36	0,25	71,27	0,01	4	
Heyderrea	24,60	0,22	24,51	0,02	9	

Tableau IV-11. Comparaisons des niveaux simulés et observés dans les cours d'eau

Ce résultat est une nouvelle confirmation de l'alimentation des cours d'eau par la nappe, en particulier en période d'étiage. En revanche, en période de crue, la modélisation en régime transitoire met en évidence des comportements différents suivant les cours d'eau considérés. Ces différences de comportement sont illustrées par la restitution des limnigrammes par le modèle. Cette restitution est approchée par la différence d'amplitude de variation mesurée et simulée (Tableau IV-11). Les Figures IV-19, IV-20 et IV-21 permettent également d'observer la restitution des limnigrammes par le modèle pour chacun des cours d'eau investigués. Ces graphiques sont construits de façon à observer facilement les amplitudes de variation. Pour cela, les niveaux de base simulés et observés ont été alignés.



Figure IV-19. Niveaux observés et simulés dans les cours d'eau Urrutia et Urcuray



Figure IV-20. Niveaux observés et simulés dans les cours d'eau Costaitsia, Etchéandia et Basseboure





Trois types de relations nappe-rivière se détachent de cette analyse. Concernant les cours d'eau Urrutia et Urcuray, les phases de crues sont restituées presque en totalité par le modèle. L'amplitude de variation simulée correspond en effet à 80% de l'amplitude mesurée (Tableau IV-11). Cette relation est également bien visible sur la Figure IV-19. L'hypothèse d'une alimentation principalement souterraine pour ces deux cours d'eau peut donc être avancée. Les conclusions du bilan hydrologique présentées dans le chapitre 2 allaient d'ailleurs dans le même sens pour ces deux cours d'eau.

La restitution des courbes de crues par le modèle pour les cours d'eau Costaitsia, Etchéandia et Basseboure est moins bonne (Figure IV-20). En effet, respectivement 45 %, 22 % et 17 % des amplitudes de variation mesurées sont restituées par la simulation en régime transitoire (Tableau IV-11). Le modèle réalisé ne permet pas de simuler les écoulements de surface et ne considère que les écoulements souterrains. L'apport des écoulements souterrains à ces trois cours d'eau est donc moins important que les apports par écoulements superficiels et hypodermiques, particulièrement en période de crue. Les amplitudes de variations restituées par le modèle pour les cours d'eau Louhossoa, Lattiénéa et Heyderrea sont respectivement de 7 %, 4 % et 9 % des amplitudes mesurées (Tableau IV-11 et Figure IV-21). Selon le même raisonnement que précédemment, on peut estimer que les apports souterrains à ces trois cours d'eau sont très limités en période de crue. Ils sont donc majoritairement alimentés par des écoulements de surface.

La comparaison des chroniques limnimétriques mesurées et des chroniques piézométriques simulées montre la bonne restitution des niveaux d'étiages des cours d'eau par le modèle. En période de basses eaux, la hauteur d'eau dans les ruisseaux correspond au niveau piézométrique de la nappe. En phase de crue, le fonctionnement est différent suivant les bassins versants. Les flux souterrains participent alors de façon plus ou moins importante aux écoulements superficiels.

2.4.2. Incidence des prélèvements sur la piézométrie

La réalisation du modèle numérique en régime transitoire offre la possibilité d'observer l'influence des prélèvements sur la piézométrie (Figure IV-22). Les charges simulées au cours de périodes pour lesquelles les prélèvements sont nuls ou faibles (0 m³ du 1/02/2012 au 7/02/2012 pour Osp5 ; 0 m³ du 6/07/2010 au 12/07/2010 pour Ar3 et Ar5 ; 0 m³ pour Pit11 et 314 m³ pour Pit16 du 22/02/2011 au 28/02/2011) ont été soustraites aux charges simulées en périodes d'exploitation (2951 m³ du 25/08/20 au 31/08/09 pour Osp5 ; 1519 m³ pour Ar3 et 1563 m³ pour Ar5 entre le 1/09/09 et le 7/09/2009 ; 1012 m³ pour Pit11 et 1672 m³ pour Pit16 du 31/08/2010 au 6/09/2010). La différence mesurée permet de déterminer l'impact des pompages et notamment le rayon d'influence des ouvrages.

Cette comparaison met en évidence une influence très localisée des pompages. Pour Osp5, forage présentant le débit d'exploitation le plus élevé, le rayon d'influence est estimé à moins de 100 m par le modèle. Il est plus faible pour Ar3 et Ar5 avec une cinquantaine de mètres et il est de l'ordre de 60 m pour Pit16. Pour le forage Pit11, l a différence de charge calculée fait état d'un rayon d'influence de l'ordre de la dizaine de mètres, avec un rabattement proche de 3 m.

A l'échelle du massif de l'Ursuya et compte-tenu des débits d'exploitation, il est certain que ces prélèvements n'induisent que peu de modifications sur les lignes d'écoulements au sein de l'aquifère. Cette observation confirme les résultats établis par Armand et Triscos (1999) et Fiquet *et al.* en 1999 qui démontraient l'absence d'interactions entre les écoulements induits par les pompages et les écoulements naturels au niveau des émergences exploitées. En 1999, Fiquet *et al.* soulignaient également l'absence d'interférences entre Ar3 et Ar5. Compte-tenu de la distance séparant ces deux ouvrages (139 m) et de leurs rayons d'influences respectifs, cela est confirmé par la modèle. Hydro assistance faisait la même observation pour les forages Pit11 et Pit16 en 2001. Ces ouvrages sont espacés de 218 m. Une nouvelle fois, la retranscription des écoulements par le modèle est en accord avec ces observations.





2.5. Impact des évolutions climatiques sur les écoulements souterrains

Dans son cinquième rapport de synthèse sur les changements climatiques (GIEC, 2007), le groupe d'expert intergouvernemental sur l'évolution du climat indique que le réchauffement du système climatique est sans équivoque, avec une tendance linéaire de +0,74°C pour la période 1906-2005 à l'échelle mondiale.

Cette élévation de température s'accompagne de modifications du climat global et concerne donc également les régimes de précipitation et d'évapotranspiration. Ces deux derniers sont ceux qui peuvent impacter le plus fortement les écoulements souterrains par une modification de la recharge des aquifères. A l'échelle mondiale, l'hypothèse d'une augmentation des précipitations aux latitudes élevées et au contraire, une diminution sur la plupart des terres émergées subtropicales semble très probable (GIEC, 2007). Concernant la France, Pagé et Terray (2010) envisagent une augmentation des précipitations hivernales sur le relief méditerranéen, le Massif Central et les Pyrénées orientales, et une diminution sur le Pays Basque et la pointe Bretonne. En été, la diminution de la lame d'eau précipitée concernera pratiquement tout le territoire. Les variations envisagées restent cependant de faible amplitude.

Dans ce contexte, et dans une optique de gestion de la ressource à long terme, il semble indispensable d'évaluer les impacts de ces variations climatiques sur les écoulements souterrains. Après avoir précisé les différents scénarios envisagés par les spécialistes, nous présenterons les données que nous avons utilisées pour effectuer des simulations prévisionnelles. Les résultats de ces simulations seront ensuite détaillées, afin d'estimer les évolutions potentielles des écoulements souterrains au sein de l'aquifère de l'Ursuya.

2.5.1. Les évolutions climatiques envisagées

Les scénarios d'évolution du climat se basent sur des hypothèses de développement, fonctions d'un large éventail de facteurs démographiques, économiques et technologiques et sur les émissions de gaz à effet de serre qui en résultent (IPCC, 2000). Ces différents scénarios sont regroupés en quatre familles : A1, A2, B1 et B2.

- La famille A1 fait l'hypothèse d'un monde caractérisé par une croissance économique très rapide, un pic de la population mondiale au milieu du siècle et des progrès technologiques rapides. Cette famille de scénarios se répartit en trois groupes qui correspondent à différentes orientations de l'évolution technologique du point de vue des sources d'énergie : à forte composante fossile (A1FI), non fossile (A1T) et équilibrant les sources (A1B).
- L'hypothèse A2 décrit un monde très hétérogène caractérisé par une forte croissance démographique, un faible développement économique et de lents progrès technologiques.
- L'hypothèse B1 est basée sur les mêmes caractéristiques démographiques qu'A1, mais avec une évolution plus rapide des structures économiques vers une économie de services et d'information.

• Enfin, l'hypothèse B2 décrit un monde caractérisé par des niveaux intermédiaires de croissances démographiques et économiques, privilégiant l'action locale pour assurer une durabilité économique, sociale et environnementale.

Ces différents scénarios permettent d'évaluer les rejets atmosphériques des gaz à effets de serre prévisionnels. Ceux-ci peuvent soit continuer d'augmenter, soit se stabiliser dans le cas de prises de mesures importantes pour la réduction des émissions. La Figure IV-23 illustre les résultats de ces scénarios vis-à-vis de la concentration atmosphérique en CO_2 . Le scénario A2 est le plus pessimiste et simule la situation qui adviendrait si aucune mesure n'était prise pour restreindre les émissions de gaz à effet de serre. Le scénario B1 est au contraire plus optimiste. Ces deux modèles indiquent respectivement un réchauffement de l'ordre de 4 °C et de 1,5 à 2,3 °C.



Figure IV-23. Evolution de la concentration atmosphérique en CO₂ suivant les différents scénarios envisagés (adapté de IPCC, 2000)

Outre les augmentations de température, ces modèles évaluent également les évolutions des processus climatiques globaux (vapeur d'eau atmosphérique, propriétés radiatives et évolution des nuages, structure de la stratosphère, échanges thermiques au niveau des océans, dynamique de la cryosphère, échanges atmosphère-terres émergées, cycle du carbonne). Ils permettent notamment de déterminer les précipitations et l'évapotranspiration répondant à ces évolutions climatiques (GIEC, 2007). L'estimation de ces deux paramètres entre 2001 et 2050 pour les scénarios A2 et B1 a été utilisée afin d'évaluer l'impact du changement climatique sur les écoulements souterrains de l'aquifère de l'Ursuya.

2.5.2. Données climatiques utilisées

Les scénarios climatiques pour le 21^{ème} siècle prévoient des changements de précipitations globalement faibles. Toutefois, des évolutions régionales parfois importantes existent (Boé, 2007). Concernant l'évaporation, la structure spatiale du changement est complexe. Même si plus d'énergie arrive au sol et pourrait donc permettre une augmentation de l'évaporation, la plus faible disponibilité d'eau dans le sol peut jouer un rôle limitant. Ainsi dans des zones actuellement sèches comme le sud de l'Europe, l'Afrique du Nord, le sud des Etats Unis et le Mexique, l'évaporation diminue. Ces résultats montrent l'importante variabilité spatiale des évolutions climatiques envisagées. Dans ce contexte, une échelle spatiale la plus fine possible est nécessaire pour la modélisation des paramètres météorologiques.

La résolution des projections climatiques globales est typiquement de l'ordre de 250 km. Cette résolution n'est pas suffisante pour représenter correctement l'usage des sols, les contrastes terre-mer ou encore le relief, qui ont pourtant un rôle majeur dans la détermination du climat régional et local (Von Storch et Zwiers, 1995). De plus, les données d'entrées nécessaires à la résolution de modèle numériques hydrologiques ou hydrodynamiques nécessitent une résolution spatiale plus fine. En réponse à ces besoins, de nombreuses méthodes de désagrégation d'échelles des simulations climatiques ont été développées (Zorita *et al.*, 1995 ; Martin *et al.*, 1997 ; Corte-Real *et al.*, 1999 ; Onibon *et al.*, 2004 par exemple).

Nous utiliserons les données spatiales des modèles SCRATCH2010 (produites par le CERFACS ; Centre Européen de Recherche et de Formation Avancée en Calcul Scientifique ; Pagé et Terray, 2010) dont la résolution spatiale est de 8 km. La méthode de désagrégation utilisée pour la production de ces données est largement développée dans Boé, 2007, Boé et Terray, 2008 et Boé *et al.*, 2006. La désagrégation à été effectuée sur les données issues des modèles ARPEGE V4.6 (Action de Recherche Petite Echelle Grande Echelle) produite par le CNRM (Centre National de Recherches Météorologiques). Les données de précipitation et d'évapotranspiration potentielle résultant de cette désagrégation pour les scénarios A2 et B1 sur le massif de l'Ursuya sont présentées à un pas de temps annuel sur la Figure IV-24.

Les données mensuelles à notre disposition ont été utilisées afin de déterminer les précipitations efficaces pouvant participer à la recharge de l'aquifère de l'Ursuya selon la méthode du bilan hydrique présenté dans le chapitre 2. D'après le scénario A2, la pluviométrie annuelle diminue effectivement entre 2001 et 2050 (-5 mm an^{-1} ; $r^2 = 0,2$). Il en est de même pour les précipitations efficaces ($-5,6 \text{ mm an}^{-1}$; $r^2 = 0,2$). Cependant, les coefficients de corrélation très faibles, de même que les importantes variations interannuelles (Figure IV-24 en haut) ne permettent aucunement d'affirmer une tendance linéaire à la décroissance de la recharge de l'aquifère. La pluviométrie moyenne calculée à partir des données modélisées selon le scénario B1 entre 2001 et 2050 ne montre pas de diminution globale. Il en est de même pour les précipitations efficaces (Figure IV-24 en bas).



Figure IV-24. Estimations des précipitations et de l'évapotranspiration potentielle annuelles sur le secteur étudié, selon les scénarios de prédiction A2 et B1 entre 2000 et 2050

2.5.3. Simulations prévisionnelles

2.5.3.1. <u>Données implémentées</u>

Les simulations prévisionnelles ont été réalisées sur une période de 49 ans, entre 2001 et 2050. Un pas de temps mensuel a été adopté pour ces simulations.

Concernant l'alimentation de l'aquifère, les scénarios de prédiction A2 et B1, ont été utilisés. Pour ces deux scénarios simulés, les précipitations efficaces ont été calculées selon la méthode de Thornthwaite (chapitre 2). Elles ont ensuite été corrigées en fonction des coefficients présentés dans le paragraphe 2.2.7., afin de ne tenir compte que de la lame d'eau infiltrée.

Les prélèvements au sein des forages ont également été introduits au modèle hydrodynamique pour ces simulations prévisionnelles. Les volumes mensuels moyens ont été calculés à partir des trois années de données disponibles. Ces prélèvements mensuels ont été répétés à l'identique, sur les 49 années de simulation.

2.5.3.2. Impact sur les niveaux piézométriques

La modification du régime pluviométrique estimée étant relativement faible pour les 50 prochaines années, la réponse sur les niveaux piézométriques l'est tout autant (Figures IV-25 et IV-26).

A l'échelle du demi-siècle, les résultats sont similaires pour les deux scénarios. On observe des diminutions globales peu significatives, de l'ordre du mm an⁻¹. Cette diminution est loin d'être linéaire puisque les variations interannuelles, quant à elles, sont parfois très marquées. Les charges moyennes annuelles les plus élevées correspondent logiquement aux années les plus humides et inversement. On constate cependant des réponses plus ou moins importantes des niveaux piézométriques aux variations de la recharge.

Les chroniques de niveaux piézométriques simulés présentées sur la Figure IV-25 correspondent aux points d'observations pour lesquels ces variations sont les plus faibles. Il s'agit des forages Osp9, Ip2, Ar3, Ar5 et Pit11. Les amplitudes de variations de la charge simulée entre 2001 et 2050 varient entre 0,3 m (Ar5 et Ar3) et 0,8 m (Osp9) selon le scénario A2 et entre 0,3 m (Ar5) et 1,1 m (Osp9) pour le scénario B1.



Figure IV-25. Niveaux piézométriques simulés dans les forages Osp9, Ip2, Pit11, Ar3 et Ar5 entre 2005 et 2050 en fonction des prévisions climatiques établies à partir des scénarios A2 et B1



Figure IV-26. Niveaux piézométriques simulés dans les forages Pe4, Pe5, Osp5 et Pit16 entre 2005 et 2050 en fonction des prévisions climatiques établies à partir des scénarios A2 et B1

Pour les forages Pe4, Pe5, Osp5 et Pit16, les variations de charge interannuelles simulées sont plus importantes (Figure IV-26). Les amplitudes de variations varient entre 4,0 m (Pe5) et 16,1 m (Pit16) selon le scénario A2, et entre 8,9 m (Osp5) et 9,5 m (Pit16) pour le scénario B1.

La faible intensité de la réactivité des niveaux piézométriques simulés au sein des forages Osp9 et Ip2 est en adéquation avec les résultats de caractérisation hydrodynamiques (paragraphes 1, 1.3 et 1.4). Les essais de pompages, l'analyse des chroniques piézométriques observées et l'interprétation des analyses corrélatoires ont en effet mis en évidence une capacité d'emmagasinement et une inertie importante du système au droit de ces deux ouvrages. Au contraire, les investigations menées au sein des forages Pe4 et Pe5 ont montrées que la fonction de stockage de l'aquifère au droit de ces ouvrages est beaucoup plus restreinte. Ce comportement est donc restitué par le modèle numérique sur une période pluri-décadaire.

Ces investigations hydrodynamiques n'ont pas pu être réalisées au sein des forages exploités (Pit11, Pit16, Ar3, Ar5 et Osp5). La retranscription des variations de charges par le modèle permet toutefois d'estimer le comportement du système au droit de ces ouvrages. Ainsi, au niveau des puits Pit11, Ar3 et Ar5 (Figure IV-25), le système semble se comporter de la même façon qu'au droit d'Osp9 et d'Ip2bis. C'est-à-dire qu'il présente une importante capacité de stockage et un puissant effet inertiel. Au contraire, les ouvrages Pit16 et Osp5 captent des formations dont le comportement hydrodynamique semble se rapprocher de celles captées par Pe4 et Pe5, à savoir un milieu présentant une faible inertie et une faible capacité d'emmagasinement.

2.5.3.3. <u>Impact sur les flux sortants</u>

Les niveaux piézométriques observés au sein des quelques forages présents sur le massif de l'Ursuya n'offrent qu'une vision locale des évolutions hydrodynamiques. La prise en compte des flux sortants de l'aquifère (Figure IV-27) permet au contraire d'évaluer les variations volumiques de façon globale. Ces flux sortants représentent l'ensemble des volumes naturellement extraits du système via les conditions aux limites (potentiels imposés et conditions mixtes de Cauchy). Ils correspondent donc, pour partie, aux écoulements de surface et notamment aux débits des sources.



Figure IV-27. Flux sortants du modèle simulés entre 2005 et 2050 en fonction des prévisions climatiques établies à partir des scénarios A2 et B1
Une différence majeure apparait entre les deux scénarios simulés. Ainsi, les faibles évolutions climatiques considérées dans le scénario B1 ont peu d'impact sur les flux sortants. Une légère tendance à l'augmentation est même observée. Néanmoins, celle-ci est très peu significative et le coefficient de corrélation est très faible (R = 0,004; Figure IV-27). L'évolution des flux sortants selon le scénario B1 peuvent donc être considérés comme stables.

Au contraire, le scénario A2 à un impact plus marqué sur les volumes annuels à l'échelle du demi-siècle. La simulation réalisée montre en effet une diminution des flux sortants, de l'ordre de $-460 \text{ m}^3 \text{ an}^{-1}$. Le coefficient de corrélation pour cette tendance est meilleur (R = 0,6 ; Figure IV-27) mais il reste faible. Si une tendance à la diminution des flux sortants peut donc être envisagée selon ce scénario, la valeur obtenue reste imprécise. Si l'on ne prend en compte que les flux sortants *via* le réseau de drainage superficiel et les sources, la diminution est estimée à $-407 \text{ m}^3 \text{ an}^{-1}$ (R = 0,6), soit une diminution du volume sortant annuel de plus de 20000 m³ en 50 ans.

Ces chiffres doivent cependant être considérés au regard des volumes prélevés $(1,5 \text{ Mm}^3 \text{ an}^{-1} \text{ sur les sources et } 1,8 \text{ Mm}^3 \text{ an}^{-1} \text{ si l'on ajoute les forages})$. La diminution estimée à 50 ans des flux sortants alimentant annuellement les sources et les cours d'eau correspond donc à 1,3 % des volumes exploités *via* les émergences seules et à 1,1 % des volumes prélevés totaux.

2.5.4. Bilan

Malgré des évolutions climatiques indéniables, la modification du régime de précipitation estimée pour la première moitié du 21^{ème} siècle est faible sur le Pays Basque français. D'autre part, l'évapotranspiration est assez stable. Ceci est vrai pour les deux scénarios envisagés, le scénario A2 étant le plus pessimiste vis-à-vis du réchauffement et des perturbations climatiques, parmi ceux proposés par le GIEC (IPCC, 2000). Ainsi, sur une période de 50 ans, ces évolutions climatiques n'entraînent pas de modification notable des niveaux piézométriques au sein de l'aquifère de l'Ursuya. En revanche, les flux sortants du système montrent une tendance à la diminution, dans l'hypothèse de modifications climatiques pessimistes. Cette diminution reste cependant faible au regard des volumes exploités sur le système aquifère de l'Ursuya.

L'ensemble des scénarios envisagés prévoient une croissance continue des concentrations atmosphériques en gaz à effet de serre durant le 21^{ème} siècle (avec une tendance à la stabilisation à la fin du siècle pour B1 ; Figure IV-23). Des simulations sur une période plus longue auraient peut-être mis en évidence des modifications plus importantes des volumes écoulés au sein de l'aquifère. Toutefois, les évolutions démographiques actuelles et à venir dans la région étudiée auront très certainement un impact prépondérant sur la ressource en eau souterraine. Ainsi, des simulations à plus long terme ne peuvent avoir d'intérêt que si elles prennent en compte, en plus des évolutions climatiques, les paramètres démographiques. Parmi ceux-ci, la quantification de l'augmentation des prélèvements au sein de l'aquifère, en réponse à l'augmentation de la demande, pourrait être primordiale. Ne disposant pas de donnée prévisionnelle précise quant à ces paramètres, de telles simulations n'ont pu être effectuées au cours de cette étude.

2.6. En résumé

Un modèle hydrodynamique 3D de l'aquifère développé dans les formations métamorphiques constitutives du massif de l'Ursuya a été réalisé. Compte-tenu du contexte hydrogéologique particulier de ce système, sa modélisation numérique a nécessité une adaptation des méthodes typiquement usitées dans le cas de milieux poreux. Ainsi, la représentation de cet aquifère fissuré s'est appuyée sur une approche de type poreux équivalent. Cette technique s'est avérée tout à fait pertinente, aux vues des résultats obtenus.

Ce modèle a été construit d'une part sur la base des résultats acquis au cours de cette étude, et d'autre part sur les données disponibles dans la littérature pour des systèmes aquifères analogues. En effet, les informations concernant la géométrie et les propriétés hydrodynamiques des différents horizons de l'aquifère de l'Ursuya souffrent encore d'une importante disparité géographique. La combinaison de données locales avec des observations distribuées à travers le monde a permis de pallier à cette difficulté. Après des phases de calage en régimes permanent et transitoire, la géométrie du modèle et les propriétés hydrodynamiques ainsi définies restituent correctement l'état de la nappe exploitée.

La modélisation réalisée permet d'appréhender les échanges entre les écoulements souterrains et le réseau hydrographique. Le drainage de la nappe par les nombreux cours d'eau présents à la surface du massif est vérifié par les volumes sortant du modèle en période d'étiage. En phase de crue, en revanche, le fonctionnement est différent suivant les bassins versants. Lors de ces périodes de hautes eaux, certains cours d'eau sont alimentés exclusivement par les écoulements de surface alors que pour d'autre, l'apport des écoulements souterrains reste majoritaire.

Les volumes soustraits à la nappe par le biais de cinq forages d'exploitation n'ont actuellement que peu d'impacts sur le régime hydrogéologique global du système. A moyen terme, les évolutions climatiques ne devraient pas non plus modifier radicalement les écoulements souterrains de cet aquifère. Néanmoins, les flux sortants risquent de diminuer dans le cas où les évolutions climatiques poursuivraient leur évolution actuelle. Les émergences exploitées notamment pourraient souffrir d'une légère diminution de débit. Néanmoins, cette diminution semble relativement faible et les volumes prélevés devraient être peu impactés dans le cinq décennies à venir. En revanche, la nappe présente une forte sensibilité au taux de recharge de l'aquifère. En effet, les variations de précipitation impacte fortement les niveaux piézométriques observés dans certains ouvrages.

Ce modèle numérique constitue un outil à l'attention des exploitants de la ressource. Son utilisation peut s'avérer essentielle pour la prise de décision quant à la gestion des volumes exploités. Néanmoins, l'emploi de ce modèle devra s'accompagner d'un esprit critique inhérent aux incertitudes accompagnant l'outil de modélisation. L'implémentation de données nouvelles, au fil de leurs acquisitions, permettra d'améliorer sa représentativité et par la même son efficacité.

V. Conclusions

En conclusion, nous rappellerons les résultats obtenus au cours de cette étude. Cette synthèse s'accompagnera de préconisations à destination des exploitants dans le but d'offrir des pistes pour une gestion raisonnée de la ressource en eau sur le massif de l'Ursuya. Nous proposerons enfin quelques perspectives pour la réalisation de nouvelles investigations sur ce site, ou sur des systèmes analogues.

1. SYNTHESE DES RESULTATS

1.1. Cartographie

Le fonctionnement hydrogéologique de l'aquifère de l'Ursuya a tout d'abord été approché par des investigations géologiques et structurales. La situation de ce massif vis-à-vis de la chaîne des Pyrénées, au cœur du système complexe du Labourd, lui confère des spécificités géologiques indéniables. Il reste des interrogations quant à sa mise en place et les Massifs Basques font encore l'objet de nombreux débats dans la communauté des géologues. Néanmoins, la cartographie du profil d'altération le gain de précision apportée par cette étude à la localisation des discontinuités constituera un outil prépondérant du point de vue hydrogéologique.

1.2. Signal d'entrée

Le signal d'entrée a tout d'abord été caractérisé dans sa composante quantitative. La mesure des écoulements superficiels a conjointement été abordée afin d'établir un bilan hydrologique. La pluviométrie sur le massif de l'Ursuya a été mesurée sur une période de trois cycles hydrologiques. Les résultats obtenus mettent en exergue une pluviométrie importante. Les évapotranspirations potentielle et réelle ont été calculées grâce au suivi de l'ensoleillement, de la vitesse du vent, de la température et de l'humidité atmosphérique. Les précipitations efficaces ont ainsi pu être évaluées et contrôlées par la réalisation d'un bilan hydrologique. Cette étape a mis en évidence la difficulté d'établir un bilan équilibré entre les volumes entrants et sortants. Des hypothèses ont été avancées quant aux déséquilibres calculés. Il semble cependant que les incertitudes concernant le calcul des volumes infiltrés et les mesures des écoulements superficiels soient des paramètres prépondérants expliquant ces déséquilibres. D'autre part, l'ensemble des cours d'eau n'ont pas pu être suivis. Certains bassins versants restent donc vierges d'informations quant aux volumes écoulés.

La caractérisation physico-chimique et isotopique du signal d'entrée a ensuite permis de déterminer l'origine des précipitations et de leur composition. Les compositions isotopique et chimique des précipitations n'avaient jusqu'alors jamais été caractérisées dans cette région. L'origine des eaux précipitées sur le massif de l'Ursuya est majoritairement atlantique. Elles sont toutefois régulièrement liées aux circulations des masses d'airs sur la Péninsule Ibérique, l'Europe du Nord et la région méditerranéenne. L'acidité des pluies est faible du fait d'intenses processus de neutralisation. Les concentrations en nitrates, sulfates et ammonium peuvent toutefois s'avérer importantes notamment dans les pluies issues de masses d'air provenant de régions fortement industrialisées. Cette définition du signal d'entrée sera particulièrement utile pour la compréhension des phénomènes isotopiques et chimiques sur l'ensemble des aquifères du nord-ouest des Pyrénées.

1.3. Hydrochimie

La connaissance de la composition isotopique et physico-chimique des précipitations a été primordiale pour comprendre l'acquisition de la minéralisation des eaux souterraines du massif de l'Ursuya. Du point de vue isotopique, le signal mesuré dans les eaux souterraines a mis en évidence l'existence d'un gradient altitudinal dans le contenu en isotopes stables et a apporté des précisions sur les modalités de recharge de l'aquifère.

Du point de vue physico-chimique, des interactions eau-roche plus ou moins importantes ont été mises en évidence. Elles sont fonctions des matériaux rencontrés par l'eau lors de son parcours dans le sous-sol et de son temps de séjour. Des processus physico-chimiques de dénitrification ont également été observés. Enfin, les influences anthropiques, même si elles restent majoritairement acceptables, doivent être considérées avec une attention particulière. Les concentrations en nitrates sont globalement faibles, mais elles se rapprochent des valeurs limites réglementaires sur certains points de mesures. D'autre part, la mise en place de processus naturels de dénitrification, peut masquer des pollutions.

D'un point de vue plus général, les investigations physico-chimiques associées à la détermination des temps de séjour au sein de l'aquifère fracturé de l'Ursuya ont permis de proposer un schéma conceptuel des écoulements souterrains. Le profil d'altération développé dans ce contexte est un facteur prépondérant dans les conditions hydrodynamiques des circulations souterraines. La présence de matériaux d'altération engendre des temps de séjour et des minéralisations plus importants. La probabilité d'un mélange entre des eaux circulant au sein des différents horizons (altérites ou roche fissurée) dépend en grande partie du degré d'altération. Les écoulements au sein de la roche fissurée sont gouvernés par ses hétérogénéités, fractures et fissures en particulier. Lorsque la roche fissurée est à l'affleurement, l'eau y circule rapidement et elle est peu minéralisée. Lorsqu'elle est confinée sous des altérites, les temps de séjour sont plus longs, les minéralisations plus fortes et des mélanges sont possibles avec les écoulements dans les altérites sus-jacentes. Ce schéma d'écoulement, mis en évidence sur le massif de l'Ursuya, pourra être utilisé dans des systèmes aquifères similaires.

1.4. Hydrodynamique

Une approche quantitative des écoulements souterrains a été proposée à partir d'investigations menées au sein des forages non exploités présents sur le site. L'ensemble des résultats obtenus convergent vers une hétérogénéité des propriétés hydrodynamiques, engendrée en partie par la présence et les caractéristiques de l'horizon d'altération. Celui-ci joue un rôle de confinement et de régulation de la recharge. Les propriétés hydrodynamiques déterminées sont globalement médiocres en termes d'exploitation. Toutefois, les forages investigués ne sont pas exploités, justement du fait de leur faible productivité. Les propriétés de l'aquifère au droit des forages exploités sont certainement plus favorables.

1.5. Modélisation numérique

L'ensemble des résultats présentés ont abouti à la réalisation d'un modèle numérique hydrodynamique de l'aquifère de l'Ursuya. Le modèle réalisé permet une restitution des écoulements en accord avec les observations effectuées. Les niveaux piézométriques mesurés et simulés sont globalement similaires. Les écoulements superficiels mesurés correspondent bien aux volumes sortant du modèle. La méthodologie utilisée, basée sur une approche de type poreux équivalent, s'est donc avérée adaptée au contexte hydrogéologique en présence. Une importante recherche bibliographique nous a également permis de pallier un manque d'informations sur certains secteurs géographiques.

Ce modèle a mis en évidence la relation étroite entre la nappe d'eau souterraine et le réseau d'écoulement de surface. Si le drainage de la nappe par les cours d'eau est évident en période d'étiage, il est variable suivant les bassins versants en période de crue. La modélisation effectuée a également confirmé le faible impact induit sur les écoulements par les cinq forages actuellement exploités.

Enfin, différents scénarios d'évolution climatique ont été testés à l'échelle du demi-siècle (entre 2001 et 2050). Les très faibles variations de recharge au cours de la période simulée n'engendrent pas de variations majeures des niveaux piézométriques. En revanche, les variations interannuelles peuvent être importantes. D'un point de vue volumique, les débits des sources et des cours d'eau risquent de diminuer dans des proportions non problématiques pour l'exploitation.

1.6. Bilan

L'approche multidisciplinaire utilisée ici s'est avérée efficace pour comprendre le fonctionnement de cet aquifère (Figure V-1). Les résultats obtenus indépendamment à partir de différentes méthodologies ont abouti à des conclusions communes. La méthodologie appliquée ici au massif de l'Ursuya se veut transposable à tout type d'aquifère développé en milieux cristallin et présentant un profil d'altération bien développé.



Figure V-1. Approche pluridisciplinaire pour la caractérisation des aquifères fracturés

2. PRECONISATIONS POUR UNE GESTION RAISONNEE DE LA RESSOURCE

L'eau souterraine du massif de l'Ursuya est aujourd'hui exploitée indépendamment par quatre entités. Ces communes et syndicats intercommunaux utilisent en effet cette ressource unique de façon individuelle, sans véritable concertation. De plus, l'arrivée de nouveaux exploitants sur ce site n'est pas exclue dans les années à venir et les acteurs actuels seront rapidement amenés à augmenter les volumes soutirés à l'aquifère. La mise en place d'un mode de gestion global de cette ressource s'avère donc primordiale pour sa pérennité quantitative comme qualitative. Dans ce but, la compréhension du fonctionnement hydrogéologique de ce système aquifère jusqu'ici très peu documenté était un pré-requis indispensable. Les résultats acquis et notre connaissance des infrastructures de captage nous permettent de proposer quelques préconisations pour une gestion raisonnée de la ressource.

2.1. Recherche de nouvelles ressources

La recherche de nouvelles ressources en eau souterraine sur le massif de l'Ursuya pourra s'appuyer sur la cartographie des linéaments réalisée au cours de cette étude, et plus particulièrement sur celle de leurs intersections. Toutefois, les caractéristiques propres aux discontinuités n'étant pas connues (ouverture et comblement notamment), la réalisation de nouveaux forages devra s'accompagner, au préalable, de mesures géophysiques afin de confirmer la présence et les propriétés de ces discontinuités. La cartographie du profil d'altération en surface sera également particulièrement utile dans le choix de l'emplacement des nouveaux ouvrages d'exploitation. Quand elles sont présentes, les altérites offrent une protection naturelle de la ressource. Elles permettent également de tamponner quantitativement le signal d'entrée et offrent une capacité de stockage importante. Une nouvelle fois, des investigations géophysiques permettront au préalable de déterminer localement l'épaisseur de ces matériaux.

2.2. Protection de la qualité de la ressource

L'eau distribuée dans le réseau d'eau potable est à l'heure actuelle d'une excellente qualité. Afin qu'elle le reste, différentes opérations peuvent être suggérées. Tout d'abord, la mise en place des périmètres de protection réglementaires autour des captages de sources doit être poursuivie. Les sources sont parfois proches de points d'eau au sein desquels le bétail vient s'abreuver. Il est indispensable d'empêcher l'accès des animaux aux captages.

D'autre-part, une partie des captages est équipée de fermetures par des capots en fonte. Ces systèmes de fermeture peuvent être facilement ouverts et l'accès à l'émergence captée est aisé. Les périmètres de protection sont également un moyen de lutter contre toute intrusion. D'autre-part, même si ces capots sont entretenus régulièrement, des résidus de peinture sont fréquemment retrouvés dans les captages. Il est donc préconisé de remplacer ces capots en fonte anciens par des capots en acier inoxydable, munis d'un système de fermeture sécurisé. Le remplacement de ces systèmes de fermeture a débuté dans certaines vallées soumises à une forte exploitation. L'investissement engendré serait bénéfique à moyen terme.

Enfin, la qualité de la ressource nécessite un entretient régulier des captages. Ainsi, le développement de végétaux ou encore le dépôt de particules au fond des captages peuvent poser des problèmes de qualité, mais pas seulement. Les exutoires de certains captages se sont retrouvés obstrués, rendant impossible l'exploitation de la source. Seul un entretient manuel plus régulier permettra de remédier à ce problème.

Les âges apparents déterminés mettent en exergue des temps de séjour parfois importants de l'eau souterraine (de moins de 10 ans à plusieurs dizaines d'années). Dans ces conditions, les préconisations pour une meilleure protection de la ressource prennent toute leur importance. Une pollution diffuse ou ponctuelle pourrait s'avérer irrémédiable. D'autre part, ces temps de séjours et les mélanges observés expliquent le faible impact des mesures de réduction des concentrations en nitrates prises récemment. Ces mesures, même si elles présentent un intérêt primordial, n'auront une influence qu'à longue échéance.

2.3. Gestion quantitative de la ressource

Les débits écoulés au niveau des captages de sources sont souvent mal contrôlés sur le massif de l'Ursuya. Ainsi, seuls les volumes transitant par les réservoirs en bas de vallées sont connus. Les eaux issues de plusieurs dizaines de sources peuvent être récoltées dans ces réservoirs et les débits individuels de chaque source ne sont donc pas connus. La configuration des captages ne permet pas cette mesure en continu. Pourtant, compte tenu de l'âge des conduites en fonte reliant les captages aux réservoirs (plusieurs dizaines d'années), des fuites sont très probables. Certaines ont par ailleurs été mises en évidence lors du remplacement de conduites dans quelques vallées. Le rendement a alors été augmenté de façon très significative. La mise en place de débitmètre pour chaque source de façon individuelle peut s'avérer difficile du point de vue technique. Cependant, des campagnes de mesures ponctuelles seraient utiles afin d'évaluer d'une part les volumes sortant naturellement de l'aquifère et d'autre part, les pertes par fuites entre les captages et le réseau de distribution. Cela permettrait de localiser les conduites les plus endommagées et à terme, de les remplacer. La connaissance des volumes de fuite permettra d'effectuer un bilan entre les investissements liés au remplacement des conduites et le gain en termes d'exploitation. L'expérience menée en ce sens par l'un des exploitants s'est avéré tout-à-fait positive.

Du point de vue des forages, des mesures de niveaux piézométriques plus précises, plus régulières et à un pas de temps plus restreint sont nécessaires au sein des ouvrages exploités. L'utilisation d'enregistreurs automatiques doit être privilégiée par rapport à un mode de relève manuelle et un pas de temps journalier serait judicieux. Ces enregistrements doivent s'accompagner de contrôles réguliers afin de détecter rapidement toute défaillance du système d'enregistrement. Ces préconisations sont également valables pour le traitement des volumes exploités.

La réalisation d'essais de pompages et de diagraphies au sein des forages exploités aurait été utile afin d'obtenir des informations mieux réparties sur la superficie du site. De plus, outre l'intérêt de ces investigations pour la caractérisation hydrogéologique de l'aquifère dans sa globalité, elles présentent également une utilité pour l'exploitant. En effet, les forages exploités le sont depuis près de dix ans. La réalisation de diagnostics de forages avec notamment le passage de sondes de diagraphies de flux et vidéo serait donc un bon moyen d'appréhender les baisses de débits observées sur certains ouvrages.

Les résultats issus de la modélisation numérique nous autorisent à penser que l'exploitation aujourd'hui faite de l'eau souterraine sur le massif de l'Ursuya n'a que peu d'impacts sur les volumes globaux. Sans présager des volumes totaux exploitables, nous pouvons présumer qu'une augmentation des prélèvements par forages est tout à fait envisageable de ce point de vue. Les difficultés techniques de foration dans les matériaux cristallins et le caractère aléatoire de la ressource dans ce type de milieu sont malheureusement des paramètres incontournables. Les évolutions climatiques envisagées pour les prochaines décennies semblent avoir un impact faible sur les volumes d'eau souterraine de l'aquifère de l'Ursuya. Néanmoins, selon les scénarios envisagés, ces évolutions se feront plus intenses jusqu'à la fin du 21^{ème} siècle. A plus long terme, des variations de recharges devront donc être prises en compte. Celles-ci s'accompagneront de baisse des flux sortant du système, et notamment d'une baisse des débits des sources. D'autre part, si la recharge pluriannuelle évolue peu, les variations interannuelles sont importantes. Les simulations réalisées montrent des variations de niveaux piézométriques de l'ordre de plusieurs mètres au sein de certains forages exploités. Il sera donc conseillé d'envisager des points d'eau de substitution pour ces forages, en particulier lors des années les plus sèches.

Le modèle réalisé, mis à disposition des partenaires, doit être utilisé avec prudence. Il présente en effet des incertitudes indéniables, particulièrement sur certains secteurs géographiques dépourvus d'informations hydrogéologiques fiables. De ce fait, les résultats des investigations préconisées ci-dessus, si elles sont menées à bien, devront être intégrés au sein de ce modèle. La réalisation de nouveaux forages permettra également d'améliorer la précision de cet outil grâce à un apport d'informations nouvelles en termes de géométrie et de caractérisation hydrodynamique. Enfin, l'intégration du facteur démographique au modèle permettra d'évaluer l'impact de l'augmentation de la demande.

2.4. Bilan sur les préconisations

Les préconisations présentées dans cette conclusion s'adressent à l'ensemble des gestionnaires exploitant l'eau souterraine sur le massif de l'Ursuya. Certains ont d'ores et déjà entrepris des mesures intéressantes qui doivent se poursuivre. D'autres sont effectivement peu concernés par ces suggestions du fait d'une exploitation réduite et déjà en accord avec la réglementation. Néanmoins, dans un souci de gestion globale de cette ressource, il semble que l'ensemble des acteurs de l'eau souterraine sur le massif de l'Ursuya devrait travailler en collaboration.

Certains parcs d'exploitations font actuellement l'objet de mesures intéressantes (détections de fuites, information des agriculteurs, rénovation des captages, traçages artificiels pour la cartographie du réseau, mise en place de capteurs afin de collecter des mesures régulières et précises...). Le partage d'un retour sur expérience des diverses actions menées permettrait une action collective et coordonnée et constituerait une aide précieuse pour la prise de décisions parfois difficiles et l'arbitrage de futurs conflits d'usages.

La liste des suggestions présentées ici est loin d'être exhaustive. Outre les préconisations suggérées, les résultats présentés apportent une connaissance jamais acquise sur le massif de l'Ursuya et sur laquelle le gestionnaire pourra s'appuyer.

3. PERSPECTIVES D'ETUDE

Même si cette étude constitue une fin en soit, les connaissances acquises sont toujours perfectibles et les axes de recherche restent nombreux. Quelques perspectives sont donc proposées ici.

3.1. Géophysique

L'outil géophysique semble être une perspective intéressante permettant de préciser les travaux de cartographie. Les méthodes sismiques et la tomographie électrique ont déjà été utilisées avec succès sur quelques secteurs du massif (Chevalier-Lemire, 2006 b). La méthode RMP (Résonance Magnétique des Protons) récemment développée (Boucher, 2007 ; Girard, 2010), semble également être prometteuse pour la caractérisation non destructive des propriétés hydrodynamiques des aquifères, particulièrement dans des contextes fissurés.

3.2. Hydrométrie

Le suivi de la totalité des ruisseaux aurait permis de connaître l'intégralité des volumes superficiels écoulés. L'utilisation de stations hydrométriques calibrées (de type déversoirs artificielles) et résistantes aux courants de crues permettrait l'obtention de données plus précises. Néanmoins, les aménagements nécessaires à l'implantation de ce type de matériel restent rédhibitoires car trop difficiles à mettre en œuvre pour le moment.

La réalisation de jaugeages simultanés répartis sur la longueur d'un même cours d'eau serait également une piste intéressante permettant de déterminer la répartition de la participation de l'aquifère aux écoulements superficiels. Celle-ci peut être liée aux lithologies de surface (et aux épaisseurs associées), à l'altitude ou encore à la topographie. Ce type d'investigation devrait être effectué à la fois en période de crues et de basses eaux afin de préciser le comportement du système souterrain entre ces deux phases.

3.3. Signature isotopique

Un gradient altitudinal isotopique a été déterminé au cours de cette étude à partir du contenu en isotopes stables des émergences. Il souffre cependant d'un manque de précision. La mesure d'un gradient altitudinal du signal isotopique dans les eaux de pluie serait intéressant, car il permettrait notamment d'évaluer plus précisément les altitudes de recharge des émergences. Cette mesure serait réalisable *via* l'installation d'un réseau de stations de prélèvements de précipitations réparties selon la topographie du site. La définition précise de ce gradient altitudinal serait un outil précieux, non seulement pour la connaissance de l'aquifère de l'Ursuya, mais également pour l'ensemble des aquifères du nord ouest des Pyrénées. Ce type d'investigation a été expérimenté au cours de cette étude. Malheureusement, le nombre de stations implantées n'a pas été suffisant pour obtenir un gradient altitudinal convenable. Cette expérience devra être réitérée avec au moins cinq stations de prélèvements, réparties entre 0 m NGF et 700 m NGF. L'implantation de stations de mesure à des altitudes supérieures serait également intéressante car elle offrirait une meilleure répartition altitudinale. Les massifs du Baïgura (1477 mNGF) ou de l'Artzamendi (926 mNGF), tous deux situés au sud du massif de l'Ursuya, sont des pistes à explorer.

3.4. Modélisation numérique

Certaines hypothèses d'évolutions climatiques étant assez pessimistes, la réalisation de simulations numériques sur une période plus longue (jusqu'en 2100 par exemple) serait très utile. Elles devront cependant prendre en compte les évolutions démographiques attendues dans la région du Pays Basque concernée par la ressource en eau du massif de l'Ursuya.

3.5. Bilan

Les pistes proposées s'appuient sur les investigations menées sur le massif de l'Ursuya. Néanmoins, la transposition sur des systèmes analogues de la méthodologie utilisée est finalement une des perspectives majeures de cette étude. Les axes de recherche proposés ici pourront donc être utilisés afin de perfectionner la méthode.

Ce travail a contribué à l'amélioration des connaissances des aquifères fissurés en proposant une méthode pluridisciplinaire, adaptable à tout système analogue, et offrant une aide précieuse pour une gestion raisonnée de la ressource. La démarche adoptée, dans une optique de recherche fondamentale à finalité appliquée, a permis d'une part une valorisation internationale des résultats, et d'autre part d'apporter des réponses précises aux interrogations d'un public directement concerné par le site d'étude.

Références bibliographiques

ABBOTT, M. D., LINI, A. et BIERMAN, P. R., 2000. d ¹⁸O, dD and ³H measurements constrain groundwater recharge patterns in an upland fractured bedrock aquifer, Vermont, USA, Journal of Hydrology, 228, 101-112.

ACWORTH, R., **1987**. The development of crystalline basement aquifers in a tropical environment, Quarterly Journal of Engineering Geology, 20, 265-272.

AGGARWAL, P., ARAGUAS-ARAGUAS, L., GRÖNING, M., KULKAMI, K., KURTTAS, T., NEWMAN, B. et TANWEER, A., 2009. Laser spectroscopic analysis of liquid water samples for stable hydrogen and oxygen isotopes, IAEA, 49 p.

ALLEN, G. G., PEREIRA, L. S., RAES, D. et SMITH, M., 1998. Crop evapotranspiration - Guidelines for computing crop water requirements - FAO Irrigation and drainage paper 56, 326 p.

ALLEY, W. M., 2001. Ground water and climate, Ground Water, 39, 161.

ANDERSON, M. et WOESSNER, W., 1992. Applied groundwater modeling, simulation of flow and advective transport, Academic Press, 381 p.

ANDRÉ, F., JONARD, M. et PONETTE, Q., 2007. Influence of meteorological factors and polluting environment on rain chemistry and wet deposition in a rural area near Chimay, Belgium, Atmospheric Environment, 41, 1426 - 1439.

APPELO, C. A. J. et POSTMA, D., **2005**. Geochemistry, groundwater and pollution 2nd edition. Balkema Publishers, 649 p.

AQUILINA, L. DE DREUZY, J., BOUR, O. et DAVY, P., 2004. Porosity and fluid velocities in the upper continental crust (2 to 4 km) inferred from injection tests at the Soultz-sous-Forkes geothermal site, Geochemica and Cosmochemica Acta, 68, 2405-2415.

ARAGUAS-ARAGUAS, L., FROEHLICH, K. et ROZANSKI, K., 2000. Deuterium and oxygen-18 isotope composition of precipitation and atmospheric moisture, International Workshop on the Application of Stable Isotopes in Water Balance Studies (ISOBALANCE), Saskatoon, Canada, 14, 1341-1355.

ARMAND, C. et DUSSEAU, P., 1997. Ville de Bayonne Renforcement des ressources en eau souterraine captées dans le massif de l'Ursuya (64) Environnement des forages d'exploitation et possibilités d'amélioration du captage des principales sources existantes, Rapport ANTEA n°A10729, 16 p.

ARMAND, C., SAINT-MARC, E. et LIGOURET, P., **1995**. Ursuya (64) - Partie est Carte de vulnérabilité des eaux souterraines et prospection géophysique, Rapport BRGM n°N1917BOR4S95, 31 p.

ARMAND, C. et TRISCOS, J., **1997**. Ville de Hasparren (Pyrénées Atlantiques) Recherche d'eau potable par sondages dans le massif de l'Ursuya Est (64), Rapport ANTEA n°A08211, 16 p.

ARMAND, C. et TRISCOS, J., 1999. Ville de Hasparren (64) Realisation de trois forages dans le massif de l'Ursuya, destinés à l'alimentation en eau potable Dossier d'ouvrage exécuté, Rapport ANTEA n°A14873, 20 p.

ARSENE, C., OLARIU, R. et MIHALOPOULOS, N., 2007. Chemical composition of rainwater in the northeastern Romania, Iasi region (2003–2006), Atmospheric Environment, 41, 9452-9467.

AVILA, A., QUERALT-MITJANS, I. et ALARCON, M., 1997. Mineralogical composition of African dust delivered by red rains over northeastern Spain, Journal of Geophysical Research, 102, 21,977-21,996.

AYRAUD, V., 2005. Détermination du temps de résidence des eaux souterraines : application au transfert d'azote dans les aquifères fracturés hétérogènes, Thèse de doctorat, Université de Rennes 1, 312 p.

AYRAUD, V., AQUILINA, L., LABASQUE, T., PAUWELS, H., MOLENAT, J., PIERSON-WICKMANN, A., DURAND, V., BOUR, O., TARITS, C., LE CORRE, P., FOURRE, E., MEROT, P. et DAVY, P., 2008. Compartmentalization of physical and chemical properties in hard-rock aquifers deduced from chemical and groundwater age analyses, Applied Geochemistry, 23, 2686-2707.

AYRAUD, V., AQUILINA, L., PAUWELS, H., LABASQUE, T., PIERSON-WICKMANN, A., AQUILINA, A. et GALLAT, G., 2006. Physical, biogeochemical and isotopic processes related to heterogeneity of a shallow crystalline rock aquifer, Biogeochemistry, 81, 331-347.

BAKALOWICZ, M., BLAVOUX, B. et MANGIN, A., 1974. Apports du tracage isotopique naturel à la connaissance du fonctionnement d'un système karstique - Teneurs en oxygène-18 de trois systèmes des Pyrénées, France, Journal of Hydrology, 23, 141-158.

BALASUBRAMANIAN, R., VICTOR, R. et CHUN, N., 2001. Chemical and statistical analysis of precipitation in Singapore, Water Air and Soil Pollution, 130, 451-456.

BANKS, E., SIMMONS, C., LOVE, A., CARANSWICK, R., WERNER, A., BESTLAND, E., WOOD, M. et WILSON, T., 2009. Fractured bedrock and saprolite hydrogeologic controls on groundwater/surface-water interaction : a conceptual model (Australia), Hydrogeology Journal, 17, 1969-1989.

BARENBLATT, G., ZHELTOV, I. et KOCHINA, I., 1960. Basic concepts in the theory of seepage of homogeneous liquids in fissured rocks, Journal of applied mathematics and mechanics, 24, 1286-1303.

BERKOWITZ, B., 2002. Characterizing flow and transport in fractured geological media : A review, Advances in Water Resources, 25, 861-884.

BERNER, E. K. et BERNER, R. A., **1987**. The global water cycle : geochemistry and environment. Prentice-Hall, Inc., Englewood Cliffs New Jersey, 397 p.

BERTRAND, G., 2009. De la pluie à l'eau souterraine. Apport du traçage naturel (ions majeurs, isotopes) à l'étude du fonctionnement des aquifères volcaniques, (Bassin d'Argnat, Auvergne, France), Thèse de doctorat, Université Blaise Pascal - Clermont-Ferrand II.

BERTRAND, G., CELLE-JEANTON, H., HUNEAU, F., LOOCK, S. et RENAC, C., 2010. Identification of different groundwater flowpaths within volcanic aquifers using natural tracers for the evaluation of the influence of lava flows morphology (Argnat basin, Chaîne des Puys, France), Journal of Hydrology, 391, 223-234.

BERTRAND, G., CELLE-JEANTON, H., LAJ, P., RANGOGNIO, J. et CHAZOT, G., 2008. Rainfall chemistry : long range transport versus below cloud scavenging. A two-year study at an inland station (Opme, France), Journal of Atmospheric Chemistry, 60, 253-271.

BEYERLE, U., AESCHBACH-HERTIG, W., HOFER, M., IMBODEN, D., BAUR, H. et KIPFER, R., 1999. Infiltration of river water to a shallow aquifer investigated with ³H/³He, noble gases and CFCs, Journal of Hydrology, 220, 169-185.

BEYSENS, D., OHAYON, C., MUSELLI, M. et CLUS, O., **2006**. Chemical and biological characteristics of dew and rain water in an urban coastal area (Bordeaux, France), Atmospheric Environment, 40, 3710-3723.

BLANEY, H. F. et CRIDDLE, W. D., **1952**. Determining water requirements in irrigated areas from climatological and irrigation data, USDA Soil Conservation Service, SCS-TP96, 44 p.

BOÉ, **J.**, **2007.** Changement global et cycle hydrologique : Une étude de régionalisation sur la France, Thèse de doctorat, Université de Toulouse III - Paul Sabatier, 278p.

BOÉ, J. et TERRAY, L., 2008. Régimes de temps et désagrégation d'échelle, La Houille Blanche, 2, 45-51.

BOÉ, **J.**, **TERRAY**, **L.**, **HABETS**, **F.** et **MARTIN**, **E.**, **2006**. A simple statistical-dynamical downscaling scheme based on weather types and conditional resampling, Journal of Geophysical Reasearch, 111, D23106.

BOISSONNAS, J., LE POCHAT, G., THIBAULT, C. et BERNATZK, M., **1974**. Carte géologique d'Iholdy au 1/50 000, n° 1027 et notice explicative, BRGM, 36p.

BONNET, E., BOUR, O., ODLING, N., DAVY, P., MAIN, I., COWIE, P. et BERKOWITZ, B., 2001. Scaling of fracture systems in geological media, Reviews of Geophysics, 39, 347-383.

BONNET, M., 1978. Méthodologie des modèles de simulation en hydrogéologie, Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, 438 p.

BORONINA, A., RENARD, P., BALDERER, W. et CHRISTODOULIDES, A., 2003. Groundwater resources in the Kouris catchment (Cyprus) : data analysis and numerical modelling, Journal of Hydrology, 271, 130-149.

BOUCHER, M., **2007**. Estimation des propriétés hydrodynamiques des aquifères par Résonance Magnétique des Protons dans différents contextes géologiques, de l'échantillon à l'échelle hydrogéologique, Thèse de doctorat, Université d'Orleans, 198 p.

BROCHET, P. et GERBIER, N., 1968. L'évapotranspiration, aspect agro-météorologique ; évaluation pratique de ETP, Monographie n°65, Météorologie Nationale, 67 p.

BRUNNER, P., HENDRICKS FRANSSEN, H.-J., KGOTLANG, L., BAUER-GOTTWEIN, P. et KINZELBACH, W., 2007. How can remote sensing contribute in groundwater modeling? Hydrogeology Journal, 15, 5-18.

BU, X. et WARNER, M., 1995. Solubility of chlorofluorocarbon 113 in water and seawater, Deep-Sea Researches, 42, 1151-1161.

BUDHAVANT, K. B., RAO, P. S. P., SAFAI, P. D. et ALI, K., 2011. Influence of local sources on rainwater chemistry over Pune region, India, Atmospheric Research, 100, 121-131.

BULLISTER, J., WISEGARVER, D. et MENZIA, F., 2002. The solubility of sulphurhexafluoride in water and seawater, Deep-Sea Researches, 49, 175-187.

BUSENBERG, E. et PLUMMER, L., 1992. Use of chlorofluorocarbons (CCl_3F and CCl_2F_2) as hydrologic tracers and age-dating tools : the alluvium and terrace system of central oklahoma, Water Resource Research, 29, 2257-2283.

BUSENBERG, E. et PLUMMER, L., 1997. Use of sulphur hexafluoride as a dating tool and as a tracer of igneous and volcanic fluids in groundwater, Geological Society of America, Salt Lake City, 29(6), p. A-78.

BUSENBERG, E. et PLUMMER, L., **2000**. Dating young groundwater with sulfur hexafluoride : Natural and anthropogenic sources of sulfur hexafluoride, Water Resources Research, 36, 3011-3030.

BUSENBERG, E., WEEKS, E., PLUMMER, L. et BARTHOLEMAY, R., 1993. Age dating groundwater by use of chlorofluorocarbons (CCl_3F and CCl_2F_2) and distribution of chlorofluorocarbons in the unsaturated zone, snake river plain aquifer, Idaho National Engineering Laboratory, Idaho. U.S. Geological Survey Water-Resources Investigations 93-4054, 47p.

CACAS, M. C., LEDOUX, E., DE MARSILLY, G. et TILLIE, B., 1990. Modeling fracture flow with a stochastic discrete fracture network : calibration and validation. 1 : The flow model, Water Resources Research, 26, 479-489.

CAMPAORE, G., LACHASSAGNE, P., POINTET, T. et TRAVI, Y., 1997. Evaluation du stock d'eau des altérites. Expérimentation sur le site granitique de Sanon (Burkina-Faso), IAHS Publication, Rabat IAHS conference, 37-46.

CANÉROT, J., 2008. Les Pyrénées Histoire géologique Itinéraires de découverte, Atlantica, BRGM eds, 2 volumes, 516 p et 127 p.

CARRERA, J., HEREDIA, S., VOMVORIS, S. et HUFSCHMIED, P., 1990. Modeling of flow with a small fractured monzonitic gneiss block, in Hydrogeology of low permeability environments, IAH selected papers, Heise, Hanover, Germany, 115-167.

CASTAING, C., GENTER, A., BOURGINE, B., CHILÈS, J., WENDLING, J. et SIEGEL, P., 2002. Taking into account the complexity of natural fracture systems in reservoir single-phase flow modelling, Journal of hydrology, 266, 83-98.

CELLE, H., 2000. Caractéristaion des precipitations sur le pourtour de la Méditerranée occidentale - Approche isotopique et chimique, Thèse de doctorat, Université d'Avignon et des Pays de Vaucluse, 222 p.

CELLE-JEANTON, H., GONFIANTINI, R., TRAVI, Y. et SOL, B., 2004. Oxygen-18 variations of rainwater during precipitation : application of the Rayleigh model to selected rainfalls in Southern France, Journal of Hydrology, 289, 165-177.

CELLE-JEANTON, H., TRAVI, Y., LOŸE-PILOT, M. D., HUNEAU, F. et BERTRAND, G., 2009. Rainwater chemistry at a Mediterranean inland station (Avignon, France) : Local contribution versus long-range supply, Atmospheric Research, 91, 118-126.

CELLE-JEANTON, H., ZOUARI, K., TRAVI, Y. et DAOUD, A., **2001**. Caractérisation isotopique des pluies en Tunisie. Essai de typologie dans la région de Sfax, Earth and Planetary Sciences, 333, 625-631.

CHANDRA MOULI, P., VENKATA MOHAN, S. et JAYARAMA REDDY, S., 2005. Rainwater chemistry at a regional representative urban site : influence of terrestrial sources on ionic composition, Atmospheric Environment, 39, 999-1008.

CHANDRA, S., RAO, V. A., KRISHNAMURTHY, N. S., DUTTA, S. et AHMED, S., 2006. Integrated studies for characterization of lineaments used to locate groundwater potential zones in a hard rock region of Karnataka, India, Hydrogeology Journal, 14, 1042-1051.

CHANDRA, S., S., A., RAM, A. et DEWANDEL, B., 2008. Estimation of hard rock aquifers hydraulic conductivity from geoelectrical measurements : b A theoretical development with field application, Journal of Hydrology, 357, 218-227.

CHEVALIER-LEMIRE, G. et ARMAND, C., 2006 a. Cartographie de sites de forages pour l'eau potable dans le massif de l'Ursuya (Commune de Cambo-les-Bains) Phase 1 : délimitation des secteurs d'intérêt hydrogéologique pour l'implantation de forage d'eau par géophysique et/ou photo-interprétation, Rapport ANTEA n°BORP060150, 4 p.

CHEVALIER-LEMIRE, G. et ARMAND, C., 2006 b. Commune de Cambo-les-Bains Cartographie de sites de forages d'eau potable dans le massif de l'Ursuya Phase 2 : prospection géophysique et implantation de forage, Rapport ANTEA n°A43675/A, 22 p.

CHIGOT, D. et CHEVILLOT, S., **1992**. Ville de Bayonne Carte de vulnérabilité des eaux souterraines du massif de l'Ursuya (partie ouest), Rapport BRGM n°R34881AQI4S92, 38 p.

CHILTON, P. et FOSTER, S., 1995. Hydrogeological characterisation and water-supply potential of basement aquifers in tropical africa, Hydrogeology Journal, 3, 36-49.

CHILTON, P. et SMITH-CARINGTON, A., 1984. Characteristics of the weathered basement aquifer in Malawi in relation to rural water supplies, in Challenges in African Hydrology and Water Resources, Proceedings of the Harare Symposium, IAHS 144, 57-72.

CHOW, V. T., MAIDMENT, D. R. et MAYS, L. W., 1988. Applied Hydrology, McGraw-Hill International Editions, 572 p.

CICERONE, R., STOLARSKI, R. et WALTERS, S., 1974. Stratospheric ozone destruction by man-made chlorofluoromethanes, Science, 185, 1165-1167.

CLARK, D. et FRITZ, P., 1997. Environmental isotopes in hydrogeology. New York, Lewis publishers, 328 p.

COOK, P., 2003. A guide to regional groundwater flow in fractured rock aquifers. CSIRO Australia, 115 p.

COOK, P. et SOLOMON, D., **1997**. Recent advances in dating young groundwater : chlorofluorocarbons, ³H/³He and ⁸⁵Kr, Journal of Hydrology, 191, 245-265.

COOK, P., SOLOMON, D., PLUMMER, L., BUSENBERG, E. et SCHIFF, S., 1995. Chlorofluorocarbons as tracers of groundwater transport processes in a shallow, silty sand aquifer, Water Resour Research, 31, 425-434.

COOK, P., SOLOMON, D., SANFORD, W., BUSENBERG, E., PLUMMER, L. et POREDA, R., 1996. Inferring shallow groundwater flow in saprolite and fractured rock using environmental tracers, Water Resources Research, 32, 1501-1509.

CORTE-REAL, J., QIAN, B. et XU, H., 1999. Circulation patterns, daily precipitation in Portugal and implications for climate change simulated by the second Hadley Centre GCM, Climate Dynamics, 15, 921-935.

COURTOIS, N., LACHASSAGNE, P., WYNS, R., BLANCHIN, R., BOUGAÎRÉ, F., SOMÉ, S. et TAPSOBA, A., 2010. Large-scale mapping of hard-rock aquifer properties applied to burkina faso, Ground Water, 48, 269-283.

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

CRANE, R. G. et HEWITSON, B. C., 1998. CO2 precipitation changes for the Susquehanna basin : Downscaling from the GENESIS general circulation model, International Journal of Climatology, 18, 65-76.

CRUCHET, M., **1983**. Relations entre l'hydrogéologie, le thermalisme et les circulations d'eaux uranifères dans les roches fissurées, Thèse de doctorat, Université scientifique et médicale de Grenoble, 222 p.

CUNNOLD, D. M., PRINN, R. G., RASMUSSEN, R. A., SIMMONDS, P. G., ALYEA, F. N., CARDELINO, C. A., CRAWFORD, A. J., FRASER, P. J. et ROSEN R. D., 1986. Atmospheric lifetime and annual release estimates for CFCl₃ and CF₂Cl₂ from 5 years of ALE data, Journal of Geophysical Research-Atmospheres, 91, 797-817.

DANSGAARD, W., 1964. Stable isotopes in precipitation, Tellus, 8, 75-82.

DAS, R., DAS, S. N. et MIRSA, V. N., 2005. Chemical composition of rainwater and dustfall at Bhubaneswar in the east coast of India, Atmospheric Environment, 39, 5908-5916.

DAVIS, S. et TURK, L., 1964. Optimum depth of wells in crystalline rocks, Ground Water, 2, 6-11.

DAVISON, C. C., 1985. URL Drawdown Experiment and comparison with models, TR 375, Atomic Energy of Canada Ltd., Pinawa, Manitoba.

DE MARSILY, G., 2004. Cours d'hydrogéologie. Université Paris VI, 236 p.

DEB, **D.**, **HARIHARAN**, **S.**, **RAO**, **U. et RYU**, **C.-H.**, **2008**. Automatic detection and analysis of discontinuity geometry of rock mass from digital images, Computers & Geosciences, 34, 115-126.

DEEDS, D., VOLLMER, M., KULONGOSKI, J., MILLER, B., MÜHLE, J., HARTH, C., IZBICKI, J., HILTON, D. et WEISS, R., 2008. Evidence for crustal degassing of CF4 and SF6 in Mojave Desert groundwaters, Geochimica et Cosmochimica Acta, 72, 999-1013.

DELAUNAY, B., 1934. Sur la sphère vide, Bulletin de l'Académie des Sciences de L'URSS, 7, 793-800.

DERSHOWITZ, W., WALLMANN, P. et KINDRED, S., **1991**. Discrete fracture modelling for the Stripa site characterization and validation drift inflow predictions, Swedish Nuclear Power and Waste Management Co., Stockolm, SKB Report 91-16.

DEWANDEL, B., LACHASSAGNE, P., BOUDIER, F., AL-HATTALI, S., LADOUCHE, B., PINAULT, J. et AL-SULEIMANI, Z., 2005. A conceptual hydrogeological model of ophiolite hard-rock aquifers in Oman based on a multiscale and a multidisciplinary approach, Hydrogeology Journal, 13, 708-726.

DEWANDEL, B., LACHASSAGNE, P., WYNS, R., MARECHAL, J. et KRISHNAMURTHY, N., 2006. A generalized 3-D geological and hydrogeological conceptual model of granite aquifers controlled by single or multiphase weathering, Journal of Hydrology, 330, 260-284.

DEWANDEL, B., LACHASSAGNE, P., ZAIDI, F. K. et CHANDRA, S., **2011**. A conceptual hydrodynamic model of a geological discontinuity in hard rock aquifers: Example of a quartz reef in granitic terrain in South India, Journal of Hydrology, 405, 474-487.

DIERSCH, H. J. G., 2010. FEFLOW Finite Element Subsurfac Flow & Transport Simulation System Reference Manual, DHI-WASY GmbH, Waltersdorfer Strabbe, Berlin, Germany, 292 p.

DRAXLER, R. R. et ROLPH, G. D., **2012**. HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via NOAA ARL READY Website (http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php), NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD.

DUCASSE, L., VELASQUE, P. C. et MULLER, J., **1986**. Glissement de couverture et panneaux basculés dans la région des Arbailles (Pyrénées occidentales) : un modèle évolutif de la marge nord ibérique à l'Est de la transformante de Pamplona, Comptes Rendus de l'Académie des Sciences Série II, 303, 14077-1482.

DUNKLE, S., PLUMMER, L., BUSENBERG, E., PHILLIPS, P., DENVER, J., HAMILTON, P., MICHEL, R. et COPLEN, T., 1993. Chlorofluorocarbons (CCl3F and CCl2F2) as dating tools and hydrologic tracers in shallow ground water of the Delmarva peninsula, atlantic coastal plain, United States, Water Resources Research, 29, 3837-3860.

DUPUY, A., 1997. Simulation de la contamination diffuse des eaux souterraines par les nitrates à l'échelle du bassin versant, Thèse de doctorat, Université de Poitiers, 239 p.

DURAND, V., 2005. Recherche multidissciplinaire pour caractériser deux aquifères fracturés : les eaux minérales de Plancoët en contexte métamorphique, et de Quezac en milieu carbonaté, Thèse de doctorat, Université Paris IV - Pierre et Marie Curie, 302 p.

EDET, A., OKEREKE, C., TEME, S. et ESU, E., 1998. Application of remote-sensing data to groundwater exploration : A case study of the Cross River State, southeastern Nigeria, Hydrogeology Journal, 6, 394-404.

EINSIEDL, F. et MAYER, B., 2006. Hydrodynamic and microbial processes controlling nitrate in a fissured-porous karst aquifer of the Franconian Alb, Southern Germany, Environmental Science & Technology, 40, 6697-6702.

EL-ASRAG, A. M., AL-GAMAL, S. A., YOUSSEF, A. et AHMED, D. M., 2003. Spatial and temporal variation of rainwater stable isotopes in Egypt and the east Mediterranean, Theoretical and Applied Climatology, 74, 191-202.

ELKINS, J., THOMPSON, T., SWANSON, T., BUTLER, J., HALL, B., CUMMINGS, S., FISHERS, D. et RAFFO, A., 1993. Decrease in the growth rates of atmospheric chlorofluorocarbons 11 and 12, Nature, 364, 780-783.

ELLIS, D. et SINGER, J. M., 2007. Well logging for earth scientist. Springer, 692 p.

ENGESER, T. et SCHWENTKE, W., 1986. Towards a new concept of the tectogenesis of the pyrenees, Tectonophysics, 129, 233-242.

ENGESGAARD, P., HOJBERG, A. L., HINSBY, K., JENSEN, K. H., LAIER, T., LARSEN, F., BUSENBERG, E. et PLUMMER, N., 2004. Transport and time lag of chlorofluorocarbon gases in the unsaturated zone, Rabis Creek, Denmark, Vadose zone journal, 3, 1249-1261.

FARMAN, J., GARDINER, B. et SHANKLIN, J., **1985**. Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal ClOx/NOx interaction, Nature, 315, 207-210.

FARRELL, D. A., GREACEN, E. L. et GURR, C. G., 1966. Vapor transfer in soil due to air turbulence, Soil Science, 102, 305-313.

FEUILLEE, P. et RAT, P., 1971. Structures et paléogéographie pyrénéo-cantabriques in Histoire structurale du golfe de Gascogne, V. 1, Technip ed, 1-48.

FIQUET, M., NOUVION, O. et TRISCOS, J., 2000. Ville de Bayonne (64) Réalisation d'un forage supplémentaire destiné à l'alimentation en eau potable dans le massif de l'Ursuya Dossier d'ouvrage éxécuté, Rapport ANTEA n°A19130, 27 p.

FIQUET, M., ROIGNOT, G., TRISCOS, J. et VISSOL, C., 1999. Ville de Bayonne (64) Realisation de six forages destinés à l'alimentation en eau potable dans le massif de l'Ursuya Dossier d'ouvrages éxécutés, Rapport ANTEA n°A15603, 37 p.

FOSTER, S., CRIPPS, A. et SMITH-CARINGTON, A., **1982**. Nitrate leaching to groundwater, Philosophical Transactions of the Royal Society of London Series B-Biological Sciences, 296, 477-489.

FOUCAULT, A. et RAOULT, J., 2001. Dictionnaire de géologie. Dunod, volume 5, 380 p.

FRANKE, O. L., REILLY, T. E. et BENNETT, G. D., **1987**. Definition of boundary and initial conditions in the analysis of saturated ground-water flow systems ; an introduction. USGS, Techniques of Water-Resources Investigations 03-B5, 15 p.

GAL, F., 2005. Etude géochimique et isotopique des eaux superficielles du bassin versant du Furean et des eaux minérales du grabben du Forez, est du Massif Central Francais, Thèse de doctorat, Université Jean Monnet - Saint Etienne, 450 p.

GALLOWAY, J. N., DIAWU, Z., JILING, X. et LIKEN, G. E., 1987. Acid rain, China, United States and a remote area, Science, 236, 1559-1562.

GARCIA, J. et LOPEZ, J., **1970**. Formula para el calculo de la evapotranspiracion potencial adaptada al Tropico, Agronomia Tropical, 20, 333-345.

GARNIER, B. J., 1956. A method of computing potential evapotranspiration in West Africa, Bulletin de l'Institut Français d'Afrique Noire, 18, 665-676.

GARRATT, J. R., 1994. The atmospheric boundary layer, Cambridge University Press., 316 p.

GAT, J. R. et CARMI, I., 1970. Evolution of the isotopic composition of atmospheric waters in the Mediterranean Sea area, Journal of Geophysical Research, 75, 3039-3048.

GAT, J. R., KLEIN, B., KUSHNIR, Y., ROETHER, W., WERNLI, H., YAM, R. et SHEMESH, A., 2003. Isotope composition of air moisture over the Mediterranean Sea : an index of the air-sea interaction pattern, Tellus series B-Chemical and Physical Meteorology, 55, 953-965.

GIEC, 2007. Bilan 2007 des changements climatiques. Contribution des Groupes de travail I, II et III au quatrième Rapport d'évaluation du Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat, GIEC Genève, Suisse, 103 pages.

GILLI, E., MANGAN, C. et MUDRY, J., 2008. Hydrogéologie objets, méthodes, applications. Dunod, Paris, 340 p.

GIRARD, J., 2010. Contribution à l'Hydro-Géophysique : Développements et Applications de la Résonance Magnétique Protonique et des Méthodes Electromagnétiques, Habilitation à diriger des recherches, Université de Strasbourg, 95 p.

GLYNN, P. ET PLUMMER, L., 2005. Geochemistry and the understanding of ground-water systems, Hydrogeology Journal, 13, 263-287

GOBRE, T., SALVE, P. R., KRUPADAM, R. J., BANSIWAL, A., SHASTRY, S. et WATE, S. R., 2010. Chemical composition of precipitation in the coastal environment of India, Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology, 85, 48-53.

GONFIANTINI, R., **1996**. On the isotopic composition of precipitation, in Jean Charles Fontes (1936-1994), Un souvenir, Proceedings, International Symposium, European Geologist, 2, 5-8.

GOURCY, L., BARAN, N. et VITTECOQ, B., **2009**. Improving the knowledge of pesticide and nitrate transfer processes using age-dating tools (CFC, SF6, 3H) in a volcanic island (Martinique, French West Indies), Journal of Contaminant Hydrology, 108, 107-117.

GOURGAND, B., 1983. Hydrogéologie des roches fissurées étude du massif cristallin du Rissiou et de sa couverture sédimentaire aménagement EDF de Grand'Maison (Isère), Thèse de doctorat, Université scientifique et médicale de Grenoble, 240 p.

GRANGER, R. J., **1989**. An examination of the concept of potential evaporation, Journal of Hydrology, 111, 9-19.

GUIMERÀ, J. et CARRERA, J., 2000. A comparison of hydraulic and transport parameters measured in lowpermeability fractured media, Journal of Contaminant Hydrology, 41, 261-281.

HAMILTON, P. et HELSEL, D., 1995. Effects of agriculture on groundwater quality in 5 regions of the united-states, Ground Water, 33, 217-226.

HANTUSH, M., 1956. Analysis of pumping tetss in leaky aquifers, American Geophysical Union, 37, 702-714.

HARGREAVES, **1974**. Estimation of potential and crop evapotranspiration, Transactions of the American Society of Agricultural Engineers, 17, 701-704.

HARNISCH, J., BORCHERS, R., FABIAN, P. et MAISS, M., **1996**. Tropospheric trends for CF_4 and C_2F_6 since 1982 derived from SF_6 dated stratospheric air, Geophysical Reasearch Letters, 10, 1099-1102.

HARNISCH, J. et EISENHAUER, A., **1998**. Natural CF_4 and SF_6 on earth, Geophysical Reasearch Letters, 25, 2401-2404.

HEATON, T. et VOGEL, J., 1981. "Excess air" in groundwater, Journal of Hydrology, 50, 201-216.

HERBERT, A., GALE, J., LANYON, G. et MACLEOD, R., **1991**. Modeling for the Stripa site characterization and validation drift inflow : prediction of flow through fractured rock. SKB Report 91-35, Swedish Nuclear Power and Waste Management Co., Stockholm.

HERNÀNDEZ, E., GIMEO, L., SÀNCHEZ, M., RUA, A. et MÉNDEZ, R., 1996. Relationship between rain composition in Spain and its sources, Journal of Geophysical Research, 101, 381-387.

HERZBERG, O. et MAZOR, E., **1979**. Hydrological applications of noble gases and temperature measurements in underground water systems : Examples from Israel, Journal of Hydrology, 41, 217-231.

HISCOCK, K., 2009. Hydrogeology : Principles and practice. Blackwell Publishing, 389 p.

HO, D., SCHLOSSER, P., SMETHIE JR., W. et SIMPSON, H., 1998. Variability in atmospheric chlorofluorocarbons (CCl3F and CCl2F2) near a large urban area : Implications for groundwater dating, Environmental Science and Technology, 32, 2377-2382.

HOAREAU, J., 2009. Utilisation d'une approche couplée hydrogéophysique pour l'étude des aquifères Applications aux contextes de socle et côtier sableux, Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier - Grenoble 1, 208 p.

HOBBS, W., 1904. Lineaments of the Atlantic border region, Geological Society Of America Bulletin, 15, 483-506.

HOLDRIDGE, L. R., **1959**. Simple method for determining potential evapotranspiration from temperature data, Science, 130, 572-573.

HOUSTON, J. et LEWIS, R., 1988. The Victoria province drought relief project, II. Borehole yield relationships, Ground Water, 26, 418-426.

HOWARD, K., HUGGHES, M., CHARLESWORTH, D. et NGOBI, G., 1992. Hydrogeologic evaluation of fracture permeability in crystalline basement aquifers of Uganda, Applied hydrogeology, 1, 55-65.

HRKAL, Z., MILICKY, M. et TESAR, M., 2009. Climate change in Central Europe and the sensitivity of the hard rock aquifer in the Bohemian Massif to decline of recharge : case study from the Bohemian Massif, Environmental Earth Sciences, 59, 703-713.

HSIEH, P. A. et NEUMAN, S. P., 1985. Field determination of the three-dimensional hydraulic conductivity tensor of anisotropic media. 1. Theory, Water Resources Research, 21, 1655-1666.

HUANG, X. F., LI, X., HE, L. Y., FENG, N., MIN, H., NIU, Y. W. et ZENG, L. W., 2010. 5-Year study of rainwater chemistry in a coastal mega-city in South China, Atmospheric Research, 97, 185-193.

HUNEAU, **2000**. Fonctionnement hydrogeologique et archives paleoclimatiques d'un aquifere profond mediterraneen etude géochimique et isotopique du bassin miocène de valréas (sud-est de la france), Thèse de doctorat, Université d'Avignon et des Pays de Vaucluse, 206 p.

HÖHENER, P., DUWIG, C., PASTERIS, G., KAUFMANN, K., DAKHEL, N. et HARMS, H., 2003. Biodegradation of petroleum hydrocarbon vapors : laboratory studies on rates and kinetics in unsaturated alluvial sand, Journal of Contaminant Hydrology, 66, 93-115.

HÖHENER, P., WERNER, D., BALSIGER, C. et PASTERIS, G., 2003. Worldwide occurrence and fate of chlorofluorocarbons in groundwater : Critical Reviews, Environmental Science and Technology, 33, 1-29.

HYDRO ASSISTANCE, 2001. Département de Pyrénées Atlantiques Mairie de Hasparren, Forages Pit11 et Pit16, Alimentation en eau potable Interprétation des essais de pompages, 34 p.

IAEA, **2008**. Isotopes de l'environnement dans le cycle hydrologique. International Atomic Energy Agency (IAEA), collection cours de formation, 590 p.

IPCC, **2000**. Summary for Policymakers Emissions Scenarios A special report of IPCC Working Group III, Intergouvernmental Panel on climate change, 27 p.

JAMAGNE, M., BÉTRÉMIEUX, R., BÉGON, J. et MORI, A., 1977. Quelques données sur la variabilité dans le milieu naturel de la réserve en eau des sols, Bulletin Technique d'Information, 324-325, 627-641.

JAMMES, S., MANATSCHAL, G., LAVIER, L. et MASINI, E., 2009. Tectonosedimentary evolution related to extreme crustal thinning ahead of a propagating ocean : Example of the western Pyrenees, Tectonics, 28, TC4012, 24p.

JAWAD AL OBAIDY, A H M. JOSHI, H., 2006. Chemical composition of rainwater in a tropical urban area of northern India, Atmospheric Environment, 40, 6886-6891.

JENKINS, G. M. et WATTS, D. G., 1968. Spectral analysis and its applications. Holden-Day, 525 p.

JIRAKOVA, H., HUNEAU, F., CELLE-JEANTON, H., HRKAL, Z. et LE COUSTUMER, P., 2009. Palaeorecharge conditions of the deep aquifers of the Northern Aquitaine region (France), Journal of Hydrology, 368, 1-16.

JIRAKOVA, H., HUNEAU, F., CELLE-JEANTON, H., HRKAL, Z. et LE COUSTUMER, P., 2011. Insights into palaeorecharge conditions for European deep aquifers, Hydrogeology Journal, 19, 1545-1562.

JOHNSTON, C. T., COOK, P. G., FRAPE, S. K., PLUMMER, L. N., BUSENBERG, E. et BLAKPORT, R. J., 1998. Groundwater age and nitrate distribution within a glacial aquifer beneath a thick unsaturated zone, Ground Water, 36, 171-180.

JOUZEL, J., **1986**. Isotopes in cloud physics : multisteps and multistages processes in Handbook of Environmental Isotopes Geochemistry, vol. 2 : The terrestrial environment B, Elsevier, 61-112.

KATZ, B., CHELETTE, A. et PRATT, T., 2004. Use of chemical and isotopic tracers to assess nitrate contamination and ground-water age, Woodville Karst Plain, USA, Journal of Hydrology, 289, 36-61.

KATZ, B. G., LEE, T. M., PLUMMER, L. N. et BUSENBERG, E., 1995. Chemical evolution of groundwater near a sinkhole lake, northern Florida. 1. Flow patterns, age of groundwater, and influence of lakewater leakage, Water Resources Research, 31, 1549-1564.

KAUFMANN, S. et LIBBY, W. F., 1954. The natural distribution of trtium, Physical Review, 93, 1337-1344.

KAZEMI, H., SETH, M. S. et THOMAS, G. W., 1969. Interpretation of interference tests in naturally fractured reservoirs with uniform fracture distribution, Society of Petroleum Engineers Journal, 9, 463-472.

KEENE, W. C., PSZENNY, A. A. P., GALLOWAY, J. N. et HAWLEY, M. E., 1986. Sea-salt corrections and interpretation of constituent ratios in marine precipitation, Journal of Geophysical Research, 91, 6647-6658.

KHALIL, M. A. K. et RASMUSSEN, R. A., 1989. The potential of soils as a sink of chlorofluorocarbons and other man-made chlorocarbons, Geophysical Reasearch Letters, 16, 679-682.

KIMBALL, J. P. et LEMON, E. R., 1972. Theory of soil air movement due to pressure fluctuations, Agricultural Meteorology, 9, 163-181.

KOH, D., PLUMMER, L., BUSENBERG, E. et KIM, Y., 2007. Evidence for terrigenic SF₆ in groundwater from basaltic aquifers, Jeju Island, Korea : Implications for groundwater dating, Journal of Hydrology, 339, 93-104.

KOITA, M., 2010. Caractérisation et modélisation du fonctionnement hydrodynamique d'un aquifère fracturé en zone de socle. Région de Dimbokro-Bongouanou (Centre Est de la Côte d'Ivoire), Thèse de doctorat, Université Montpellier II, 235 p.

KRASNY, J. et HRKAL, Z., 2003. Preface of international conference on groundwater in fractured rocks - Proceedings, UNESCO, Prague, Czech Republic, 15-19.

KRUSEMANN, G. et RIDDER, N., 2000. Analysis and evaluation of pumping test data, ILRI, 377 p.

KULSHRESTHA, U. C., KULSHRESTHA, M. J., SEKAR, R., SASTRY, G. S. R. et VAIRAMANI, M., **2003**. Chemical characteristics of rainwater at an urban site of south-central India, Atmospheric Environment, 37, 3019-3026.

LABASQUE, T., AYRAUD, V., AQUILINA, L. et LE CORRE, P., 2006. Dosage des compsés chlorofluorocarbonatés et du tétrachlorure de carbone dans les eaux souterraines. Application à la datation des eaux, Cahiers techniques de Géosciences Rennes, 4, 51 p.

LABORDE, J. P., 2000. Eléments d'hydrologie de surface, U.M.R. 5651 "Espace" du C.N.R.S., 204 p.

LACHASSAGNE, P., AHMED, S., DEWANDEL, B., COURTOIS, N., MARÉCHAL, J., PERRIN, J. et WYNS, R., 2008. Recent improvements in the conceptual model of hard rock aquifers and its application to the survey, management, modelling and protection of groundwater, in Groundwater and Climate in Africa, Proceedings of the Kampala Conference, IAHS Publ. 334, 250-256.

LACHASSAGNE, P. et WYNS, R., 2002. Structure et fonctionnement des aquifères de socle : résultats récents acquis en margeride (lozère), Revue de l'Agence de l'Eau Adour-Garonne, hors série, 24-28.

LACHASSAGNE, P., WYNS, R., BÉRARD, P., BRUEL, T., CHÉRY, L., COUTAND, T., DESPRATS, J. et LE STRAT, P., 2001. Exploitation of high-yields in hard-rock aquifers : downscaling methodology combining GIS and multicriteria analysis to delineate field prospecting zones, Ground water, 39, 568-581.

LACHASSAGNE, P., WYNS, R. et DEWANDEL, B., 2011. The fracture permeability of Hard Rock Aquifers is due neither to tectonics, nor to unloading, but to weathering processes, Terra Nova, 23, 145-161.

LADOUCHE, B., AQUILINA, L. et DÖRFLIGER, N., 2009. Chemical and isotopic investigation of rainwater in Southern France (1996–2002) : Potential use as input signal for karst functioning investigation, Journal of Hydrology, 367, 150-164.

LAMARE, **1936**. Recherches géologiques dans les Pyrénées basques d'Espagne, Mémoires de la Sociétè Géologique de France, 1 carte à 1 : 200 000, 462 p.

LAMBERT, R., 1996. Géographie du cycle de l'eau. Presses Iniversitaires du Mirail, Toulouse, 439 p.

LAROCQUE, M., MANGIN, A., RAZACK, M. et BANTON, O., 1998. Contribution of correlation and spectral analyses to the regional study of a large karst aquifer (Charente, France), Journal of Hydrology, 205, 217-231.

LARRASOAÑA, J. C., PARÉS, J. M., MILLAN, H., DEL VALLE, J. et PUEYO, E. L., 2003. Paleomagnetic, structural, and stratigraphic constraints on transverse fault kinematics during basin inversion : The Pamplona Fault (Pyrenees, north Spain), Tectonics, 22, 1-22.

LARROQUE, F., 2004. Gestion globale d'un système aquifère complexe Application à l'ensemble aquifère multicouche médocain, Thèse de doctorat, Université Michel de Montaigne - Bordeaux 3, 253 p.

LARSSON, I., 1987. Les eaux souterraines des roches dures du socle. Unesco, 287 p.

LE GOC, R., 2009. Caractérisation et modélisation des écoulements dans les milieux fracturés, Thèse de doctorat, Université de Rennes 1, 237 p.

LECARPENTIER, C., 1975. L'evapotranspiration potentielle et ses implications géographique, Annales de géographie, 84 (464), 385 - 414.

LEE, **J. et LEE**, **K.**, **2000**. Use of hydrologic time series data for identification of recharge mechanism in a fractured bedrock aquifer system, Journal of Hydrology, 229, 190-201.

LEVEINEN, J., RÖNKÄ, E., TIKKANEN, J. et KARRO, E., 1998. Fractional flow dimensions and hydraulic properties of a fracture-zone aquifer, Leppävirta, Finland, Hydrogeology Journal, 6, 327-340.

LHOMME, J. P., 1997. Towards a rational definition of potential evapotranspiration, Hydrology and Earth System Science, 1(2), 257-264.

LIGHTOWLERS, P. J. et CAPE, J. N., 1988. Sources and fate of atmospheric HCl in the U.K. and Western Europe, Atmospheric Environment, 22, 7-15.

LOVELOCK, J. E., 1971. Atmospheric fluorine compounds as indicators of air movements, Nature, 230, 379 p.

LOVELOCK, J. E., 1974. Atmospheric halocarbons and stratospheric ozone, Nature, 252, 292-294.

LOVELOCK, J. E. et MAGGS, R. J., 1973. Halogenated hydrocarbons in and over atlantic, Nature, 241, 475-481.

LOYE-PILOT, M. D., 1995. Impact géologique, géochimique et écologique des apports atmosphériques, Bulletin Pédagogique Trimestriel, 1, fasc.295.

LOYE-PILOT, M. D. et MORELLI, J., **1988**. Fluctuations of ionic composition of precipitations collected in corsica related to changes in the origins of incoming aerosols, Journal of Aerosol Science, 19, 577-585.

MABEE, S., HARDCASTLE, K. et WISE, D., 1994. A method of collecting and analyzing lineaments for regional-scale fractured bedrock aquifer studies, Ground water, 32, 884-894.

MAGOWE, M. et CARR, J., 1999. Relationship between lineaments and ground water occurence in Western Bostwana, Ground Water, 37, 282-286.

MAISS, M. et BRENNINKMEIJER, C., 1998. Atmospheric SF_6 : Trends, sources and prospects, Environmental Science and Technology, 32, 3077-3086.

MAJOUBE, M., 1971. Fractionnement en oxygène-18 et en deutérium entre l'eau et sa vapeur, Journal de Chmie Physique, 10, 1423.

MALOSZEWSKI, P. et ZUBER, A., 1996. Lumped parameter models for the interpretation of environmental tracer data, Manual on mathematical models in isotope hydrogeology, IAEA-TECDOC-910, 9-58.

MALZIEU, E., 1987. Ressource en eau entre Rhône et Ventoux. Hydrogéologie et hydrochimie du bassin de Bédouin – Mormoiron, de la plaine des Sorgues et du massif de Pernes-les-Fontaines, Thèse de doctorat, Université d'Avignon, 247 p.

MANDAL, A. K., ZHANG, J. et ASAI, K., 2011. Stable isotopic and geochemical data for inferring sources of recharge and groundwater flow on the volcanic island of Rishiri, Japan, Applied Geochemistry, 26, 1741-1751.

MANGIN, A., 1981. Utilisation des analyses corrélatoire et spectrale dans l'approche des systèmes hydrologiques, Comptes Rendus de l'Académie des Sciences, Paris, 293, 401-404.

MANGIN, A., 1984. Pour une meilleure connaissance des systèmes hydrologiques à partir des analyses corrélatoire et spectrale, Journal of Hydrology, 67, 25-43.

MARTIN, C., AQUILINA, L., MOLENAT, J., CARTEAUX, L., FAUCHEUX, M., RUIZ, L. et GASCUEL-ODOUX, C., 2004. Seasonal and interannual variations of nitrate and chloride in stream waters related to spatial and temporal patterns of groundwater concentrations in agricultural catchments, Hydrological Processes, 18, 1237-1254.

MARTIN, E., TIMBAL, B. et BRUN, E., 1997. Downscaling of general circulation model outputs : simulation of the snow climatology of the French Alps and sensitivity to climate change, Climate Dynamics, 13, 45-56.

MARÉCHAL, J., DEWANDEL, B. et SUBRAHMANYAM, K., 2004. Use of hydraulic tests at different scales to characterize fracture network properties in the weathered-fractured layer of a hard rock aquifer, Water Resources Research, 40, W11508.

MARÉCHAL, J., DEWANDEL, B., SUBRAHMANYAM, K. et TORRI, R., 2003b. Specific methods for the evaluation of hydraulic properties in fractured hard-rock aquifers, Current science, 85, 511-516.

MARÉCHAL, J.-C., WYNS, R., LACHASSAGNE, P., SUBRAHMANYAM, K. et TOUCHARD, F., 2003. Anisotropie verticale de la perméabilité de l'horizon fissuré des aquifères de socle : concordance avec la structure géologique des profils d'altération, Comptes Rendus Geoscience, 335, 451–460.

MATHEY, B., FLOQUET, M. et MARTINEZ-TORRES, L., **1999**. The Leiza palaeo-fault : Role and importance in the Upper Cretaceous sedimentation and palaeogeography of the Basque Pyrenees (Spain), Comptes Rendus de l'Académie des Sciences, Serie IIA, 328, 393-399.

MATTAUER, M. et HENRY, J., 1974. Pyrénées, Geological Society of London, Special Publications, 4, 3-21.

MAZUREK, M., BOSSART, P. et ELIASSON, T., 1996. Classification and characterisation of waterconducting features at Äspö : results of investigations on the outcrop scale. SKB International Cooperation Report ICR 97-01, SKB, Stockholm, Sweden.

MCCULLOCH, A., 1999. CFC and Halon replacements in the environment, Journal of Fluorine Chemistry, 100, 163-173.

MCFARLANE, M. J., 1992. Groundwater movement and water chemistry associated with weathering profiles of the African surface in Malawi, in Hydrogeology of Crystalline Basement Aquifers in Africa, vol. 66. Geological Society Special Publication, London, 102-129.

MEARNS, L. O., ROZENZWEIG, C. et GOLDBERG, R., 1996. The effect of changes in daily and interannual climatic variability on CERES-wheat : a sensitivity study, Climate Change, 32, 257-292.

MICHARD, A., 1989. Rare earth systematics in hydrothermal fluids, Geochimica et Cosmochimica Acta, 53, 745-750.

MILLOT, R., PETELET-GIRAUD, E., GUERROT, C. et NÉGREL, P., 2010. Multi-isotopic composition (d⁷Li–d¹¹B–dD–d¹⁸O) of rainwaters in France : Origin and spatio-temporal characterization, Applied Geochemistry, 25, 1510-1524.

MODICA, E., BUXTON, H. T. et PLUMMER, L. N., 1998. Evaluating the source and residence times of ground-water seepage to streams, New Jersey Coastal Plain, Water Resources Research, 34, 2797-2810.

MOENCH, A. F., 1984. Double-porosity models for a fissured groundwater reservoir with fracture skin, Water Resources Research, 20, 831-846.

MOLINA, M. et ROWLAND, F., 1974. Stratospheric sink for chlorofluoromethanes : chlorine atom-catalysed destruction of ozone, Nature, 249, 810-812.

MOORE, G. et HOLLYDAY, E., **1975**. Prospecting for groundwater with SKYLAB photographs, central Tennessee, in Remote sensing of earth resources. Volume 4 - Proceedings of the Fourth Annual Conference on Earth Resources, Tullahoma, Tennessee, United States, 499-519.

MORTON, F. I., 1983. Operational estimates of areal evapotranspiration and their significance to the science and practice of hydrology, Journal of Hydrology, 66, 1-76.

MOUTSOPOULOS, K. N. et TSIHRINTZIS, V. A., 2009. Analytical solutions and simulation approaches for double permeability aquifers, Water Resource Management, 23, 395-415.

MUKHERJI, A., **2008**. Spatio-temporal analysis of markets for groundwater irrigation servives in India : 1976-1977 to 1997-1998, Hydrgeology Journal, 16, 1077-1087.

MULLER, J. et ROGER, P., 1977. L'Evolution structurale des Pyrénées (Domaine central et occidental) Le segment hercynien, la chaîne de fond alpine, Géologie Alpine, 53, 149-191.

MUSY, A. et HIGY, C., 2004. Hydrologie : Une science de la nature. Presses Polytechniques et Universitaires Romandes, 314 p.

NERETNIEKS, I., ERIKSEN, T. et TÄHTINEN, P., 1982. Tracer movement in a single fissure in granitic rock : some experimental results and their interpretation, Water resources research, 18, 849-858.

NEUMAN, S., 2005. Trends, prospects and challenges in quantifying flow and transport through fractured rocks, Hydrogeology Journal, 13, 124-147.

NEUMAN, S. P. et DEPNER, J. S., 1988. Use of variable-scale pressure test data to estimate the log hydraulic conductivity covariance and dispersivity of fractured granites near oracle, arizona, Journal of Hydrology, 102, 475-501.

NORDSTROM, D. et SOUTHAM, G., 1997. Geomicrobiology of sulfide mineral oxidation, geomicrobiology : interactions between microbes and minerals, Reviews In Mineralogy, 35, 361-390.

NÉGREL, P., LEMIÈRE, B., MACHARD DE GRAMMONT, H., BILLAUD, P. et SENGUPTA, B., 2007. Hydrogeochemical processes, mixing and isotope tracing in hard rock aquifers and surface waters from the Subarnarekha River Basin, (east Singhbhum District, Jharkhand State, India), Hydrogeology Journal, 15, 1535-1552.

NÉGREL, P. et ROY, S., 1998. Chemistry of rainwater in the Massif Central (France) : a strontium isotope and major element study, Applied Geochemistry, 13, 941-952.

NRC, 1996. National Research Council (NRC), Rock Fractures and Fluid Flow : Contemporary Understanding and Applications, National Academy Press, Washington DC. 551 p.

ODA, M., HATSUYAMA, Y. et OHNISHI, Y., 1987. Numerical experiments on permeability tensor and its application to jointed granite at Stripa mine, Sweden, Journal of Geophysical Reasearch-Solid Earth and Planets, 92, 8037-8048.

ONIBON, H., LEBEL, T., AFOUDA, A. et GUILLOT, G., 2004. Gibbs sampling for conditional spatial disaggregation of rain fields, Water Resources Research, Water Resources Research, 40, W08401.

OSTER, H., SONNTAG, C. et MÜNNICH, K., **1996**. Groundwater age dating with chlorofluorocarbons, Water Resources Research, 32, 2989-3001.

OVERREIN, L. N., SEIP, H. M. et TOLLAN, A., **1981**. Acid precipitation effects on forest and fish, SNSF project 1972 - 1980, final report, 175 p.

PAGÉ, C. et TERRAY, L., 2010. Nouvelles projections climatiques à échelle fine sur la France pour le 21ème siècle : les scénarii SCRATCH2010. CERFACS Technical Report TR/CMGC/10/58, Toulouse, France, 3 p.

PAPADAKIS, J., 1961. Climatic tables for the world. Buenos Aires : Av. Cordoba, 175 p.

PARKHURST, D. et APPELO, C., 1999. User's guide to PHREEQC (version 2), A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations : U.S. Geological Survey Water-Resources Investigations Report 99-4259, 312 p.

PELICHO, A. F., MARTINS, L. D., NOMI, S. N. et SOLCI, M. C., 2006. Integrated and sequential bulk and wet-only samplings of atmospheric precipitation in Londrina, South Brazil (1998 - 2002), Atmospheric Environment, 40, 6827 - 6835.

PENMAN, H. L., **1948**. Natural evaporation from open water, bore sioil and grass, Proceedings of the Royal Society of London, series A, 193, 120-145.

PENMAN, H. L., 1956. Evaporation : an introductory survey, Netherlands Journal of Agriculture Science, 1, 9-29.

PENNA, D., STENNI, B., SANDA, M., WREDE, S., BOGAARD, T. A., GOBBI, A., BORGA, M., FISCHER, B. M. C., BONAZZA, M. et CHAROVA, Z., 2010. On the reproducibility and repeatability of laser absorption spectroscopy measurements for ²H and ¹⁸O isotopic analysis, Hydrology and Earth System Sciences, 14, 1551-1566.

PERRIER, A., **1977**. Projet de définitions concernant l'évapotranspiration en fonction de considérations théoriques et pratiques, La Météorologie, 11, 7-16.

PETELET-GIRAUD, E., CASANOVA, J., CHERY, L., NÉGREL, P. et BUSHARET, S., 2005. Essai de caractérisation isotopique (d¹⁸O et d2H) du signal météorique actuel à partir des lacs et réservoirs : application au quart Sud-Ouest de la France, La Houille Blanche, 2, 57-62.

PEYBERNÈS, B., FONDECAVE-WALLEZ, M. et COMBES, P., 2003. Le front de la «Zone des marbres » (Pyrénées basco-cantabriques, Espagne), un chevauchement fini-crétacé fossilisé par les brèches marines paléocènes ? Compte Rendu Geoscience, 335, 335-344.

PICKENS, J., **1987**. Analysis and interpretation of borehole hydraulic tests in deep boreholes : principles, model development, and applications, Water Resources Research, 23, 1341-1375.

PLAISANCE, H., GALLOO, J. C. et GUILLERMO, R., 1997. Source identification and variation in the chemical composition of precipitation at two rural sites in France, Science of the Total Environment, 206, 79-93.

PLUMMER, L., BUSENBERG, E., BÖHLKE, J., NELMS, D., MICHEL, R. et SCHLOSSER, P., 2001. Groundwater residence times in Shenandoah National Park, Blue Ridge Mountains, Virginia, USA : a multi-tracer approach, Chemical Geology, 179, 93-111.

PLUMMER, L., BUSENBERG, E., COOK, P., SOLOMON, D., HAN, L., OSTER, H. et GRÖNING, M., 2006. Use of Chlorofluorocarbons in hydrogeology A guidebook, IAEA, Vienna, Austria, 291 p.

PLUMMER, L., BÖHKLE, J. et BUSENBERG, E., 2003. Water-Resources Investigations Report 03-4035, U.S. Geological Survey, 12-24.

PLUMMER, L. et FRIEDMAN, 1999. Tracing and dating young ground water, USGS Fact Sheet, 134-99.

POSSANZINI, M., BUTTINI, P. et DI PALO, V., 1988. Characterization of a rural area in terms of dry and wet deposition, Science of the Total Environment, 74, 111-120.

POSTMA, D., BOESEN, C., KRISTIANSEN, H. et LARSEN, F., 1991. Nitrate reduction in an unconfined sandy aquifer - water chemistry, reduction processes, and geochemical modeling, Water Resources Research, 27, 2027-2045.

POUCHAN, P., 1963. Etude de forages à l'aide d'un moulinet, Berkeley, pub. AIHS ; 235-238.

PRASANNA, M. V., CHIDAMBARAM, S., SHAHUL HAMEED, A. et SRINIVASAMOORTHY, K., 2010. Study of evaluation of groundwater in Gadilam basin using hydrogeochemical and isotope data, Environmental monitoring and assessment, 168, 63-90.

PRINN, R. G., WEISS, R. F., FRASER, P. J., SIMMONDS, P. G., CUNNOLD, D. M., ALYEA, F. N., O'DOHERTY, S., SALAMEH, P., MILLER, B. R., HUANG, J., WANG, R. H. J., HARTLEY, D. E., HARTH, C., STEELE, L. P., STURROCK, G.A DN MIDGLEY, P. M. et MCCULLOCH, A., 2000. History of chemically and radiatively important gases in air deduced from ALE/GAGE/AGAGE, Journal of Geophysical Reasearches, 105, 17751-17792.

PRUESS, K. et NARASIMHAN, T. N., 1988. Numerical modeling of multiphase and nonisothermal flows in fractured media, in Proceedings of the Symposium Conference on Fluid Flow in Fractured Rocks, Georgia State University.

RAHN, K. A., BROSSET, C., OTTAR, B. et PATTERSON, E. M., 1982. Black and white episodes, chemical evolution of Eurasian air masses and long range transport of carbon into the Arctic, in Particulate carbon : atmospheric life cycle, Plenum, New York, 339 -340.

RAT, P., 1988. The Basque-Cantabrian basin between the Iberian and European plates : Some facts but still many problems, Revista de la Sociedad Geologica de España, 1, 327-348.

RAZIN, P., 1989. Evolution tecto-sédimentaire alpine des Pyrénées Basques à l'ouest de la transformante de pamplona (province du Labourd), Thèse de doctorat, Université de Bordeaux 3, 464 p.

REEVES, M., FREEZE, G. A., KELLEY, V. A., PICKENS, J. F., UPTON, D. T. et DAVIES, P. B., **1991**. Regional double-porosity solute transport in the Culebra dolomite under brine-reservoir-breach release conditions : An analysis of parameter sensitivity and importance, SAND89-7069, Sandia National Laboratories, Albuquerque, N.M.

REILLY, T., PLUMMER, L., PHILLIPS, P. et BUSENBERG, E., 1994. The use of simulation and multiple environmental tracers to quantify groundwater flow in a shallow aquifer, Water Resources Research, 30, 421-433.

REY, F., **2007**. Ressources en eau souterraine dans les chaînons béarnais (Pyrénées-Atlantiques, France) Géométrie et fonctionnement hydrogéologique de quatre aquifères carbonatés, Thèse de doctorat, Université de Bordeaux 1, 466 p.

REYNAUD, A., 2000. Fonctionnement d'un aquifère karstique décollé sur une semelle de Trias évaporitique, exemple du massif du mont Vial (Arc de Castellane, Alpes-Maritimes), Thèse de doctorat, Université de Franch-Comté, Besançon, 246 p.

RIAD, S., **2003**. Typologie et analyse hydrologique des eaux superficielles à partir de quelques bassins versants représentatifs du Maroc, Thèse de doctorat, Université de Lille et Université d'Agadir, 154p.

RICHARD, P., 1986. Structure et évolution alpine des massifs paléozoïques du Labourd (Pays Basque francais), Thèse de doctorat, Université d'Orlèans, 374 p.

ROBERTSON, W. D., RUSSEL, B. M. et CHERRY, J. A., **1996**. Attenuation of nitrate in aquitard sediments of southern Ontario, Journal of Hydrology, 180, 267-281.

ROLPH, G. D., **2012**. Real-time Environmental Applications and Display sYstem (READY) Website (http://ready.arl.noaa.gov), NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD.

ROZANSKI, K., ARAGUAS-ARAGUAS, L. et GONFIANTINI, R., 1993. Isotopic patterns in modern global precipitation, in Continental isotope indicators of climate., American Geophysical Union, 78, 1-36.

ROZANSKI, K., SONNTAG, C. et MÜNNICH, K. O., 1982. Factors controlling stable isotope composition of European precipitations, Tellus, 34, 142-150.

RUSHTON, K. R. et WELLER, J., **1985**. Response to pumping of a weathered fractured granite aquifer, Journal of Hydrology, 80, 299-309.

RUSSEL, A. et THOMPSON, G., 1983. Mechanisms leading to enrichment of the atmospheric fluorocarbons CCl_3F and CCl_2F_2 in groundwater, Water Ressources Research, 19, 57-60.

RÉMÉNIÉRAS, G., 1986. L'hydrologie de l'Ingénieur, Eyrolles Editions, Paris, 456 p.

SAFAI, P. D., RAO, P. S. P., MOMIN, G. A., ALI, K., CHATE, D. M. et PRAVEEN, P. S., 2004. Chemical composition of precipitation during 1984-2002 at Pune, India, Atmospheric Environment, 38, 1705-1714.

SAFFIGNA, P. et KEENEY, D., 1977. Nitrate and chloride in ground-water under irrigated agriculture in central wisconsin, Ground Water, 15, 170-177.

SAKIHAMA, H., ISHIKI, M. et TOKUYAMA, A., 2008. Chemical characteristics of precipitation in Okinawa Island, Japan, Atmospheric Environment, 42, 2320-2335.

SALVE, P. R., MAURYA, A. et WATE, S. R., 2008. Chemical composition of major ions in rainwater, Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology, 80, 242-246.

SANDER, P., 2007. Lineaments in groundwater exploration : a review of applications and limitations, Hydrogeology Journal, 15, 71-74.

SANTOS, P. S. M., OTERO, M., SANTOS, E. B. H. et DUARTE, A. C., 2011. Chemical composition of rainwater at a coastal town on the southwest of Europe : What changes in 20 years? Science of the Total Environment, 409, 3548-3553.

SANUSI, A., WORTHAM, H., MILLET, M. et MIRABEL, P., 1996. Chemical composition of rainwater in eastern france, Atmospheric Environment, 30, 59-71.

SATYANARAYANA, J., KUMAR REDDY, L. A., KULSHRESTHA, M. J., RAO, R. N. et KULSHRESTHA, U. C., 2010. Chemical composition of rain water and influence of airmass trajectories at a rural site in an ecological sensitive area of Western Ghats (India), Journal of Atmospheric Chemistry, 66, 101-116.

SCANVIC, J., **1993**. Utilisation de la télédétection dans les sciences de la terre. BRGM Manuels et méthodes, 160 p.

SCHOEFFLER, J., 1982. Les transversales basco-landaises., Bulletin des Centre de Recherches ELF-Aquitaine, 6, 257-263.

SHEWCHUK, J. R., 2002. Delaunay Refinement Algorithms for Triangular Mesh Generation, Computational Geometry, 22, 21-74.

SHUTTLEWORTH, W. J., 1993. Evaporation. In Handbook of Hydrology. McGraw-Hill, New York.

SICARD, P., 2006. Caractérisation des retombées atmosphériques en France en zone rurale sous forme de précipitations, gaz et aérosols. Analyses des tendances spatiotemporelles et des séries chronologiques, Thèse de doctorat, Université de Lille, 425 p.

SIDDIQUI, S. et PARIZEK, R., 1971. Hydrogeology factors influencing well yields in folded and faulted carbonate rocks in central Pennsylvania, Water resources, 7, 1295-1312.

SINGHAL, B., 2008. Nature of hard rock aquifers : hydrogeological uncertainties and ambiguities in Groundwater Dynamics in Hard Rock Aquifers, in Groundwater Dynamics inHard Rock Aquifers : Sustainable Management and Optimal Monitoring Network Design, Springer, 1-20.

SINGHAL, B. et GUPTA, R., 1999. Applied hydrogeology of fractured rocks. Kluwer, 400 p.

SMITH, L., CLEMO, T. et ROBERTSON, M., 1990. New approaches to the simulation of field scale solute transport in fractured rocks, in Proceedings of the 5th Canadian/American Conference on Hydrgeology, National Waterwell Association.

SOUQUET, P., PEYBERNES, B., BILOTTE, M. et DEBROAS, E. J., 1977. La Chaîne Alpine des Pyrénées, Géologie Alpine, 53, 193-216.

SPURLOCK, F., BUROW, K. et DUBROVSKY, N., **2000**. Chlorofluorocarbon dating of herbicide-containing well waters in Fresno and Tulare Counties, California, Journal of Environmental Quality, 29, 474-483.

STREBEL, O., DUYNISVELD, W H M et BÖTTCHER, J., 1989. Nitrate pollution of groundwater in western-europe, Agriculture Ecosystems & Environnment, 26, 189-214.

STUMM, W. et WOLLAST, R., 1990. Coordination chemistry of weathering - kinetics of the surfacecontrolled dissolution of oxide minerals, Reviews of Geophysics, 28, 53-69.

SUDICKY, E. A. et MCLAREN, R. G., 1992. The Laplace transform galerkin technique for large-scale simulation of mass-transport in discretely fractured porous formations, Water Resources Research, 28, 499-514.

SWAMINATHAN, M. S., 2007. Can science and technology feed the world in 2025? Field Crops Research, 104, 3-9.

SZABO, Z., RICE, D., PLUMMER, L., BUSENBERG, E., DRENKARD, S. et SCHLOSSER, P., 1996. Age-dating of shallow groundwater with chlorofluorocarbons, tritium/helium 3, and flow path analysis, southern New Jersey coastal plain, Water Resources Research, 32, 1023-1038.

TARITS, C., AQUILINA, L., AYRAUD, V., PAUWELS, H., DAVY, P., TOUCHARD, F. et BOUR, O., 2006. Oxido-reduction sequence related to flux variations of groundwater from a fractured basement aquifer (Plomeur area, France), Applied Geochemistry, 21, 29-47.

TAYLOR, R. et HOWARD, K., **2000**. A tectono-geomorphic model of the hydrogeology of deeply weathered crystalline rock : Evidence from Uganda, Hydrogeology Journal, 8, 279-294.

TAYLOR, S. R., 1964. Abundance of chemical elements in the continental crust - a new table, Geochimica et Cosmochimica Acta, 28, 1273-1285.

THATCHER, L. L., JANZER, V. J. et EDWARDS, R. W., 1977. Methods for determination radioactive substances in water and fluvial sediments. In Techniques of Water Resources Investigations. U.S. Geological Survey Washington, 5, 95 p.

THORNTHWAITE, C., 1948. An approach toward a rational classification of climate, American geographical society, 38, 55-94.

THORNTHWAITE, C. W., 1954. The measurement of potential evapotranspiration, J.M. Mather, Seabrook, New Jersey, 255 p.

TIEH, T., LEDGER, E. et ROWE, M., 1980. Release of uranium from granitic rocks during in situ weathering and initial erosion (Central Texas), Chemical Geology, 29, 227-248.

TIWARI, S., CHATE, D. M., BISHT, D. S., SRIVASTAVA, M. K. et PADMANABHAMURTY, B., 2011. Rainwater chemistry in the North Western Himalayan Region, India, Atmospheric Research, 104-105, 128-138.

TREFRY, M. G. et MUFFELS, C., **2007**. FEFLOW : A Finite-Element Ground Water Flow and Transport Modeling Tool, Ground Water, 45, 525-528.

TRIPLET, J. P. et ROCHE, G., **1986**. Météorologie générale. Troisième édition. Météo France, Ecole Nationale de Météorologie, 317 p.

TURC, L., 1954. Le bilan d'eau des sols. Relation entre la précipitation, l'évaporation et l'écoulement, Annales Agronomiques, 5, 491-569.

TURNER, J. P., 1996. Switches in subduction direction and the lateral termination of mountain belts : Pyrenees-Cantabrian transition, Spain, Journal of the Geological Society, London, 153, 563-571.

UHL, V. W. et SHARMA, G. K., 1978. Results of pumping tests in crystalline-rock aquifers, Ground Water, 16, 192-203.

UNTERWEGER, M. P., COURSEY, B. M., SCHIMA, F. J. et MANN, W. B., 1980. Preparation and calibration of the 1978 national-bureau-of-standards tritiated-water standards, International Journal of Applied Radiation and Isotopes, 31, 611-614.

VENCELIDES, Z., HRKAL, Z. et PRCHALOVA, **2010**. Determination of the natural background content of metals in ground waters of the Czech Republic, Applied Geochemistry, 25, 755-762.

VITTECOQ, B., GOURCY, L. et BARAN, N., 2007. Datation des eaux souterraines de Martinique par l'analyse conjointe des CFC, SF6 et tritium et relation avec les concentrations en nitrates et produits phytosanitaires, BRGM, RP-55844-FR, 50 p.

VIVILLE, D., LADOUCHE, B. et BARIAC, T., 2006. Isotope hydrological study of mean transit time in the granitic Strengbach catchment (Vosges massif, France) : application of the FlowPC model with modified input function, Hydrological Processes, 20, 1737-1751.

VOLK, C. M., ELKINS, J. W., FAHEY, D. W., DUTTON, G. S., GILLIGAN, J. M., LOEWENSTEIN, M., PODOLSKE, J. R., CHAN, K. R. et GUNSON, M. R., 1997. Evaluation of source gas lifetimes from stratospheric observations, Journal of Geophysical Reasearch-Atmospheres, 102, 25543-25564.

VON STORCH, H. et ZWIERS, F. W., 1995. Statistical analysis in climate research, Cambridge University press, Cambridge, 484 pp.

VÀSQUEZ, A., COSTOYA, M., PENA, R. M., GARCIA, S. et HERRERO, C., 2003. A rainwater quality monitoring network : a preliminary study of the composition of rainwater in Galicia (NW Spain), Chemosphere, 51, 375-386.

WAGGONER, P. E., 1990. Climate change and US water resources, Wiley, New York, 496 p.

WALKER, D., BJÖRN, G., STRÖM, A. et SELROSS, J.-O., 2001. Hydrogeologic studies for nuclear-waste disposal in Sweden, Hydrogeology Journal, 9, 419-431.

WANG, H. et HAN, G., 2011. Chemical composition of rainwater and anthropogenic influences in Chengdu, Southwest China, Atmospheric Research, 99, 190-196.

WANG, M., KULATILAKE, P. H. S. W., PANDA, B. B. et RUCKER, M. L., 2001. Groundwater resources evaluation case study via discrete fracture flow modeling, Engineering Geology, 62, 267-291.

WARNER, M. et WEISS, R., 1985. Solubilities of chlorofluorocarbons 11 and 12 in water and seawater, Deep-Sea Researches, 32, 1485-1497.

WARREN, J.E. et ROOT, J.P., 1963. The behaviour of naturally fractured reservoirs, Society of Petroleum Engineers Journal, 3, 245-255.

WEISS, R. et PRICE, R., 1980. Nitrous oxide solubility in water and seawater, Marine Chemistry, 8, 347-359.

WEISS, R. F., 1970. The solubility of nitrogen, oxygen, and argon in water and seawater, Deep-Sea Research, 17, 721-735.

WEISSMANN, G., ZHANG, Y., LABOLLE, E. et FOGG, G., 2002. Dispersion of groundwater age in an alluvial aquifer system, Water Resources Research, 38, 16-1-16-13.

WHITE, A., BULLEN, T., SCHULZ, M., BLUM, A., HUNTINGTON, T. et PETERS, N., 2001. Differential rates of feldspar weathering in granitic regoliths, Geochemica and Cosmochemica Acta, 65, 847-869.

WYNS, R., BALTASSAT, J., LACHASSAGNE, P., LEGCHENKO, A., VAIRON, J. et MATHIEU, F., 2004. Application of proton magnetic resonance soundings to groundwater reserve mapping in weathered basement rocks (Brittany, France), Bulletin de la société géologique de France, 1, 21-34.

YAMASOE, M. A., ARTAXO, P., MIGUEL, A. H. et ALLEN, A. G., 2000. Chemical composition of aerosol particles from direct emissions of vegetation fires in the Amazon Basin : water-soluble species and trace elements, Atmospheric Environment, 34, 1641-1653.

YAO, T., 2009. Hydrodynamisme dans les aquifères de socle cristallin et cristallophyllien du sud-ouest de la Côte d'Ivoire : cas du département de Soubré. Apports de la télédétection, de la géomorphologie et de l'hydrogéochimie, Thèse de doctorat, Conservatoire National des Arts et Métiers (France) et Université de Cocody (Côte d'Ivoire), 337 p.

ZHANG, M., WANG, S., WU, F. et YUAN, X. ZHANG, Y., 2007. Chemical compositions of wet precipitation and anthropogenic influences at a developing urban site in southeastern China, Atmospheric Environment, 84, 311-322.

ZORITA, E., HUGHES, J. P., LETTEMAIER, D. P. et VON STORCH, H., 1995. Stochastic characterization of regional circulation patterns for climate model diagnosis and estimation of local precipitation, Journal of Climate, 8, 1023-1042.

ZORITA, E. et VON STORCH, H., 1999. The Analog Method as a Simple Statistical Downscaling Technique : Comparison with More Complicated Methods, Journal of Climate, 12, 2474-2489.

ZUNCKEL, M., SAIZAR, C. et ZARAUZ, J., 2003. Rainwater composition in northeast Uruguay, Atmospheric Environment, 37, 1601-1611.

Références électroniques

http://www.recensement.insee.fr

http://www.cg64.fr

http://www.randonnee-en-pyrenees.com

http://www.routard.com

http://www.infoterre.brgm.fr

http://www.fao.org/nr/water/infores_databases_cropwat.html

http://www-2.cs.cmu.edu/~quake/triangle.html

Table des annexes

Annexe A : Courbes de tarage	288
Annexe B : Article soumis à Journal of Hydrology	292
Annexe C : Article publie dans applied geochemistry	326


Annexe A : courbes de tarages

Courbe de tarage du ruisseau Basseboure



Courbe de tarage du ruisseau Costaitsia



Débits en fonction de la hauteur d'eau dans le ruisseau Etchéandia (la présence régulière d'embâcles en aval de la station de mesure ne permet pas d'établir de courbe de tarage valide)



Courbe de tarage du ruisseau Heyderrea



Courbe de tarage du ruisseau Lattiaénéa



Courbe de tarage du ruisseau Louhossoha







Courbe de tarage du ruisseau Urrutia

Annexe B : article soumis à journal of hydrology

Characterization of the input signal to aquifers in the French Basque Country : emphasis on parameters influencing the chemical and isotopic composition of recharge waters

J. Jaunat¹, H. Celle-Jeanton^{2,3,4}, F. Huneau¹, A. Dupuy¹, P. Le Coustumer¹

¹Université de Bordeaux EA 4592 Géoressources & Environnement, , ENSEGID, 1 allée F. Daguin, F-33607 Pessac, France

²Clermont Université, Université Blaise Pascal, Laboratoire Magmas et Volcans, BP 10448, F-63038 Clermont-Ferrand, France

³CNRS, UMR 6524, LMV, F-63038 Clermont-Ferrand, France

⁴IRD, R 163, LMV, F-63038 Clermont-Ferrand, France

Abstract : A hydrochemical and isotopic survey of rainwater and groundwater has been carried out during almost two years on the Ursuya Mount in the northern Basque Country (southwestern France) with the aim of enhancing the understanding of the behaviour of this aquifer and more peculiarly the recharge mode of groundwater. The input signal of this aquifer is defined thanks to 112 rainwater samples. The computed meteoric water line ($\delta D =$ 7.3 δ^{18} O + 5.1 ; r = 0.96) is consistent with that defined in the European IAEA/WMO network stations. The weighted mean deuterium excess about 9.7 ‰ is really close to the value obtained for Atlantic precipitations and clearly demonstrates an oceanic major origin. The computations conducted on the chemical dataset show that the rainwater composition is controlled by four major factors : 1) a mixed source of anthropogenic pollution and crustal material; 2) a marine source; 3) an urban source; 4) an acid source. Further, the quantification of neutralizing potentials clearly revealed below cloud processes in which crustal and anthropogenic components are responsible for the neutralization of anions. Besides the major Atlantic origin of the recharge water, the chemical and isotopic content of the samples coupled with the corresponding air mass back trajectories revealed four major geographical origins of the components : 1) northwestern part of Atlantic Ocean and 2) Southwestern part of Atlantic Ocean. The oceanic influence in airmasses from these origins is highlighted by the stable isotopic content (weighted mean close to the Atlantic Ocean signature) and by the chemical concentrations dominated by sea salt elements. 3) Northern Europe with a continental influence shown by a light depletion on isotopic signal besides purely oceanic origin and a higher concentration of crustal and anthropogenic components. 4) Southeastern area (Southeastern Europe, Northern Africa and Mediterranean Sea) with an isotopic signature consistent with the Mediterranean one and a chemical composition clearly influenced by the industrial activities of this region. The dataset is confronted with the chemical and isotopic characteristics of groundwater in order to assess the recharge water signature of the aquifer of the Ursuya Mount. This monitoring clearly shows a preferential winter/autumn recharge by actual and local precipitations. An altitudinal gradient about -0.11

 $\infty \delta^{18}$ O /100 m is defined and both water-rock interactions and physicochemical processes fingerprint on the groundwater composition are characterised.

Keywords : Rainwater, Groundwater, Major ions, Stable isotopes, Air masses back trajectories, France.

1. Introduction

Due to rapid economic development and consequent increase in energy consumption, concerns about air pollution have emerged to be important social and scientific issues in developing countries (Kulshrestha et al., 2003). In addition the rainwater plays an important role in scavenging soluble components of natural origin, such as sea salt and soil dust or of anthropogenic origin such as gases and particles emitted from industries and vehicles from the atmosphere (Budhavant et al., 2011). Various factors can affect the chemical composition of precipitation at a given site, including type and distribution of aerosols sources, local emissions, regional scale components, transport and scavenging processes and meteorological conditions (Tang et al., 2005; Rocha et al., 2003; Sickles and Grimm, 2003; Arsene et al., 2007; Celle-Jeanton et al., 2009). Spatial and temporal variations in the isotopic composition of precipitation are due to the isotopic fractionation occurring during the evaporation of water and condensation during the advection of water vapor (Dansgaard, 1964). The isotopic composition of local precipitation is primarily controlled by regional scale processes, like the origin and the trajectory of the water vapour over the continents and the average rainout history of the air masses giving precipitation at a particular place (Rozanski et al., 1982, Celle-Jeanton, 2001; Millot et al., 2010). Other factors determine the isotopic content of a water sample, several of which are closely correlated to the temperature (Dansgaard, 1964; Rozanski et al., 1993): atmospheric moisture (enrichment in heavy isotopes with the decrease in atmospheric moisture), latitude (decrease in heavy isotopes with the increase in latitude), altitude effect (decrease in heavy isotopes with elevation), continental effect (decrease in heavy isotopes with the increase in the distance from the sea), and seasonal effect (summer rainfalls are enriched in heavy isotope compared to winter rainfalls ; Andreo et al., 2004). Then a combination of stable isotopes and chemistry could therefore be used to investigate the precipitation formation conditions and to monitor their changes as well as the impact on water resources, in relation to observed and expected climatic changes (Argiriou and Lykoudios, 2006).

Nevertheless, if rainwater composition is well documented all over the world (e.g. : Lynch et al., 2000 ; Lara et al., 2001 ; Baumgardner et al., 2002 ; Zunckel et al., 2003 ; Chandra-Mouli et al., 2005 ; Han and Liu, 2006 ; Willey et al., 2006 ; Arsene et al., 2007 ; Bàez et al., 2006 ; Xu et al., 2009 ; Das et al., 2010 ; Huang et al., 2010 ; Santos et al., 2011), only few studies have been performed in Southwestern Europe (e.g. Codina and Lorente, 1996 ; Hernàndez et al., 1996 ; Carratala and Bellot, 1998 ; Carratala et al., 1998 ; Negrel and Roy, 1998 ; Celle et al., 2000 ; Celle-Jeanton et al., 2001, 2009 ; Vasquez et al., 2003 ; Alcalà and Custidio, 2008 ; Bertrand et al, 2008 ; Ladouche et al., 2009 ; Santos et al., 2011) and even less use a combination of chemical and isotopic tools (Celle, 2000 ; Andreo et al., 2004 ; Petelet-Giraud

et al., 2005 ; Argiriou and Lykoudios, 2006 ; Grassa et al., 2006 ; Millot et al., 2010) none of them have ever been conducted in the Pyrenees Region.

The present study aims at defining precisely the input signal to the aquifer of the Ursuya massif, main water supply of the northern Basque Country. Chemical and stable isotopic analyses have been conducted, between February 2010 and November 2011, on rainwater sampled on a daily basis. This constitutes the best dataset on precipitation chemical and isotopic content ever acquired in this region, what can be interpreted in terms of atmospheric patterns and sources of chemical elements in rainwater.

In addition, a monitoring of groundwater is also used in this study to validate and clarify the observed content of recharge water. Thus, the rainwater content discussed in this paper will be confronted to the chemical and isotopic parameters observed in groundwater from the Ursuya aquifer which is exclusively recharged by precipitation. Indeed, groundwater from 14 springs and 4 boreholes has been sampled on a monthly base during the two years of the survey. This groundwater dataset allows the characterization of the recharge parameters of this aquifer. Furthermore, the comparison of the water composition before and after the circulation into the aquifer will help deducing and quantifying the water-rock interactions together with the physicochemical processes occurring in the reservoir.

2. General settings

2.1. Localization and land uses

Located in the northern Basque Country (southwestern France), 25 km from the city of Bayonne and from the Atlantic coast, the Ursuya Massif is the first relief of the Pyrenees from the West. The Ursuya Mount is composed of two metamorphic formations distributed between 40 m ASL (Nive River bed) and 678 m ASL (top of the Ursuya Massif, 1°20'W; 43°20'N, Figure 1). Limestone formations can also largely be founded close to the massif, particularly in the Pyrenees. Some lentils of metamorphic limestone have also been observed by Boissonnas et al. (1974), Armand at al. (1995) and Armand and Triscos (1999) in the Ursuya Massif but their localisation is poorly defined.

The main activity is agriculture with the presence of many grazing areas and a few fields of corn and peppers. Pesticides use appears to be rare. Some limestone quarries exist in the vicinity of the massif. In addition, important factories are present South of the sampling site, mainly along the Spanish border. Finally, the Basque Country is exposed to an important demographic growth since last decades which leads to the presence of numerous construction sites and also an increase in the road traffic affected by a major transit line of trucks circulating from all over Europe towards Spain.

2.2. Climatology

The climate of the study area is temperate oceanic. The mean annual precipitation amount in the Biarritz-Anglet station, 25 km from the study area ($-1^{\circ}31'54''$; $43^{\circ}28'18''$; 69 m ASL) is about 1510 mm.y⁻¹ (calculated from data collected since 1964, Meteo France). This mean is of 1420 mm.y⁻¹ by using the data collected during the study period from August 2009 to September 2011. The estimated effective rainfall, using a Penman-Monteith type computation, is of 653 mm.y⁻¹. The mean annual precipitation and estimated effective rainfall on the Ursuya Mount (600 m ASL, Figure 1), calculated from the daily measurements between August 2009 and September 2011, are of 1440 mm.y⁻¹ and 624 mm.y⁻¹ respectively. The effective rainfall corresponds to 43 % of the total precipitation which is similar to Meteo France data at the Biarritz-Anglet station (43 % between 1964 and 2010 and 45 % between 2009 and 2011).

3. Materials and methods

3.1 Sample collection

Precipitation has been sampled on the Ursuya Massif from February 2010 to November 2011. An automatic rain gauge sampler (Eigenbrodt Automatic Precipitation Sampler NSA 181) has been deployed in the centre of study area, close to the top of the Ursuya Mount (1°20'02''W; $43^{\circ}20'52''N$; 570 m ASL; Figure 1). A precipitation sensor enables the cover device to open at the start of each precipitation episode. When precipitation has ceased, a signal from the precipitation sensor leads to the closure of the collection funnel. The dry depositions are not collected with this system. Eight polyethylene sample bottles are contained in the rain gauge and the device automatically changes of bottle every two day. The eight sample bottles were kept at 4°C in the rain gauge until the following sample retrieving. During the two hydrological cycles of sampling, 125 daily samples were collected at the Ursuya Mount station. Samples corresponding to rainfall events less than 2 mm were rejected.

Concerning groundwater, 43 boreholes have been drilled over the Ursuya massif area between 1994 and 2000 in order to respond to the increasing water needs in the northwestern Basque Country. Among these 43 boreholes, 34 are dry or too unproductive to allow viable sustainable exploitation. Currently, 9 boreholes still exist, 4 are unexploited, and 5 are operated. In addition to these boreholes, 101 springs are captured among more than 190 registered discharge points. Since summer 2009, the four unexploited boreholes and 14 springs were selected for the monitoring (Figure 1), providing an adequate spatial coverage.

3.2 Analyses and measurement accuracy

For the major elements analysis, precipitation and groundwater samples were filtered through 0.45 μ m membranes and stored in polyethylene bottles. For stable isotope analyses, the samples were collected in amber glass bottles. Sampling in the four unexploited boreholes was carried out with a polyethylene ecobailer sampler. They were stored at 4°C until the analyses.

Electrical Conductivity (EC), Temperature (T) and pH were measured directly in the field using a WTW 3310 multiparameter. The HCO₃⁻ concentration was also determined in the field using a HACH digital titrimeter. Every 15 days, the bottles of two days rainfall were changed and physico-chemical parameters were measured at the laboratory.

All the analyses were conducted at the laboratory of the EA 4592 Géoressources & Environnement group at the University of Bordeaux. The stable isotopes content analyses were performed using a liquid-water stable isotope analyser DLT-100 Los Gatos Research according to the analytical scheme recommended by the IAEA (Aggarwal et al., 2009; Penna et al., 2010). The quality of the isotopic analysis was checked using a standard deviation condition up to 1 for δD and up to 0.1 for $\delta^{18}O$ for six analyses of the same sample. The major ions concentrations were determined by high-performance liquid chromatography Dionex 320 chromatograph (IonPac CS16) for the cations and Dionex 1100 chromatograph (IonPac AS11-HC) for the anions. The data quality of the major ions concentrations in precipitation was checked by examining both the ionic balance of each sample and the linear correlation between the total anionic concentrations and the corresponding total cationic concentration of the samples (Figure 2). The quality of the chemical analysis in groundwater was checked using an electro neutrality condition up to 10 % given the low mineralisation of the studied waters. The resulting high linear correlation coefficient (r = 0.84), confirms the good quality of the measurements during this study. The slope of the regression line ($\Sigma C^+ = 1.02 \Sigma A^-$) is really close to the unity, indicating that all anions and cations were analyzed. The isotopic mean weighted by height of precipitation of sampled rain is displayed in Table 1 as well as the major ions concentrations.

4. Results and discussion

4.1 Origin of air masses

4.1.1. Local meteoric water line

The stable isotopic content for individual rain event varies respectively between -0.04 δ^{18} O‰, 8.08 δ D‰ (registered on 2010, the 29th of May) and -14.38 δ^{18} O‰, -97.91 δ D‰ (registered on 2010, the 30th of November). The range of the monthly weighted mean is between -2.08 ± 0.56 ‰ (July 2010) and -9.57 ± 2.94 ‰ (December 2010) for δ^{18} O with a global weighted mean about -5.71 ± 3.0 ‰. For δ D, the monthly weighted means varies between -7.05 ± 3.44 ‰ (July 2010) and -61.46 ± 13.58 ‰ (December 2010) with a global weighted mean about - 35.31 ± 22.8 ‰. These data are in perfect agreement with those of Petelet-Giraud et al. (2005), Millot et al. (2010) and Jiráková et al. (2009 and 2011) for southwestern France. The signature along the Atlantic coast is relatively homogeneous with δ^{18} O and δ D values around -5 ‰ and -30 ‰ respectively. These values are characteristics of the first condensates of water (Gat et al., 2003) and can be partially related to the contribution of seawater vapour to coastal precipitation. The distance between the Atlantic coast and the monitored area being about 25 km, the observed δ^{18} O and δ D values are fully concordant with the geographic position of the Ursuya Massif and clearly demonstrate a major Atlantic origin for the water.

For most of the natural waters, δ^{18} O and δ D values are positively correlated due to the fractionation processes occurring in the atmospheric part of the water cycle. The Rayleigh distillation process exerts the dominant control on this relationship (Craig, 1961 ; Dansgaard, 1964 ; Gat and Carmi, 1970). δ^{18} O and δ D data in rainwater typically plot along the global meteoric water line (GMWL) defined as $\delta D = 8 \delta^{18}O + 10$ (Craig, 1961) but the slope and the y-intercept values may be site-specific (Rozanski et al., 1993 ; Gonfiantini, 1996) and may refer to the local effect of climate and topography (El-Asrag et al., 2003). Indeed, the GMWL is the average of multiple local meteoric water lines (LMWL). Each one is controlled by climatic factors such as surface air temperature, air humidity, wind speed, origin and trajectory of air masses and the evaporation during falling of water drops (Celle, 2000). The regression line computed with the whole stable isotope dataset from the precipitation of the Ursuya Massif (LMWL ; Figure 3) is :

 $\delta D = 7.3 \ \delta^{18} O + 5.1 \ (r = 0.96).$

According to Rozanski et al. (1982), this δ^{18} O vs δ D relation is consistent with the observed relations in European IAEA/WMO network stations.

The deuterium excess (d = δ D-8 δ ¹⁸O) was defined by Dansgaard (1964) and is used as a measure for non-equilibrium conditions during source water evaporation (Breitenbach et al., 2010). The weighted mean deuterium excess calculated is about 9.7 ± 6.1 ‰, which is really close to the value obtained for Atlantic precipitations (d = 10 ‰, Craig, 1961). The slightly lower d-excess observed in the rainwater of the Ursuya massif can be explained by both a phenomena of evaporation and the origins of air masses that lead to precipitation in this region.

4.1.2. Back trajectories

The isotopic content of rainwater strongly depends on the origin and on the travel of the air masses from which it originates. Air mass back trajectories are calculated for each two days sample by using the NOAA/ARL Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory Version 4 (HYSPLIT4) model (Draxler and Rolph 2012; Rolph 2012). The trajectories are generated for a 72 hours hind-cast starting at 500 m, 1500 m and 3000 m ASL calculated every 6 h for each rain event. The trajectories can be segregated into 4 main transport patterns by taking into account the regions crossed during the previous 72 h. Typical examples of these trajectories are given in Table 1 : 1) NWA : air masses coming from the northwestern part of Atlantic Ocean and which never cross continents before the sampling zone ; most of the rainfall during the study comes from this origin (37.5 % of the rain samples) ; 2) SWA : air masses coming from the southwestern part of Atlantic Ocean but unlike the previous group, these air masses generally pass over the Iberian Peninsula before reaching the sampling zone ; a total of 35.7 % of the samples, for a total height of 651 mm, have been collected during these meteorological situations ;

3) NE : these air masses trajectories represent air moving over Northern Europe (France, Germany, United Kingdom, and even Sweden and Finland), North Sea or English Channel during the 72 hours before sampling ; among the total rain events, 20.5 % were collected during these air masses trajectories for a total height of precipitation of 391 mm ; 4) SE : this trajectory represents 5.9 % (114 mm) of the total rainfall for the period, with air masses coming southeasterly to the sampling zone, air masses then pass over the Mediterranean Sea, eastern Spain and sometimes North Africa or Southeastern Europe.

The weighted mean isotopic content resulting from these major air masses are given in Table 1. Figure 5 shows the δ^{18} O vs δ D relation and the corresponding regression lines of rainwater from these different trajectories.

<u>Northwestern Atlantic</u>: the calculated weighted means of $\delta^{18}O$ and δD of rainwater from NWA origin are about -5.6 ± 3.1 ‰ and -33.8 ± 23.1 ‰ respectively. These values can be linked to the signature of the Atlantic Ocean (Petelet-Giraud et al., 2005; Craig, 1961). The relation between $\delta^{18}O$ and δD is also typical of an Atlantic origin of precipitation ($\delta D = 7.2$ $\delta^{18}O + 7.2$; r = 0.98).

<u>Southwestern Atlantic</u>: the weighted mean δ^{18} O and δ D in rainwater from SWA origin are also in agreement with the Atlantic influence with values of -5.7 ± 3.1 ‰ and -36.7 ± 24.8 ‰, respectively. The low depletion besides the NWA origin can be explained by the continental effect. The air masses coming from Southwestern Atlantic have crossed the Iberian Peninsula before reaching the sampling zone. The correlation between δ^{18} O and δ D is close to that of the NWA sector (δ D = 7.6 δ^{18} O + 6.4 ; r = 0.97) and characterizes the Atlantic origin.

Northern Europe : the weighted mean of δ^{18} O and δ D observed in rainwater from a Northern Europe origin are about -6.0 ± 2.8 ‰ and -36.3 ± 18.8 ‰, respectively. These values are also a bit depleted besides those of NWA sector. It has been demonstrated that continental effect can affect the stable isotope content of water of air masses crossing the continents. Because the air masses considered in this sector have passed over some part of Northern Europe, this phenomenon can be involved in the observed depletion. The latitudinal effect (Rozanski et al., 1993) can also explain this depletion. The major global source of water vapour is the Tropical Ocean ; approximately 65 % of the global evaporation flux over the oceans originates between 30°S and 30°N (Peixoto and Oort, 1983; Rosanski et al., 1993). Poleward transport of this vapour is connected with gradual rain-out and the resulting reduction of the total precipitable water in the atmosphere. This process is modelled by the Rayleigh condensation approach (Clark and Fritz, 1997; Celle-Jeanton et al., 2004). The decrease of the temperature of the lower atmosphere over mid and high latitudes during winter months results also in a substantial reduction of the total precipitable water in the atmosphere. This leads to a larger effective rain-out of the air masses resulting in a greater depletion of the heavy isotopes content of the precipitation from this sector. The meteoric line of precipitation from this sector is $\delta D = 6.2 \delta^{18}O + 0.1$ (r = 0.94; Figure 5). The very low intercept is explained by the predominance of these air masses in summer. 70 % of the rain event derived from Northern European air masses takes place between May and July.

It is well known that the intercept of meteoric water lines is seasonally shifted from higher values in winter to lower values in summer (Rozanski et al., 1993). This phenomenon is attributed to the correlation between the d-excess and the moisture deficit of the oceanic air masses. The intercept value of 10 ‰ of the WMWL corresponds to an average relative humidity value of 81 % (Jouzel, 1986).

<u>Southeastern</u>: the weighted mean value of δ^{18} O in rain from SE is about -5.5 ± 2.7 ‰ and δ D is about -34.7 ± 22.8 ‰. These data are in perfect agreement with those obtained by Celle (2000) and Celle-Jeanton et al. (2001) at the station of Avignon (Southern France), clearly under Mediterranean influence. The established meteoric water line (δ D = 7.6 δ^{18} O + 5.1 ; r = 0.95 ; Figure 5) is also close to the regression line obtained at the station of Avignon (δ D = 7.6 δ^{18} O + 6.4 ; Celle et al., 2000). Even if it is difficult to conclude with the low number of rain event from the SE sector (7 events), these data clearly indicates a Mediterranean contribution in the isotope content of air masses from this origin.

4.1.3. Annual variations

The annual isotopic content of rainwater is the result of the variable isotopic content observed during the hydrologic cycle and shown on Figure 6. According to Rozanski et al. (1982 and 1993) or Gonfiantini (1996), the positive correlation between ²H and ¹⁸O content in monthly precipitation and the local surface air temperature (seasonal temperature effect) can be strong. Indeed, the condensation temperature of droplets is one of the most important factors controlling the stable isotopic composition of rainwater (Dansgaard, 1964). In contrast, a negative correlation between d-excess and the surface air temperature is observed in European stations. Rosanski et al. (1982 and 1993) suggests that this apparent seasonality of d-excess values in Europe may be generated by two effects : (1) the lower relative humidity of air (normalized to sea surface temperature) in the source region in winter leads to enhanced kinetic fractionation during the evaporation process and, consequently, causes a higher d-excess signature of the vapour ; (2) the lower relative humidity over the continent in summer facilitates the partial evaporation of raindrops below the cloud base. This, in turn will lead to a reduction of the d-excess values of summer rains. This seasonal effect is well observable on Figure 6.

The major Atlantic origin of the rainwater of Ursuya Massif highlighted by the isotopic signature has to be linked with its chemical content to corroborate this oceanic source of water vapour. Moreover, it has been demonstrated that Atlantic Ocean is not the only origin of the air masses crossing this part of the Basque country. The four different origins not only affect the isotopic signal of precipitation, but the chemical content of rainwater is also impacted by these different air mass back trajectories (the weighted mean value of major ionic rain components are given in Table 1).

4.2. Origin of chemical elements in recharge water

4.2.1. Non Marine influence

While the Atlantic Ocean has been defined as the major origin of the water vapour, the air masses will be influenced by other sources of components during their movement along the continent. For the assessment of the non marine contribution in the chemical ionic composition of rainwater, non sea salt (nss) and sea salt (ss) fraction of particular ionic component is calculated, by assuming Na^+ as a reference element for sea source (e.g. Kulshrestha et al., 2003; Das et al., 2005; Baez et al., 2006; Sakihama et al., 2008; Salve et al., 2008; Ladouche et al., 2009; Gobre, 2010; Satyanarayana et al, 2010; Wang and Han, 2011). The sea-salt (ss) fractions of any particular component are given by :

 $ss_X = (Na_{rain}) * (X/Na)_{seawater}$

Where $(X/Na)_{seawater}$ is the standard ratio of concentration of element X and Na⁺ obtained from sea water composition (Table 2, Michard, 1989). Non sea salt (nss) fractions for components X have been computed as :

$nss_X = X_{rain} - ss_X,$

Where X_{rain} is the concentration of the component X in rain. When $nss_X = 0$, therefore $ss_X = X_{rain}$. Such a result means that the component is only of a marine origin. The opposite result ($ss_X = 0$) is never observed because the sea salt contribution of NO₃⁻, NO₂⁻, PO₄³⁻ and NH₄⁺ were not calculated. These elements are not significant components of sea salt and anthropogenic sources are responsible for nearly all of them (Huang et al., 2010).

The enrichment factors (EF) are also used to identify sources of elements in precipitation (e.g., Keene et al., 1986; Safai et al., 2004; Zhang et al., 2007). The fractional contribution of sea salt to an ion is equal to the reciprocal of its EF. Table 2 shows the results of these computations between February 2010 and November 2011. If the EF is superior to 1, the enrichment indicates the existence of other sources than the marine one. If the EF is inferior to 1, the depletion indicates a loss of ions (Celle, 2000). In Table 2, SO_4^{2-} , K^+ and Ca^{2+} have EF values far superior than 1. This indicates that the marine source contributes poorly to their concentrations in rainwater. The non-marine source of SO_4^{2-} is attributed to anthropogenic pollution. In fact, the sulphur content in crustal material is negligible compared to in rainwater (Taylor, 1964). K^+ in the atmosphere can originate from both coarse mineral particles (Taylor, 1964) and fine biomass burning particles. The non-marine sources of Ca^{2+} are associated with both crustal and anthropogenic sources. At last, Mg²⁺ has an EF value of 6.4, which correspond to only 33.5 % of non marine origin. The non-marine sources of ${\rm Mg}^{2+}$ are attributed to crustal materials and construction activities. The EF value of Cl⁻ is really close to 1 (1.6), with 93.7 % of marine origin. Sources of the 6.3 % of non-marine origin are linked to coal burning and biomass burning (Lightowlers and Cape, 1988; Yamasoe et al., 2000; Huang et al., 2010).

4.2.2. Sources of elements

To clarify the different sources of chemical ions in the studied precipitation, Principal Component Analyses (PCA) are performed. PCA is an useful method to identify the sources of species in rainwater (e.g. Plaisance et al., 1997; Hernandez et al., 1996 or more recently Bertrand et al., 2008; Celle-Jeanton et al., 2009; Huang et al., 2010; Budhavant et al., 2011; Tiwari et al., 2012). According to Plaisance et al. (1997), a multivariate statistical analysis can be applied to highlight the relationship among the variables in the dataset : main chemical forms in the precipitation are distinguished and their link to identifiable sources types can be estimated. The factor analysis produces a simplified representation of the data which permits the identification of the nature of the factors by computing the correlation coefficients between variables and factors (Celle-Jeanton et al., 2009). R-mode factor analysis with varimax rotation (Hopke, 1985 in Plaisance et al., 1997) is then performed on the chemical concentrations dataset. Table 3 shows the varimax rotated principal component patterns.

The four major factors with an eigenvalue superior to one accounted for 76.6% of the total variance. Factor loadings that exceed 0.5 are considered as significant. The first factor explains 34.7% of the total variance with high loadings of HCO₃⁻, NO₂⁻, PO₄³⁻, NH₄⁺, K⁺, and Ca²⁺. This factor should be regarded as a mixed source of anthropogenic pollution (fertilizers, biomass burning or waste incineration ; Vasquez et al., 2003) and crustal material (indicated by Ca²⁺ and HCO₃⁻, Huang et al., 2010). Crustal materials can be linked to a local incorporation of terrestrial elements below the cloud base or a long-range transport of dusts. The second factor accounts for 21.6 % of the total variance, loadings of Cl⁻, Na⁺ and Mg²⁺ clearly denote the marine source and the incorporation of sea-salts into clouds during their formation and movement (Celle-Jeanton et al., 2009). The third factor accounting for 11.3 % of the total variance and shows high loadings of SO₄²⁻ and NO₃⁻ imply an urban source. Nitrate and Sulphate mainly results from the combustion of fossil fuels and industrial effects. Factor four, including merely one variable (H⁺), accounts for only 9.1 % of the total variance. It is considered as an acid source (Plaisance et al., 1997).

Thus, the chemical composition of rainwater in the Ursuya Massif region is mainly controlled by four major sources : despite a clear Atlantic influence shown by the marine source, crustal and anthropogenic ones are of prominent importance in this composition ; the acidity is the fourth influential factor and its low value can be explained by neutralizing processes occurring in the clouds.

4.2.3. Acidity neutralization

Over large areas of Northern hemisphere, the acidity of rain is controlled mainly by the strong acids like $H_2SO_4^{2-}$ and HNO_3^{-} (Overrein et al., 1981 in Budhavant et al., 2011). Considering both SO_4^{2-} and NO_3^{-} as the main acidifying components of rain and in order to know the relative contribution of these elements to the acidity, the $([NO_3^{-}]) / ([NO_3^{-}] + [nssSO_4^{2-}])$ ratio was calculated. Figure 7 shows the mean value and the standard deviation of the calculated ratios. The average value is 0.58 showing that about 58 % of the acidity of rain is due to NO_3^{-} and 42 % is due to SO_4^{2-} . This result implies a slightly greater influence of industrial effect than the traffic one on the acidity of rainwater (Budhavant et al., 2011).

The hydrogen ion concentration $[H^+]$, calculated from pH measurements, reflects the acidity of precipitation after neutralization by the atmospheric bases (Galloway et al., 1987). Information on the magnitude of the neutralization can then be obtained from the $[H^+] /$ $([NO_3^-] + [nssSO_4^{2^-}])$ equivalent ratio which is named Fractional Acidity (FA ; e.g. Negrel and Roy, 1998 ; Balasubramanian et al., 2001; Kulshrestha et al., 2008 ; Das et al., 2005 ; Jawad Al Obaidy and Joshi, 2006). This ratio is expected to be close to 1 if the acidity caused by $H_2SO_4^{2^-}$ and HNO_3^- is not neutralized. If it is close to zero, the FA indicates an extensive neutralization. An average FA about 0.07 (Figure 7) was estimated, which suggests the neutralization of 99.89% of the acidity on an annual basis. This result is in perfect agreement with the influence of the acid source observed.

The difference between the Acidic Potential (AP) and the Alkaline or Neutralization Potential (NP) allows defining the type of elements implied in the neutralization process (Budhavant et al., 2011). AP is the sum of NO_3^- and $nssSO_4^{2-}$ concentrations and NP is the sum of NH_4^+ , $nssCa^{2+}$, $nssMg^{2+}$, and $nssK^+$ concentrations. The average AP, NP and AP/NP ratios are given in Figure 7. When the ratio is less than one, it indicates that the NP dominates the AP and the lesser the ratio AP/NP, the strongest the neutralization. The average value is 0.37, indicating a dominance of alkaline constituents preventing the acidification of the rainwater. The large neutralization of the acidity can be due to the transported alkaline dust particles and other alkaline chemical constituents with a buffering capacity in the rainwater (Arsene et al., 2007). In order to assess which element is involved in the neutralization process, the Neutralization Factors (NF) was used. The neutralization of precipitation by crustal and anthropogenic components is calculated by the following equation (Possanzini et al., 1988)

$$NF(X) = \frac{X}{(nss \, sO_4^2 + NO_3^2)}$$

Where $X = nssCa^{2+}$, NH_4^+ , $nssMg^{2+}$ and $nssK^+$ concentrations in $\mu eq.L^{-1}$. Figure 7 gives the average value of neutralization factor for $nssCa^{2+}$, NH_4^+ , $nssMg^{2+}$ and $nssK^+$ and the corresponding standard deviations. The contribution of $nssCa^{2+}$, $nssMg^{2+}$, NH_4^+ and $nssK^+$ are about 38.1 %, 20.4 %, 25.9 %, and 15.6 % respectively, revealing below cloud processes in which these components are responsible for the neutralization of the anions (Gobre et al., 2010 ; Satyanarayana et al., 2010). The $nssCa^{2+}$ and NH_4^+ serve as the major neutralizing component for the rainwater acidity of the Massif of Ursuya with a contribution of 64 %.

4.2.4. Geographical origin of elements

The weighted mean concentrations of major components during prevailing air masses are given in Table 1. The sea salt and non sea salt fractions have been calculated with the same approach than described before.

Northwester Atlantic origin : as expected, the chemical content of rainfalls coming from sector NWA is dominated by Na⁺ (140.1 μ eq.I⁻¹) and ssCl⁻ (129.1 μ eq.I⁻¹). It clearly demonstrates the marine origin of the air masses in this sector. However, crustal component strongly influence the chemical composition of rainwater coming from northwestern Atlantic with a weighted mean of HCO₃⁻ about 44.9 μ eq.I⁻¹ and a weighted mean of nssCa²⁺ about 54.1 μ eq.I⁻¹. This observation is in good agreement with the study of Rahn et al. (1982), who show that aged maritime air masses often contain a high proportion of submicron crustal and anthropogenic particles due to their long atmospheric residence times. The high content of calcium in rainfall was also shown, for rain events of Atlantic origin by Beysens et al. (2006) and Bertrand et al. (2008) who indicated that the source of high concentration in calcium can be due to the removal of soils particles but also originates from agriculture activities.

<u>Southwestern Atlantic origin</u>: the rainwater composition coming from the sector SWA is close to that of the NWA sector, with a light influence of the Iberian Peninsula. The marine origin strongly influences the SWA rainwater content with high ssCl⁻ and Na⁺ concentrations (91.4 μ eq.l⁻¹ and 114.5 μ eq.l⁻¹ respectively). Though, the crossing through Portugal and Spain seems to influence the rainwater composition. In fact, the crustal components are in higher concentration than for the NWA sector (58.9 μ eq.l⁻¹ and 88.8 μ eq.l⁻¹ for HCO3⁻ and nssCa²⁺ respectively). Anthropogenic component (NO₃⁻, nssSO₄²⁻, NH₄⁺, nssK⁺) are also not negligible for the rainwater coming from SWA as from NWA and represent the least influential factor for these two trajectories. Comparable results for these two sectors have been observed for similar origins by Santos et al. (2011).

<u>Northern Europe origin</u>: the precipitations from air masses coming from Northern Europe show strongly different composition. ssCl⁻ and Na⁺ from marine origin are still the predominant component but with smaller quantity than in the rainwater from the NWA and SWA origin (87.0 μ eq.l⁻¹ and 97.6 μ eq.l⁻¹ respectively). The biggest difference is in the proportion of anthropogenic components. Indeed, NO₃⁻ (57 μ eq.l⁻¹), NH₄⁺ (54.1 μ eq.l⁻¹) and nssSO₄²⁻ (27.8 μ eq.l⁻¹) concentrations are in an equivalent range than that of the crustal components (HCO3⁻ = 37.1 μ eq.l⁻¹ and nssCa²⁺ = 60.1 μ eq.l⁻¹). In 1997, Plaisance et al. showed the existence of significant sources of NO₂ and SO₂ in the industrial and urban regions of Northern and Central Europe, pointing out the importance of anthropogenic emissions. Bertrand et al. (2008) and Celle-Jeanton et al. (2009) have observed the same crustal and anthropogenic influences in the rainwater composition coming from the same sector. Moreover, the measured nssCa²⁺ concentration is the highest observed compared to the four other sectors. This is probably due to removal of Ca-rich dust. Such influence was highlighted by Sanusi et al. (1996) in northern France who particularly pointed out the role of loess that can be easily removed from the Alsatian basin. <u>Southeastern origin</u>: the precipitation due to air masses coming from the SE sector do not show any predominance of one single source of elements : concentrations of HCO_3^- , $nssCa^{2+}$, $ssCl^-$, Na^+ , $nssK^+$ range between 50 µeq.l⁻¹ and 60 µeq.l⁻¹ and concentrations of NO_3^- , $nssSO_4^{2-}$ and NH_4^+ are around 30 µeq.l⁻¹. The calcium and bicarbonate content could be attributed to the dissolution of Saharan calcareous dust originating from the Mediterranean region (Loÿe-Pilot and Morelli, 1988; Plaisance et al., 1997; Avila et al., 1997; Bertrand et al., 2008; Celle-Jeanton et al., 2009). The precipitation from this sector presents the highest concentrations in anthropogenic components which can be attributed to the presence of industrial zones in Southern France (Marseille region) and in the Italian Peninsula (Celle-Jeanton et al., 2009).

4.3. Groundwater response to the input signal

The chemical and isotopic parameters of recharge water discussed earlier are the primary determinants to the groundwater composition of the northern Basque Country region. It has been demonstrated that the residence time of groundwater in the Ursuya aquifer range between a few years to more than fifty years (Jaunat et al., 2012). Therefore, the chemical and isotopic characteristics of groundwater are the results of a mixing of several decades of recharge waters. This dataset can then bring some precisions and comforts the results discussed on the two years data acquired on rainwater. All the physico-chemical and isotopic results are displayed in table 4.

4.3.1. Evidence of groundwater recharge by actual rainfall

The mean δ^{18} O measured in groundwater ranges between -5.92 ± 0.18 ‰ (spring La7l) and - 6.59 ± 0.16 % (Mac Spring). For D, the maximum δ observed is of -34.71 ± 0.74 % in the La7l and the minimum is of -38.37 ± 0.99 % in the Sc2 spring. The temporal variation is very low in all monitored groundwater ; no seasonal variation or effect of individual rainfall event is observed. The stability of the isotopic signal is also demonstrated by the very low $\delta^{18}O$ and δD standard deviation calculated from the dataset. The maximum standard deviation for $\delta^{18}O$ is observed in the Sc2 spring with a value about 0.25 % and for δD is observed in the Sc4 spring with a value about 1.32 ‰ (Table 4). This constant stable isotopic signature indicates a thoroughly mixed groundwater system that is not subject to δ^{18} O or δ D alteration by individual rain events (Abott et al., 2000). The low temporal variations observed are due to the hydrological features of the aquifer, which causes the water bodies to be relatively homogeneous and not influenced by the seasonal variation of the meteoric recharge (Mandal et al., 2011). This well-mixed system confirms the relatively high residence time described in Jaunat et al. 2012. Indeed, the smoothing of the isotopic signal from precipitation in the springs discharge and in the boreholes is characteristic of mixing of recharge water with a large volume of stored groundwater from previous years (Viville et al., 2006). The relation between δD and $\delta^{18}O$ in groundwater is shown in Figure 8. The mean point as the individual ones, plots very close to the GMWL and the LMWL indicating a recharge from an actual and local meteoric source (Prasanna et al., 2007; Bertrand, 2009) and that groundwater has not been isotopically modified during or since the recharge (Abott et al., 2000).

4.3.2. Evidence of winter/autumn preferential recharge

The mean of the whole groundwater stable isotopic dataset is of -36.8 ± 0.61 ‰ for δD and of -6.3 ± 0.14 ‰ for $\delta^{18}O$. These values are slightly depleted compared with the weighted mean of the precipitation ($\delta D = -35.31$ ‰ and $\delta^{18}O = -5.71$ ‰). The temporal variations of isotopic content in the precipitation (Figure 6) have clearly shown that the winter and autumn precipitations are more depleted. Furthermore, the meteorological monitoring conducted over the Ursuya Mount (Figure 1) since summer 2009 shows that the mean infiltration is about 457 mm between October and March and about 167 mm between April and September (calculated with a Penman-Monteith computation for the two surveyed hydrological cycles). All these data are in agreement with a highest proportion of recharge in winter and autumn than in summer and spring (Katz et al., 1995 ; Viville at al., 2006 ; Mandall et al., 2011).

4.3.3. Altitude effect

As the temporal variations, the spatial ones are low. However, despite these small deviations, a correlation exists between the stable isotopic content and the discharge elevation of springs. Figure 9 shows this relation : the elevated springs show enriched $\delta^{18}O$ and δD compare to those in low elevation. The relation between ¹⁸O content and altitude is described by $\delta^{18}O = -0.0011 \text{ Z} - 5.96 \text{ (r} = 0.86)$. An altitudinal gradient of -0.11 ‰ /100 m can then be established.

4.4.4. Modification of input signal during infiltration

In order to compare the chemical properties of groundwater and recharge water, background concentrations of the effective infiltration have been calculated for each chemical parameter with the following formulas (Appelo and Postma, 1994; Bertrand et al., 2009):

$$EF = \frac{H_{precipitation}}{H_{precipitation} - H_{evapotranspiration}}$$
$$[X]_{infiltration} = EF \times [X]_{precipitation}$$

Where *EF* is the enrichment factor, $H_{precipitation}$ is the annual height of precipitation, $H_{evapotranspiration}$ is the annual evapotranspiration, $[X]_{infiltration}$ and $[X]_{precipitation}$, respectively the concentration of the element X in the infiltration and in the total precipitation. Results of these computations, with an EF calculated about 2.31, are shown on Figure 10. The infiltration waters show concentrations about 0.28 meq.L⁻¹ for Na⁺, 0.26 meq.L⁻¹ for Cl⁻, 0.11 meq.L⁻¹ for Mg²⁺ or 0.05 meq.L⁻¹ for NO₃⁻. The groundwater presents EC ranging from 46 μ S.cm⁻¹ in the Mac Spring water and 374 μ S.cm⁻¹ in the borehole Osp9, with a mean value about 104.7 μ S.cm⁻¹. The high mineralization of the boreholes Ip2 and Ospi9 is caused by the presence of metamorphic limestone observed during drilling (Armand at al., 1995 ; Triscos and Armand, 1997 ; Triscos and Armand, 1999). In the other samples, the mineralization is consistent with the development of a weathering process which may affect the gneissic formations but also with the residence time of the water in the aquifer (Jaunat et al., 2012).

Some geochemical processes affecting the chemical composition of the sampled groundwater have also been highlighted. Figure 10 shows the relation between groundwater and the effective rainwater chemical content. The Na⁺ is considered as stable in rainwater from evaporation to precipitation, and from an exclusive marine origin. Though, Figure 10 shows that some sources of sodium exist in the groundwater reservoir. Indeed, even if the majority of the sampled groundwater is in agreement with the mean value observed in the recharge water, six samples shows larger Na⁺ concentrations (springs Sc4, Ip6, La7l, and boreholes Ip2, Osp9 and Pe4). The residence times of these samples are in the higher range of those observed in the groundwater from the Ursuya Massif (between 20 to 42 years ; Jaunat et al., 2012). This Na⁺ enrichment besides the recharge water concentrations can then be attributed to silicate weathering (Negrel et al., 2007), facilitated by a high duration of water-rock interaction processes. The Mg^{2+} concentrations in groundwater are greater than in the recharge water. Sources of magnesium can be found in the minerals from gneiss and paragneiss of the Ursuya massif like biotites, amphiboles and cordierites that are very abundant in this area (Boissonnas et al., 1974 ; James et al., 2009). Mg^{2+} enrichment is then also related to water-rock interactions duration. However, for Cl⁻ and NO₃⁻, different processes are involved. The majority of the sampled groundwater shows that Cl⁻ concentrations are equivalent to those of effective rain. The samples presenting a Cl⁻ content largely over the recharge water are the same with a high content in NO_3^- (except Osp9 and Pe4). They can then be considered under anthropogenic influences related to land uses. The highest concentrations in nitrates have been measured in pastures land. In Osp9 and Pe4, the NO_3^- content, close to 0 meq.L⁻¹ and about 0.08 meq.L^{-1} respectively, can be explained by a denitrification process. This hypothesis has been confirmed by the observed anoxic conditions (mean O2 saturation about 2.3 % in Osp9 and 1.9 % in Pe4), and a high SO_4^{2-} mean concentration (0.69 meq.L⁻¹ in Osp9 and 0.29 $meq.L^{-1}$ in Pe4, Table 4). Nitrate reduction coupled with pyrite oxidation in aquifers has been reported widely (Strebel et al., 1989, Postma et al., 1991; Robertson et al., 1996, Appelo and Postma, 2005, Ayraud et al., 2006, 2008, Tarits et al., 2006, Vencelides et al., 2010, Nordstrom and Southam, 1997) and NO₃⁻ reduction coupled to sulphide oxidation through an autotrophic denitrification is also a well know process. The presence of sulphide minerals is mentioned by Boissonnas et al. (1974) close to and in the study area. Indeed, pyrite was extracted in the village of Itxassou until 1954. Therefore, the geochemistry of groundwater from the massif of Ursuya is the result of different processes among those the principals are the effect of the input signal, the water-rock interactions and denitrification process.

5. Conclusion

The chemical and the stable isotopic composition of the precipitation have been characterized for the first time in the northern Basque Country (Massif of Ursuya, Southwestern France). Rainwater collected over two hydrological cycles clarifies the characteristics of the input signal in this area. Precipitations are mainly due to an Atlantic Ocean origin but also to the circulations of air masses over the Iberian Peninsula, the northern Europe and the Mediterranean coasts. These results also show the strong influences of anthropogenic activities on rainwater quality. Indeed, despite a low acidity due to strong neutralization processes, NO_3^- , SO_4^{2-} and NH_4^+ concentrations appears to be larger in precipitation coming from industrialized area.

The combination of rainwater and groundwater study is also an interesting tool to infer the recharge conditions and the global flow settings within the aquifer. Here, the well-mixed groundwater content of the Ursuya aquifer is validated by the confrontation between isotopic and geochemical content highly variable in rainwater and very stable in groundwater. The differences observed between the isotopic and the chemical contents of groundwater and rainwater are well understood and are mainly due to the winter recharge, the altitudinal gradient, the water-rock interactions, anthropogenic influences and denitrification processes (Jaunat et al., 2012). This association between a recharge water of great quality and a well preserved aquifer provides an excellent drinking water resource. As the water needs in this sector of the Northern Basque Country are constantly increasing, great attention needs to be paid to the quality of this resource.

These data are also used for the calibration of a finite element numerical model of the aquifer of Ursuya massif that will be a helpful tool for the management of this strategic resource. Besides the useful information provided in this unstudied area, these results on the rainwater content are of a primary importance for the knowledge of the recharge of groundwater in all the northern Basque Country. This first definition of the input signal in this region will be useful to improve the comprehension of isotopic and chemical processes in all the aquifers of the northwestern Pyrenees.

Acknowledgments

This study has been financially supported by the "Conseil Général des Pyrénées Atlantiques", the "Conseil Régional d'Aquitaine", the "Agence de l'Eau Adour-Garonne" and the European Regional Development Fund (ERDF). The authors would like to thank the municipalities of Bayonne, Hasparren, Cambo-les-Bains and the SIAEP of Mendionde-Bonloc and Macaye-Louhossoa for their support and contribution to the implementation of the project.

References

- Abbott, M.D., Lini, A., Bierman, P.R., 2000. δ¹⁸O, δD and ³H measurements constrain groundwater recharge patterns in an upland fractured bedrock aquifer, Vermont, USA, Journal of Hydrology, 228, 101-112.
- Alcalà, F.J., Custodio, E., 2008. Atmospheric chloride deposition in continental Spain, Hydrological Processes, 22, 3636-3650.
- Aggarwal, P.K., Araguas-Araguas, L., Gröning, M., Kulkarni, K.M., Kurttas, T., Newman,B.D., Tanweer, A., 2009. Laser Spectroscopic Analysis of Liquid Water Samples forStable Hydrogen and Oxygen Isotopes, IAEA, 49 p.
- Andreo, B., Liñan, C., Carrasco, F., Jimenéz De Cisneros, C., Caballero, F., Mudry, J., 2004. Influence of rainfall quantity on the isotopic composition (¹⁸O and ²H) of water in mountainous areas. Application for groundwater research in the Yunquera-Nieves karst aquifers (S Spain), Applied Geochemistry, 19, 561-574.

- Appelo, C., Postma, D., 2005. Geochemistry, groundwater and pollution 2nd edition. Balkema Publishers, 649 p.
- Araguas-Araguas, L., Froehlich, K., Rozanski, K., 2000. Deuterium and oxygen-18 isotope composition of precipitation and atmospheric moisture, International Workshop on the Application of Stable Isotopes in Water Balance Studies (ISOBALANCE), Saskatoon, Canada, 14, 1341-1355.
- Argiriou, A., Lykoudis, S., 2006. Isotopic composition of precipitation in Greece, Journal of Hydrology, 327, 486-495.
- Armand, C., Saint-Marc, E., Ligouret, P., 1995. Ursuya (64) Partie est. Carte de vulnérabilité des eaux souterraines et prospection géophysique, BRGM, 31 p.
- Armand, C., Triscos, J., 1997. Ville de Hasparren (Pyrénées Atlantiques) ; Recherche d'eau potable par sondages dans le massif de l'Ursuya est (64), ANTEA, 16 p.
- Armand, C., Triscos, J., 1999. Ville de Hasparren (64) ; Réalisation de trois forages dans le massif de l'Ursuya, destinés à l'alimentation en eau potable. Dossier d'ouvrage exécuté, ANTEA, 20 p.
- Arsene, C., Olariu, R., Mihalopoulos, N., 2007. Chemical composition of rainwater in the northeastern Romania, Iasi region (2003–2006), Atmospheric Environment, 41, 9452-9467.
- Avila, A., Queralt-Mitjans, I., Alarcn, M., 1997. Mineralogical composition of African dust delivered by red rains over northeastern Spain, Journal of Geophysical Research, 102, 21,77-21,96.
- Ayraud, V., Aquilina, L., Labasque, T., Pauwels, H., Molenat, J., Pierson-Wickmann, A., Durand, V., Bour, O., Tarits, C., Le Corre, P., Fourre, E., Merot, P., Davy, P., 2008. Compartmentalization of physical and chemical properties in hard-rock aquifers deduced from chemical and groundwater age analyses, Applied Geochemistry, 23, 2686-2707.
- Ayraud, V., Aquilina, L., Pauwels, H., Labasque, T., Pierson-Wickmann, A., Aquilina, A-M., Gallat, G., 2006. Physical, biogeochemical and isotopic processes related to heterogeneity of a shallow crystalline rock aquifer, Biogeochemistry, 81, 331-347.
- Balasubramanian, R., Victor, R., Chun, N., 2001. Chemical and statistical analysis of precipitation in Singapore, Water Air and Soil Pollution, 130, 451-456.
- Baumgardner, R.E., Lavery, T.F., Rogers, C.M., Isil, S.S., 2002. Estimates of the atmospheric deposition of sulfur and nitrogen species : Clean Air Status and Trends Network, 1990-2000, Environmental Science and Technology, 36, 2614-2629.
- Bertrand, G., 2009. De la pluie à l'eau souterraine. Apport du traçage naturel (ions majeurs, isotopes) à l'étude du fonctionnement des aquifères volcaniques. (Bassin d'Argnat, Auvergne, France), Université Blaise Pascal Clermont-Ferrand II, 294 p.
- Bertrand, G., Celle-Jeanton, H., Laj, P., Rangognio, J., Chazot, G., 2008. Rainfall chemistry : long range transport versus below cloud scavenging. A two-year study at an inland station (Opme, France), Journal of Atmospheric Chemistry, 60, 253-271.
- Beysens, D., Ohayon, C., Muselli, M., Clus, O., 2006. Chemical and biological characteristics of dew and rain water in an urban coastal area (Bordeaux, France), Atmospheric Environment, 40, 3710-3723.

- Breitenbach, S.F.M., Adkins, J.F., Meyer, H., Marwan, N., Krishna Kumar, K., Haug, G.H., 2010. Strong influence of water vapor source dynamics on stable isotopes in precipitation observed in Southern Meghalaya, NE India, Earth and Planetary Science Letters, 292, 212-220.
- Budhavant, K.B., Rao, P.S.P., Safai, P.D., Ali, K., 2011. Influence of local sources on rainwater chemistry over Pune region, India, Atmospheric Research, 100, 121-131.
- Bàez, A.P., Belmont, R.D., Garcia, R.M., Torres, M.C.B., Padilla, H.G., 2006. Rainwater chemical composition at two sites in Central Mexico, Atmospheric Research, 80, 67-85.
- Boissonnas, J., Le Pochat, G., Thibault, C., Bernatzk, M., 1974. Carte géologique d'Iholdy au 1/50 000, n° 1027, BRGM.
- Carratala, A., Bellot, J., 1998. Neutralization of nitrate and sulphate in precipitation on the eastern Mediterranean coast of Spain. Implications for acidification risk, Water Air and Soil Pollution, 104, 237-257.
- Carratala, A., Gomez, A., Bellot, J., 1998. Mapping rain composition in the east of Spain by applying kriging, Water Air and Soil Pollution, 104, 9-27.
- Celle, H., 2000. Caractérisation des précipitations sur le pourtour de la Méditerranée occidentale Approche isotopique et chimique, Université d'Avignon et des Pays de Vaucluse, 222 p.
- Celle, H., Daniel, M., Mudry, J., Blavoux, B., 2000. Signal pluie et traçage par les isotopes stables en Méditerranée occidentale. Exemple de la région avignonnaise (Sud-Est de la France), CRAS.
- Celle-Jeanton, H., Travi, Y., Blavoux, B., 2001. Isotopic typology of the precipitation in the Western Mediterranean region at three different time scales, Geophysical Research Letters, 28, 1215-1218.
- Celle-Jeanton, H., Gonfiantini, R., Travi, Y., Sol, B., 2004. Oxygen-18 variations of rainwater during precipitation : application of the Rayleigh model to selected rainfalls in Southern France, Journal of Hydrology, 289, 165-177.
- Celle-Jeanton, H., Travi, Y., Loÿe-Pilot, M., Huneau, F., Bertrand, G., 2009. Rainwater chemistry at a Mediterranean inland station (Avignon, France) : Local contribution versus long-range supply, Atmospheric Research, 91, 118-126.
- Chandra-Mouli, P., Venkata Mohan, S., Jayarama Reddy, S., 2005. Rainwater chemistry at a regional representative urban site : influence of terrestrial sources on ionic composition, Atmospheric Environment, 39, 999-1008.
- Clark, D. Fritz, P., 1997. Environmental isotopes in hydrogeology, New York, Lewis publishers.
- Codina, B., Lorente, J., 1996. Rainwater composition in the Barcelona area, Fresenius Environmental Bullettin, 5, 413-417.
- Craig, H., 1961. Isotopic Variations in Meteoric Waters, Science, 133, 1702-1703.
- Craig, H., Gordon, L. I., 1965. Deuterium and oxygen 18 variations in the ocean and the marine atmosphere. In : Stable Isotopes in Oceanographic Studies and Paleotemperatures (ed. E. Tongiorgi), pp. 9–130, Laboratorio di Geologia Nucleare, Pisa, Italy.
- Dansgaard, W., 1964. Stable isotopes in precipitation, Tellus, 8, 75-82.

- Das, N., Das, R., Chaudhury, G.T., Das, S.N., 2010. Chemical composition of precipitation at background level, Atmospheric Research, 95, 108-113.
- Das, R., Das, S.N., Mirsa, V.N., 2005. Chemical composition of rainwater and dustfall at Bhubaneswar in the east coast of India, Atmospheric Environment, 39, 5908-5916.
- Draxler, R.R., Rolph, G.D., 2012. HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via NOAA ARL READY Website (http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php), NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD.
- El-Asrag, A.M., Al-Gamal, S.A., Youssef, A., Ahmed, D.M., 2003. Spatial and temporal variation of rainwater stable isotopes in Egypt and the east Mediterranean, Theoretical and Applied Climatology, 74, 191-202.
- Galloway, J.N., Diawu, Z., Jiling, X., Liken, G.E., 1987. Acid rain, China, United States and a remote area, Science, 236, 1559-1562.
- Gat, J.R., Carmi, I., 1970. Evolution of the Isotopic Composition of Atmospheric Waters in the Mediterranean Sea Area, Journal of Geophysical Research, 75, 3039-3048.
- Gat, J.R., Klein, B., Kushnir, Y., Roether, W., Wernli, H., Yam, R., Shemesh, A., 2003. Isotope composition of air moisture over the Mediterranean Sea : an index of the airsea interaction pattern, Tellus series B - Chemical and Physical Meteorology, 55, 953-965.
- Gobre, T., Salve, P.R., Krupadam, R.J., Bansiwal, A., Shastry, S., Wate, S.R., 2010. Chemical Composition of Precipitation in the Coastal Environment of India, Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology, 85, 48-53.
- Gonfiantini, R., 1996. On the isotopic composition of precipitation, Jean Charles Fontes (1936-1994), Un souvenir, Proceedings, International Symposium European Geologist, 2, 5-8.
- Grassa, F., Favara, R., Valenza, M., 2006. Moisture source in the Hyblean Mountains region (south-eastern Sicily, Italy) : Evidence from stable isotopes, Applied Geochemistry, 21, 2082-2095.
- Han, G., Liu, C.Q., 2006. Strontium isotope and major ion chemistry of the rainwaters from Guiyang, Guizhou Province, China, Science of the Total Environment, 364, 165-174.
- Hernàndez, E., Gimeo, L., Sànchez, M., Rua, A., Méndez, R., 1996. Relationship between rain composition in Spain and its sources, Journal of Geophysical Research, 101, 381-387.
- Holdsworth, G., Fogarasi, S., 1991. Variation of the stable isotopes of water with altitude in the Saint Elias Mountains of Canada, Journal of Geophysical Research, 96, 7483-7494.
- Hopke, P.K., 1985. A comparaison of R-mode and Q-mode in target transformation factoranalysis for resolving environmental data-reply, Atmospheric Environment, 19, 1550-1551.
- Huang, X.F., Li, X., He, L.Y., Feng, N., Min, H., Niu, Y.W., Zeng, L.W., 2010. 5-Year study of rainwater chemistry in a coastal mega-city in South China, Atmospheric Research, 97, 185-193.

- Jammes, S., Manatschal, G., Lavier, L., Masini, E., 2009. Tectonosedimentary evolution related to extreme crustal thinning ahead of a propagating ocean : Example of the western Pyrenees, Tectonics, 28, TC4012.
- Jaunat, J., Huneau, F., Dupuy, A., Celle-Jeanton, H., Vergnaud-Ayraud, V., Aquilina, L., Labasque, T., Le Coustumer, P., 2012. Hydrochemical data and groundwater dating to infer differential flowpaths through weathered profiles of a fractured aquifer, Applied Geochemistry, in press, doi: 10.1016/j.apgeochem.2012.06.009.
- Jawad Al Obaidy, AHM., Joshi, H., 2006. Chemical composition of rainwater in a tropical urban area of northern India, Atmospheric Environment, 40, 6886-6891.
- Jiráková, H., Huneau, F., Celle-Jeanton, H., Hrkal, Z., Le Coustumer, P., 2009. Palaeorecharge conditions of the deep aquifers of the Northern Aquitaine region (France), Journal of Hydrology, 368, 1-16.
- Jiráková, H., Huneau, F., Celle-Jeanton, H., Hrkal, Z., Le Coustumer, P., 2011. Insights into palaeorecharge conditions for European deep aquifers, Hydrogeology Journal, 19, 1545-1562.
- Jouzel, J., 1986. Isotopes in cloud physics: multisteps and multistages processes. in Handbook of Environmental Isotopes Geochemistry, vol. 2 : The terrestrial environment B, pp. 61-112. Elsevier.
- Katz, B.G., Lee, T.M., Plummer, L.N., Busenberg, E., 1995. Chemical Evolution of groundwater near a sinkhole lake, northern Florida. 1. Flow patterns, age of groundwater, and influence of lakewater leakage, Water Resources Research, 31, 1549-1564
- Keene, W.C., Pszenny, A.A.P., Galloway, J.N., Hawley, M.E., 1986. Sea-salt corrections and interpretation of constituent ratios in marine precipitation, Journal of Geophysical Research, 91, 6647-6658.
- Kohfahl, C., Sprenger, C., Herrera, J.B., Meyer, H., Fernandez Chacon, F., Pekdeger, A., 2008. Recharge sources and hydrogeochemical evolution of groundwater in semiarid and karstic environments : A field study in the Granada Basin (Southern Spain), Applied Geochemistry, 23, 846-862.
- Kulshrestha, U.C., Kulshrestha, M.J., Sekar, R., Sastry, G.S.R., Vairamani, M., 2003. Chemical characteristics of rainwater at an urban site of south-central India, Atmospheric Environment, 37, 3019-3026.
- Ladouche, B., Aquilina, L., Dörfliger, N., 2009. Chemical and isotopic investigation of rainwater in Southern France (1996–2002) : Potential use as input signal for karst functioning investigation, Journal of Hydrology, 367, 150-164.
- Lara, L.B.L.S., Artaxo, P., Martinelli, L.A., Victoria, R.L., Camargo, P.B., Krusche, A., Ayers, G.P., Ferraz, E.S.B., Ballester, M.V., 2001. Chemical composition of rainwater and anthropogenic influences in the Piracicaba River Basin, Southeast Brazil, Atmospheric Environment, 35, 4937-4945.
- Lightowlers, P.J., Cape, J.N., 1988. Sources and fate of atmospheric HCl in the U.K. and Western Europe, Atmospheric Environment, 22, 7-15.
- Loye-Pilot, M.D., Morelli, J., 1988. Fluctuations of ionic composition of precipitations collected in corsica related to changes in the origins of incoming aerosols, Journal of Aerosol Science, 19, 577-585.

- Lynch, J.A., Bowersox, V.C., Grimm, J.W., 2000. Acid rain reduced in Eastern United States, Environmental Science and Technology, 34, 940-949.
- Mandal, A.K., Zhang, J., Asai, K., 2011. Stable isotopic and geochemical data for inferring sources of recharge and groundwater flow on the volcanic island of Rishiri, Japan Applied Geochemistry, 26, 1741-1751.
- Michard, A., 1989. Rare earth systematics in hydrothermal fluids, Geochimica et Cosmochimica Acta, 53, 745-750.
- Millot, R., Petelet-Giraud, E., Guerrot, C., Négrel, P., 2010. Multi-isotopic composition (δ7Li–δ11B–δD–δ18O) of rainwaters in France : Origin and spatio-temporal characterization, Applied Geochemistry, 25, 1510-1524.
- Niewodniczanski, J., Grabczak, J., Baranski, L., Rzepka, J., 1981. The altitude effect on the isotopic composition of snow in high mountains, Journal of Glaciology, 27, 99-111.
- Négrel, P., Lemière, B., Machard de Grammont, H., Billaud, P., Sengupta, B., 2007.
 Hydrogeochemical processes, mixing and isotope tracing in hard rock aquifers and surface waters from the Subarnarekha River Basin, (east Singhbhum District, Jharkhand State, India), Hydrogeology Journal, 15, 1535-1552
- Négrel, P., Roy, S., 1998. Chemistry of rainwater in the Massif Central (France) : a strontium isotope and major element study, Applied Geochemistry, 13, 941-952.
- Nordstrom, D., Southam, G., 1997. Geomicrobiology of sulfide mineral oxidation, Geomicrobiology : Interactions Between Microbes And Minerals, Reviews In Mineralogy, 35, 361-390.
- Overrain, L.N., Seip, H.M., Tollan, A., 1981. Acid precipitation effects on forest and fish, SNSF project final report, 175 p.
- Peixoto, J.P., Oort, A.H., 1983. The atmospheric branch of the hydrological cycle and climate, in Variations in the Global Water Budget, A. Street-Perrott et al., pp. 5-65, D. Reidel Publishing Company.
- Penna, D., Stenni, B., Sanda, M., Wrede, S., Bogaard, T.A., Gobbi, A., Borga, M., Fischer, B.M.C., Bonazza, M., Charova, Z., 2010. On the reproducibility and repeatability of laser absorption spectroscopy measurements for 2H and 18O isotopic analysis, Hydrology and Earth System Sciences, 14, 1551-1566.
- Petelet-Giraud, E., Casanova, J., Chery, L., Négrel, P., Bushaert, S., 2005. Essai de caractérisation isotopique (δ18O et δ2H) du signal météorique actuel à partir des lacs et réservoirs : application au quart Sud-Ouest de la France, La Houille Blanche, 2, 57-62.
- Plaisance, H., Galloo, J.C., Guillermo, R., 1997. Source identification and variation in the chemical composition of precipitation at two rural sites in France, Science of the Total Environment, 206, 79-93.
- Possanzini, M., Buttini, P., Di Palo, V., 1988. Characterization of a rural area in terms of dry and wet deposition, Science of the Total Environment, 74, 111-120.
- Postma, D., Boesen, C., Kristiansen, H., Larsen, F., 1991. Nitrate reduction in an unconfined sandy aquifer - water chemistry, reduction processes, and geochemical modeling, Water Resources Research, 27, 2027-2045.

- Prasanna, M.V., Chidambaram, S., Shahul Hameed, A., Srinivasamoorthy, K., 2010. Study of evaluation of groundwater in Gadilam basin using hydrogeochemical and isotope data, Environmental Monitoring and Assessment, 168, 63-90.
- Rahn, K.A., Brosset, C., Ottar, B., Patterson, E.M., 1982. Black and White episodes, chemical evolution of Eurasian air masses and long range transport of carbon into the Arctic, In: Wolff, T., Klimmish, R.L. (eds.) Particulate carbon : atmospheric life cycle, pp. 339-340, Plenum, New York.
- Raya Garrido, J., 2003. Composicion isotopica del vapor de agua atmosferico en el sureste de la peninsula iberica, Universidad de Granada, 417 p.
- Robertson, W.D. Russel, B.M., Cherry, J.A., 1996. Attenuation of nitrate in aquitard sediments of southern Ontario, Journal of Hydrology, 180, 267-281.
- Rocha, F.R., Fracassi Da Silva, J.A., Lago, C.L., Fornaro, A., Gutz, I.G.R., 2003. Wet deposition and related atmospheric chemistry in the São Paulo metropolis,Brazil :
 Part 1 : Major inorganic ions in rainwater as evaluated by capillary electrophoresis with contactless conductivity detection, Atmospheric Environment, 37, 105-115.
- Rolph, G.D., 2012. Real-time Environmental Applications and Display sYstem (READY) Website (http://ready.arl.noaa.gov), NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD.
- Rozanski, K., Araguas-Araguas, L., Gonfiantini, R., 1993. Isotopic patterns in modern global precipitation, in Continental isotope indicators of climate, American Geophysical Union, 78, 1-36.
- Rozanski, K., Sonntag, C., Münnich, K.O., 1982. Factors controlling stable isotope composition of European precipitations, Tellus, 34, 142-150.
- Safai, P.D., Rao, P.S.P., Momin, G.A., Ali, K., Chate, D.M., Praveen, P.S., 2004. Chemical composition of precipitation during 1984-2002 at Pune, India, Atmospheric Environment, 38, 1705-1714.
- Sakihama, H., Ishiki, M., Tokuyama, A., 2008. Chemical characteristics of precipitation in Okinawa Island, Japan, Atmospheric Environment, 42, 2320-2335.
- Salve, P.R., Maurya, A., Wate, S.R., 2008. Chemical Composition of Major Ions in Rainwater, Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology, 80, 242-246.
- Santos, P.S.M., Otero, M., Santos, E.B.H., Duarte, A.C., 2011. Chemical composition of rainwater at a coastal town on the southwest of Europe : What changes in 20 years? Science of the Total Environment, 409, 3548-3553.
- Sanusi, A., Wortham, H., Millet, M., Mirabel, P., 1996. Chemical composition of rainwater in eastern france, Atmospheric Environment, 30, 59-71.
- Satyanarayana, J., Kumar Reddy, L.A., Kulshrestha, M.J., Rao, R.N., Kulshrestha, U.C., 2010. Chemical composition of rain water and influence of airmass trajectories at a rural site in an ecological sensitive area of Western Ghats (India), Journal of Atmospheric Chemistry, 66, 101-116.
- Scholl, M.A., Giambelluca, T.W., Gingerich, S.B., Nullet, M.A., Loope, L.L., 2007. Cloud water in windward and leeward mountain forests : The stable isotope signature of orographic cloud water, Water Resources Research, 43, W12411.

- Sickles Ii, J.E., Grimm, J.W., 2003. Wet deposition from clouds and precipitation in three high-elevation regions of the Eastern United States, Atmospheric Environment, 37, 277-288.
- Strebel, O., Duynisveld, W.H.M., Böttcher, J., 1989. Nitrate pollution of groundwater in western-europe, Agriculture Ecosystems & Environnment, 26, 189-214.
- Tang, A., Zhuang, G., Wang, Y., Yuan, H., Sun, Y., 2005. The chemistry of precipitation and its relation to aerosol in Beijing, Atmospheric Environment, 39, 3397-3406.
- Tarits, C., Aquilina, L., Ayraud, V., Pauwels, H., Davy, P., Touchard, F., Bour, O., 2006. Oxido-reduction sequence related to flux variations of groundwater from a fractured basement aquifer (Plomeur area, France), Applied Geochemistry, 21, 29-47.
- Taylor, S.R., 1964. Abundance of chemical elements in the continental crust a new table, Geochimica et Cosmochimica Acta, 28, 1273-1285.
- Tiwari, S., Chate, D.M., Bisht, D.S., Srivastava, M.K., Padmanabhamurty, B., 2012. Rainwater chemistry in the North Western Himalayan Region, India, Atmospheric Research, 105, 128-138.
- Vàsquez, A., Costoya, M., Pena, R.M., Garcia, S., Herrero, C., 2003. A rainwater quality monitoring network : a preliminary study of the composition of rainwater in Galicia (NW Spain), Chemosphere, 51, 375-386.
- Vencelides, Z., Hrkal, Z. Prchalova, 2010. Determination of the natural background content of metals in ground waters of the Czech Republic, Applied Geochemistry, 25, 755-762.
- Viville, D., Ladouche, B., Bariac, T., 2006. Isotope hydrological study of mean transit time in the granitic Strengbach catchment (Vosges massif, France) : application of the FlowPC model with modified input function, Hydrological Processes, 20, 1737-1751.
- Wang, H., Han, G., 2011. Chemical composition of rainwater and anthropogenic influences in Chengdu, Southwest China, Atmospheric Research, 99, 190-196.
- Willey, J.D., Kieber, R.J., Avery, G.B., 2006. Changing chemical composition of precipitation in Wilmington, North Carolina, USA : Implications for the continental USA, Environmental Science and Technology, 40, 5675-5680.
- Xu, Z., Han, G., 2009. Chemical and strontium isotope characterization of rainwater in Beijing, China, Atmospheric Environment, 43, 1954-1961.
- Yamasoe, M.A., Artaxo, P., Miguel, A.H., Allen, A.G., 2000. Chemical composition of aerosol particles from direct emissions of vegetation fires in the Amazon Basin : water-soluble species and trace elements, Atmospheric Environment, 34, 1641-1653.
- Zhang, M., Wang, S., Wu, F., Yuan, X. Zhang, Y., 2007. Chemical compositions of wet precipitation and anthropogenic influences at a developing urban site in southeastern China, Atmospheric Environment, 84, 311-322.
- Zunckel, M., Saizar, C., Zarauz, J., 2003. Rainwater composition in northeast Uruguay, Atmospheric Environment, 37, 1601-1611.



Figure 1 : Ursuya Mount topography and localisation of the sampling points.



Figure 2 : Correlation between the total cationic and the anionic charges.



Figure 3 : Plots of $\delta^{18}O$ vs δ^2D for sampled rainfall between 2010/02 and 2011/12 (n = 112) and corresponding regression line (Local Meteoric Water Line) and Global Meteoric Water Line.



Figure 4 : Typical backward trajectories for rain events associated with air masses coming from the five defined sectors : 1) NWA (2011/2/28); 2) SWA (2010/12/21); 3) Europe (11/4/28); 4) SE (11/01/30).



Figure 5 : Plots of $\delta^{18}O$ vs δ^2D for daily sampled rainfall as a function of airmasses origin between 2010/02 and 2011/12 and corresponding meteoric water line with 95 % confidence intervals.



Figure 6 : Temporal variation of δD and $\delta^{18}O$ in rainwater between 2010/02 and 2011/12.



Figure 7 : $([NO_3^-]) / ([NO_3^-] + [nssSO_4^{-2}^-])$ ratio, original and measured acidity, fractional acidity, acidic potential, neutralization potential, ratio of NA to NP and Neutralization factors for different cations in rainwater between 2010/02 and 2011/12 (n = 175).



Figure 8 : Relationship between $\delta^{18}O$ and δ^2D for individual groundwater samples (n = 286) and for individual rainwater samples (n = 112). Global mean of groundwater, weighted mean of rainwater, Global Meteoric Water Line and Local Meteoric Water Line are also plotted.



Figure 9 : Relationships between $\delta^{18}O$ in groundwater and altitude. $\delta^{18}O$ standard deviation is also given.



Figure 10 : Histogram displaying the Na^+ , Mg^{2+} , Cl^- and NO_3^- concentration of groundwater (and corresponding standard deviation) with respect to effective rain concentration (dotted line).

	NWA		SWA		Europe		SE		All data	
Ν	42 (37.5 %)		40 (35.7 %)		23 (20.5 %)		7 (6.25 %)		112 (100 %)	
Height (mm)	783 (40.4 %)		651 (33.6 %)		391 (20.2 %)		114 (5.9 %)		1939 (100 %)	
	Weighted	Std-	Weighted	Std-	Weighted	Std-	Weighted	Std-	Weighted	Std-
	mean	dev	mean	dev	mean	dev	mean	dev	mean	dev
EC (µS.cm ⁻¹)	28.0	16.8	21.9	20.4	29.3	32.7	18.4	12.5	28.9	23.0
$HCO_3^{-}(\mu eq.L^{-1})$	44.9	37.3	58.9	37.7	37.1	37.9	50.9	27.5	48.4	36.9
$NO_3^{-}(\mu eq.L^{-1})$	22.1	18.0	21.8	33.6	57.0	101.1	33.2	27.6	29.7	54.8
$PO_4^{3-}(\mu eq.L^{-1})$	16.7	32.6	3.0	20.4	0.1	0.9	0	0	7.8	23.9
ssCl ⁻ (µeq.L ⁻¹)	129.1	116.8	91.4	61.7	87.0	122.1	54.4	53.4	121.8	101.8
nss Cl ⁻ (µeq.L ⁻¹)	15.0	40.9	4.7	31.4	0.1	0.7	10.6	19.1	9.8	31.8
ssSO ₄ ²⁻ (µeq.L ⁻¹)	15.1	13.4	11.8	8.2	11.8	14.5	7.2	8.5	14.8	12.1
nssSO ₄ ²⁻	9.0	27.5	18.3	24.2	27.8	41.1	32.1	16.1	29.2	29.9
(µeq.L ⁻¹)										
Na ⁺	140.1	116.6	114.5	67.9	97.6	120.2	59.4	70.5	118.2	103.4
(µeq.L ⁻¹)										
NH4 ⁺ (µeq.L ⁻¹)	25.6	20.4	17.0	21.5	54.1	100.6	31.6	38.3	28.8	53.3
ssK ⁺ (µeq.L ⁻¹)	2.9	2.4	2.4	1.4	2.0	2.5	1.2	1.5	2.8	2.2
nssK ⁺ (µeq.L ⁻¹)	14.3	16.6	18.0	15.8	9.5	12.1	52.7	29.9	33.0	17.5
ssMg ²⁺ (µeq.L ⁻¹)	31.5	25.2	24.0	15.0	21.8	26.2	10.8	15.8	29.6	22.7
nssMg ²⁺	13.4	9.3	13.6	24.7	15.3	16.6	3.2	6.1	17.1	17.6
(µeq.L ⁻¹)										
ssCa ²⁺ (µeq.L ⁻¹)	6.2	5.1	5.0	3.0	4.3	5.3	2.6	3.1	5.9	4.5
nssCa ²⁺ (µeq.L ⁻	54.1	51.0	88.8	26.3	60.1	55.1	53.3	28.3	92.2	46.5
1)										
\mathbf{H}^+	1.4	2.2	0.7	4.9	4.5	5.1	0.1	0.1	1.7	4.0
(µeq.L ⁻¹)										
δ ¹⁸ O (‰)	-5.6	3.1	-5.7	3.1	-6.0	2.8	-5.5	2.7	-5.7	3.0
δD (‰)	-33.8	23.1	-36.7	24.8	-36.3	18.8	-34.7	21.4	-35.3	22.8

Table 1 : Weighted mean value of major ionic rain components and stable isotope content for the whole rainwater dataset and for the four air masses origin sectors (ss = sea salt, nss = non sea salt and n = number of event).

	Cl	SO_4^{2-}	\mathbf{K}^+	Ca ²⁺	Mg ²⁺
$(X/Na)_{seawater}$ (µeq.L ⁻¹ ; Michard, 1989)	1.167	0.121	0.021	0.044	0.227
Non sea salt contribution (μ eq.L ⁻¹)		29.2	33.0	92.2	17.1
Sea salt contribution (μ eq.L ⁻¹)		14.8	2.8	5.9	29.6
Non sea salt contribution (%)	6.3	49.1	82.5	90.1	33.5
Sea salt contribution (%)	93.7	50.9	17.5	9.9	66.5
EF	1.6	14.0	61.9	31.6	6.4

Table 2 : Contribution from marine and non marine sources and enrichment factors of major ions in rainwater in the Ursuya Mount relative to seawater.
Component	Factor 1	Factor 2	Factor 3	Factor 4
HCO ₃ ⁻	0.896	0.103	0.011	0.009
Cl	0.078	0.930	0.131	0.020
SO_4^{2-}	0.309	0.221	0.713	-0.124
NO ₃	-0.116	0.153	0.825	0.152
NO ₂	0.760	0.112	-0.041	0.251
PO ₄ ³⁻	0.842	0.137	-0.051	-0.086
Na ⁺	0.091	0.944	0.153	-0.010
$\mathrm{NH_4}^+$	0.712	0.168	0.313	-0.293
\mathbf{K}^+	0.710	0.281	0.094	-0.329
Mg ²⁺	0.468	0.767	-0.018	-0.041
Ca ²⁺	0.845	0.167	0.076	0.002
H^+	-0.036	0.014	0.061	0.885
Variance (%)	34.7	21.6	11.3	9.1

Table 3 : Factor loadings after Varimax rotation normalized applied to the dataset of the ionic concentrations in the investigated rain events (the most significant values are in bold).

Sample	Ν	Z	Longitude	Latitude	EC	pН	Т	HCO3	CI.	SO42-	NO ₃ ⁻	Na ⁺	\mathbf{K}^{+}	Mg ²⁺	Ca ²⁺	IB	δ ² H	δ ¹⁸ O	d-excess
ID		(m ASL)	(°/min/s)	(°/min/s)	(µS/cm)		(°C)	(meq.L	(meq.L ⁻	(meq.L ⁻	(meq.L ⁻	(meq.L ⁻	(meq.L ⁻	(meq.L	(meq.L	(%)	(‰)	(‰)	(‰)
								1)	1)	1)	1)	1)	1)	¹)	¹)				
AR1	19	270	- 1 19 57.7	43 21 32.1	105	6.10	12.9	0.45	0.26	0.04	0.16	0.33	0.04	0.33	0.42	9.27	-36.83	-6.28	13.54
					(1.7)	(1.9)	(2.3)	(0.04)	(0.02)	(0.02)	(0.03)	(0.01)	(0.00)	(0.02)	(0.04)		(0.62)	(0.11)	(0.81)
C3	18	580	- 1 20 13.0	43 20 46.7	69	6.39	10.8	0.27	0.18	0.09	0.09	0.24	0.02	0.17	0.34	11.2	-37.83	-6.53	14.43
					(13.4)	(5.9)	(5.1)	(0.04)	(0.02)	(0.03)	(0.02)	(0.02)	(0.00)	(1.03)	(0.05)		(0.86)	(0.17)	(1.07)
H20	17	480	- 1 19 46.7	43 20 51.2	48 (7.3)	5.94	11.6	0.18	0.17	0.05	0.04	0.23	0.02	0.13	0.14	13.1	-37.40	-6.49	14.55
						(2.4)	(3.9)	(0.03)	(0.04)	(0.01)	(0.01)	(0.02)	(0.00)	(0.03)	(0.05)		(0.82)	(0.20)	(1.25)
H2	17	360	- 1 19 40.7	43 21 7.0	97 (4.0)	6.54	12.4	0.60	0.21	0.05	0.03	0.33	0.03	0.28	0.43	9.6	-37.42	-6.42	13.92
						(2.1)	(1.9)	(0.02)	(0.03)	(0.02)	(0.01)	(0.01)	(0.00)	(0.03)	(0.06)		(0.66)	(0.15)	(1.11)
Ip6	19	160	- 1 21 59.5	43 21 19.4	107	5.84	13.4	0.25	0.32	0.03	0.28	0.37	0.09	0.30	0.31	11.2	-36.66	-6.19	12.87
					(5.8)	(2.9)	(4.6)	(0.02)	(0.04)	(0.01)	(0.05)	(0.03)	(0.01)	(0.06)	(0.05)		(0.67)	(0.14)	(0.94)
La10c	18	380	- 1 20 55.1	43 20 25.3	79 (2.6)	5.59	13.1	0.17	0.26	0.02	0.22	0.30	0.04	0.23	0.23	9.1	-37.05	-6.45	14.56
						(3.6)	(0.8)	(0.03)	(0.03)	(0.01)	(0.03)	(0.03)	(0.01)	(0.04)	(0.04)		(0.95)	(0.13)	(0.74)
La16l	18	220	- 1 21 13.7	43 21 13.3	53 (3.7)	5.85	12.8	0.25	0.21	0.04	0.03	0.31	0.03	0.15	0.16	9.7	-35.44	-6.07	13.46
						(4.03)	(8.3)	(0.05)	(0.04)	(0.02)	(0.02)	(0.04)	(0.00)	(0.04)	(0.08)		(0.55)	(0.10)	(0.74)
La7l	19	165	- 1 21 27.8	43 21 31.9	109	5.85	13.3	0.35	0.30	0.02	0.29	0.45	0.05	0.37	0.29	9.0	-34.71	-5.92	12.66
					(2.2)	(2.7)	(3.1)	(0.03)	(0.04)	(0.01)	(0.05)	(0.03)	(0.00)	(0.04)	(0.06)		(0.74)	(0.18)	(1.14)
Mac	19	560	- 1 20 20.9	43 20 38.9	46	5.42	11.3	0.08	0.18	0.00	0.12	0.23	0.02	0.13	0.09	9.7	-37.96	-6.59	14.76
					(2.41)	(4.7)	(0.8)	(0.02)	(0.03)	(0.00)	(0.02)	(0.02)	(0.00)	(0.03)	(0.04)		(1.07)	(0.16)	(0.88)
Esp	15	380	- 1 18 39.8	43 20 52.3	89 (4.3)	6.62	12.0	0.53	0.20	0.02	0.08	0.29	0.03	0.23	0.42	6.5	-36.86	-6.33	13.77
						(2.4)	(2.7)	(0.04)	(0.04)	(0.01)	(0.01)	(0.02)	(0.00)	(0.05)	(0.07)		(0.72)	(0.15)	(0.91)
Pe18	20	225	- 1 22 0.6	43 20 27.6	77 (4.8)	5.63	13.4	0.18	0.26	0.04	0.17	0.31	0.04	0.21	0.24	10.8	-36.12	-6.23	13.74
						(3.2)	(4.1)	(0.04)	(0.04)	(0.02)	(0.02)	(0.01)	(0.00)	(0.02)	(0.05)		(0.51)	(0.11)	(0.99)
Sc2	18	390	- 1 20 9.6	43 20 17.8	63 (4.6)	5.89	13.1	0.17	0.22	0.05	0.11	0.27	0.03	0.16	0.21	10.6	-38.37	-6.52	13.80
						(3.3)	(1.4)	(0.03)	(0.02)	(0.02)	(0.03)	(0.02)	(0.00)	(0.03)	(0.06)		(0.99)	(0.25)	(1.67)
Sc4	16	205	- 1 20 11.2	43 19 51.6	180	6.22	14.7	0.35	0.55	0.11	0.52	0.43	0.08	0.39	0.82	6.0	-36.31	-6.18	13.15
					(5.3)	(3.6)	(5.4)	(0.04)	(0.04)	(0.04)	(0.09)	(0.03)	(0.01)	(0.05)	(0.10)		(1.32)	(0.17)	(0.93)
Se3	16	215	- 1 17 13.8	43 21 39.9	60 (1.8)	6.32	13.1	0.25	0.23	0.03	0.08	0.29	0.02	0.13	0.23	7.5	-37.44	-6.21	12.25
						(3.4)	(1.1)	(0.02)	(0.01)	(0.02)	(0.03)	(0.02)	(0.00)	(0.02)	(0.05)		(0.71)	(0.17)	(1.26)
Ip2	11	170	- 1 21 58.2	43 21 19.7	265	7.78	14.3	2.30	0.26	0.04	0.11	0.37	0.05	0.33	2.26	4.9	-36.52	-6.32	14.08
					(5.3)	(1.6)	(6.7)	(0.2)	(0.02)	(0.02)	(0.02)	(0.03)	(0.01)	(0.05)	(0.17)		(0.51)	(0.16)	(1.17)
Osp9	8	210	- 1 18 53.8	43 21 36.2	374	7.46	14.5	2.23	0.87	0.69	0.00	0.53	0.05	0.48	2.93	1.8	-36.54	-6.21	13.17
					(16.5)	(2.8)	(10.1)	(0.19)	(0.08)	(0.09)	(0.00)	(0.05)	(0.01)	(0.07)	(0.28)		(0.62)	(0.13)	(0.91)
Pe4	9	230	- 1 22 3.3	43 20 26.9	177	6.48	14.0	0.70	0.34	0.29	0.10	0.41	0.09	0.29	0.78	3.4	-36.49	-6.21	13.18
					(12.8)	(3.1)	(8.1)	(0.20)	(0.07)	(0.18)	(0.06)	(0.07)	(0.02)	(0.07)	(0.25)		(0.45)	(0.16)	(1.10)
Pe5	9	240	- 1 21 54.4	43 20 25.2	64	5.59	13.7	0.10	0.28	0.02	0.08	0.33	0.03	0.13	0.15	6.3	-35.95	-6.20	13.65
					(13.0)	(5.08)	(11.3)	(0.03)	(0.05)	(0.03)	(0.02)	(0.03)	(0.01)	(0.07)	(0.06)		(0.59)	(0.21)	(1.40)

Table 4 : Mean field parameters, mean ionic composition, quality control on the analyses and stable isotopic content of groundwater (N : number of samples, IB : ionic balance, in parentheses : standard deviation).

Annexe C : article publié dans applied geochemistry

Applied Geochemistry 27 (2012) 2053-2067



Contents lists available at SciVerse ScienceDirect

Applied Geochemistry

journal homepage: www.elsevier.com/locate/apgeochem

Hydrochemical data and groundwater dating to infer differential flowpaths through weathered profiles of a fractured aquifer

J. Jaunat ^{a,*}, F. Huneau ^a, A. Dupuy ^a, H. Celle-Jeanton ^{b,c,d}, V. Vergnaud-Ayraud ^e, L. Aquilina ^e, T. Labasque ^e, P. Le Coustumer ^a

^a Université de Bordeaux, EA 4592 Géoressources & Environnement, ENSEGID, 1 allée F. Daguin, F-33607 Pessac, France

^b Clermont Université, Université Blaise Pascal, Laboratoire Magmas et Volcans, BP 10448, F-63038 Clermont-Ferrand, France

^c CNRS, UMR 6524, LMV, F-63038 Clermont-Ferrand, France

^d IRD, R 163, LMV, F-63038 Clermont-Ferrand, France
^o OSUR, Géosciences Rennes, UMR 6118, CNRS/Université Rennes-1, F-35042 Rennes, France

ARTICLE INFO

Article history: Received 26 March 2012 Accepted 16 June 2012 Available online 23 June 2012 Editorial handling by R. Fuge

ABSTRACT

The Northern Basque Country (Southwestern France) is subject to a constant need of increasing water due to a rising population. The fissured aquifer of the Ursuya Mount is one of the main water supplies able to meet these needs. Unfortunately, there is a lack of knowledge on the residence time of groundwater and flow pattern in this strategic resource. Geochemical monitoring of groundwater was carried out from 2009 to 2011 in conjunction with CFC-SF₆ measurement and with a detailed geological field characterization. It appears that groundwater flows and water geochemistry are conditioned by the development of a weathered layer overlying the fissured aquifer. When the weathered layer is absent, groundwater flows take place in unconfined conditions along fractures and fissures. The rapid circulation (mean residence time between 11 and 15 a) and the low solubility of the matrix generates low mineralization (mean about 61 µS cm⁻¹). When a weathered layer is present, the flow depends on the degree of weathering, with groundwater circulating in the deep fissured zone in the case of a high degree of weathering. The apparent age is then between 10 and 42 a and the mineralization tends to increase concomitantly with the residence time, and particularly terrigenic element concentrations. In the case of a lesser degree of weathering, mixing between recent water from the shallow weathered layer and the oldest water (25 to >50 a) from the underlying fissured aquifer is observed. These results allow the definition of a conceptual model of flow characteristics in the study area which is also applicable to other weathered-fractured systems worldwide.

© 2012 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

The hydrogeology of fractured-rock environments is an important field of study because of their abundance and their increasing use for water supply. Indeed, in response to the rise in water demand and the degradation of surface river-water quality interest in hard-rock aquifers is rising (Ayraud et al., 2008; Glynn and Plummer, 2005). However, as a consequence of their relatively poor productivity and the difficulties in predicting their behavior with respect to flow and solute transport, these aquifers are presently under-exploited. Therefore, predictive capabilities relating flow and transport processes remain severely limited (Berkowitz, 2002).

Recent results have described typical profiles in crystalline aquifers resulting from decreasing weathering intensity from surface to depth (Chilton and Smith-Carington, 1984; Chilton and Foster, 1995; Wyns et al., 2004; Dewandel et al., 2006; Hrkal et al.,

* Corresponding author. Tel.: +33 5 57 12 10 18.

E-mail address: jessy.jaunat@egid.u-bordeaux3.fr (J. Jaunat).

2009; Courtois et al., 2010; Lachassagne et al., 2011). Hard-rock aquifers are divided into three major zones.

- (1) The unconsolidated saprolite, called the weathered layer, assumes a capacitive function and mostly ensures the storage role of the aquifer (Acworth, 1987; Houston and Lewis, 1988; White et al., 2001; Maréchal et al., 2003, 2004; Wyns et al., 2004; Dewandel et al., 2006; Yao, 2009; Courtois et al., 2010). This layer is often developed over several tens of meters. It can, however, be drastically reduced and even absent in eroded areas.
- (2) The underlying fissured zone shows a lower degree of weathering and ensures the transmissive function of the aquifer. The density of the fractures decrease with depth towards the base of the weathering profile which results in a decrease of the hydraulic conductivity (Lachassagne et al., 2001, 2011; Wyns et al., 2004; Dewandel et al., 2006). When the weathered layer is absent, this fissured horizon also assumes a capacitive function.

^{0883-2927/\$ -} see front matter © 2012 Elsevier Ltd. All rights reserved. http://dx.doi.org/10.1016/j.apgeochem.2012.06.009

(3) Finally, the deeper part of the aquifer corresponds to the fresh and fractured rock where the main permeability is related to tectonic fractures. Even if these fractures may have a similar permeability to that of the overlying horizon, in most contexts, their density is very low at depth. Because of technical difficulties in finding these active fractures, this horizon is often considered as almost impermeable (Maréchal et al., 2004).

Because of the differences in the hydrogeological properties of the weathered and the fissured layer, the water flowpaths are also different in these two horizons along with the water geochemistry and apparent ages. Therefore, in a hard-rock aquifer, the spatial variability in hydrodynamic properties and groundwater geochemistry is often very great.

Groundwater apparent ages in hard-rock aquifers are poorly constrained and cover a wide range. For example, Mazurek et al. (1996) proposed values ranging from 0 to a few centuries. However, groundwater age can be used to characterize the groundwater flow system. Important parameters such as groundwater velocity, contaminant transport or sustainability of groundwater abstraction may be estimated from groundwater age (Stuart et al., 2010). Furthermore, another important use of groundwater dating is for calibration of groundwater flow models (Bockgard et al., 2004). Groundwater residence time can be assessed by the means of environmental tracers. In case of young groundwater (recharged within the past 50 a), ³H, CFCs (chlorofluorocarbons) and SF6 (Sulfur hexafluoride) have been widely used and the number of published examples is increasing (e.g. Busenberg and Plummer, 1992; Dunkle et al., 1993; Plummer et al., 2001; De Vries and Simmers, 2002; Rademacher et al., 2003; Bockgard et al., 2004; Toth and Katz, 2006; Ayraud et al., 2006, 2008; Gourcy et al., 2009; Stuart et al., 2010).

Groundwater apparent age determination associated with geochemical characterization appears then to be a key parameter to understand the hydrochemical and physical functioning of aquifers, pollution transfer and mixing processes (Cook and Solomon, 1997; Modica et al., 1998; Rademacher et al., 2003; Huneau et al., 2001; Cook et al., 2005; McGuire et al., 2005; Toth and Katz, 2006; Ayraud et al., 2008). Only a few investigations in hard-rock aquifers have combined geological characterization, groundwater chemistry and residence time determination (Busenberg and Plummer, 1997; Aeschbach-Hertig et al., 1998; Plummer et al., 2001; Bockgard et al., 2004; Rademacher et al., 2003; Ayraud et al., 2008; Stuart et al., 2010). Furthermore, no studies have tried to relate various weathering profiles to the distribution of groundwater flowpaths. The weathering model described above remains to be considered as a distinction between various reservoirs with different hydrogeological properties. The relationships of flow-line distribution with weathering properties have not been characterized. There is also no analysis of residence-time distribution with respect to the weathering profile.

The purpose of this study is an attempt to fill this gap and to investigate the different flowpaths of a hard-rock aquifer in a semi-mountainous context through hydrogeochemical characterization related to groundwater apparent age determination. With an area of 45 km², the gneissic aquifer of the Ursuya Mount is a limited aquifer which constitutes the top of the western Pyrenean chain. Various lithologies and the development of water-rock interaction have been precisely characterized. The spatial variability of hydrogeochemical parameters and ages of groundwater are used to define the different flowpaths existing in the aquifer network. They are then related to the weathering profile previously defined.

2. Geological and hydrogeological settings

Located in the Northern Basque Country (Southwestern France) at 25 km from the city of Bayonne and from the Atlantic coast, the Ursuya massif is the first relief of the northwestern part of the Pyrenees. The Ursuya Mount is made up of two metamorphic formations distributed between 40 m ASL (Nive River bed) and 678 m ASL (Ursuya mount, Fig. 1 part 1). Basic gneisses are located in the highest elevations and the rest of the study area is made of paragneisses characterized by high concentrations of biotite (Boissonnas et al., 1974). Thin sections of metamorphosed limestone have also been observed in some boreholes (Boissonnas et al., 1974; Armand et al., 1995; Armand and Triscos, 1999) but their distribution is poorly defined. Due to the special situation of this massif beside the Pyrenees, these Precambrian crystalline formations are affected by a strong regional metamorphism. Furthermore, the Ursuya Mount is strongly fractured and shows a high density of lineaments (Fig. 1 part 2). The study area is often covered by a greater or lesser important layer of weathered material (frequently more than 10 m). Fig. 1 (part 3) shows the extension of this horizon and of the fissured one. This map is the result of field observations. aerial imagery interpretation and drill cutting information. The fissured layer is largely represented in the highest parts of the Ursuya Mount (from 350 m ASL) and in the most incised valleys. The weathered layer is distributed between 100 and 350 m ASL. The transition between these two layers is gradual with increasing weathering from the fissured to the weathered layer.

The climate of the study area is temperate oceanic. The mean annual precipitation in the Biarritz-Anglet station, 25 km from the study area $(-1^{\circ}31'54''; 43^{\circ}28'18''; 69 \text{ mASL})$ is about 1510 mm a⁻¹ (calculated from a 46-a record, provided by Meteo France). The estimated effective rainfall, using a Penman–Monteith type computation, is of 653 mm a⁻¹. The mean annual precipitation on the Ursuya Mount (600 m ASL, Fig. 1 parts 1 and 2), calculated from the daily data collected between August 2009 and September 2011 is of 1440 mm a⁻¹ and 1420 mm a⁻¹ in Biarritz-Anglet station for the same period. The estimated effective rainfall is 624 mm a⁻¹. This corresponds to 43% of the total precipitation (43% between 1964 and 2010 and 45% between 2009 and 2011).

Between 1994 and 2003, 43 boreholes were drilled over the Ursuya massif area in order to respond to the increasing water needs in the northwestern Basque Country. Of these boreholes, 34 were dry or too unproductive to allow viable sustainable exploitation. Presently, only 9 boreholes still exist in the study area, of which merely 5 are operating. These boreholes have allowed a lot of geological observations. Unfortunately, only a few hydrodynamic investigations have been done. The hydraulic conductivities measured vary from 2×10^{-7} m s⁻¹ to 1×10^{-1} m s⁻¹, storage coefficients from 9×10^{-5} to 1×10^{-2} and transmissivity from 1×10^{-5} m s⁻² to 4×10^{-3} m s⁻². These values and the observed heterogeneity are characteristic of fissured media (Taylor and Howard, 2000; Maréchal et al., 2004; Dewandel et al., 2005). In addition to these boreholes, 101 springs are exploited among more than 190 registered discharge points.

3. Methods

3.1. Sampled springs and boreholes

Since summer 2009, 14 sampling points from the 190 springs of the Ursuya mount were selected for monitoring (Fig. 1 part 1 and Table 1). This choice was based on the geochemical type and on the geographical and geological situation of these perennial springs.

²⁰⁵⁴

Annexe C

J. Jaunat et al./Applied Geochemistry 27 (2012) 2053-2067



Fig. 1. (1) Ursuya topography and geology and location of sampling points; (2) fracturing; (3) surface lithology.

This sample network allowed all the geographical and geological contexts in which springs exist on the Ursuya massif to be observed. Furthermore, the four non-exploited boreholes (Fig. 1 part 1 and Table 1) were also monitored, which allowed observation of the deeper water. The five exploited boreholes (Fig. 1 part 1 and Table 1) were occasionally sampled for geochemical analyses.

All the boreholes have been sampled for ${}^{3}H$, CFC and SF₆ content. Only 11 springs have been sampled for dating with CFCs and SF₆ since the spring configuration, especially for non-exploited springs, did not guarantee sampling without atmospheric contact.

3.2. Sample collection and analytical methods

3.2.1. Geochemistry

In situ parameters and major ions were measured monthly at each site between July 2009 and December 2011. Electrical Conductivity (EC), Temperature (*T*) and pH were measured using a WTW Cond 3310 meter and a WTW pH 3310 meter. Bicarbonate was determined in the field using a HACH digital titrimeter. Samples for major element analysis were filtered through 0.45 µm membranes and were collected in polyethylene bottles. Samples were stored at 4 °C and major ions were determined by HPLC using a Dionex 320 chromatograph (IonPac CS16) for the cations and a Dionex 1100 chromatograph (IonPac AS11-HC) for the anions. The quality of the chemical analysis was checked by calculating the ionic balance error. Analyses were rejected if the ionic balance error was greater than 10%. The low mineralization of the studied water makes it difficult to have better precision. Sampling in the unexploited boreholes was performed with polyethylene ecobailer samplers. The sampling depths are indicated in Table 1. For exploited boreholes, water was sampled directly at the tap in the outlet of the well. All the major ion analyses were performed at the laboratory of EA 4592 Géoressources & Environnement, University of Bordeaux.

3.2.2. Dating tracers, excess air and recharge temperature

Tritium concentration in groundwater may be used as an indicator of groundwater age by comparison with historical records

2055

Table 1					
Sampling point	coordinates,	exploitation	and	geological	characteristic

2056

Name	Туре	Exploitation	Longitude (°/min/s)	Latitude (°/min/s)	Z (m ASL)	Geology/surface lithology (sampling depth for boreholes)
Ar1	Spring	Exploited	-11957.7	432132.1	260	Weathered layer
C3	Spring	Non-exploited	-12013.0	43 20 46.7	510	Fissured layer
H20	Spring	Exploited	-11946.7	43 20 51.2	490	Fissured layer
H2	Spring	Exploited	-11940.7	43217.0	340	Weathered layer
lp6	Spring	Exploited	-12159.5	432119.4	160	Weathered layer
La10c	Spring	Exploited	-12055.1	43 20 25.3	220	Fissured layer
La161	Spring	Exploited	-12113.7	432113.3	220	Limit weathered/fissured
La7l	Spring	Exploited	-12127.8	432131.9	140	Weathered layer
Mac	Spring	Exploited	-12020.9	432038.9	580	Fissured layer
Esp	Spring	Exploited	-11839.8	432052.3	380	Weathered layer
Pe18	Spring	Exploited	-1220.6	432027.6	210	Weathered layer
Sc2	Spring	Private exploitation	-1209.6	432017.8	375	Fissured layer
Sc4	Spring	Private exploitation	-12011.2	431951.6	205	Weathered layer
Se3	Spring	Non-exploited	-11713.8	43 21 39.9	205	Weathered layer
Ar3	Borehole	Exploited	-12022.1	432127.4	250	Paragneiss (32 m)
Ar5	Borehole	Exploited	-12021.2	432123.9	265	Paragneiss (25 m)
Ip2bis	Borehole	Non-exploited	-12158.2	432119.7	150	Gneiss, cipolins (40-50 m)
Osp5	Borehole	Exploited	-11836.2	432140.8	170	Paragneiss (42 m)
Osp9	Borehole	Non-exploited	-11853.8	432136.2	175	Paragneiss, cipolins (40-45 m)
Pe4	Borehole	Non-exploited	-1223.3	43 20 26.9	215	Paragneiss (40 m to 45 m)
Pe5	Borehole	Non-exploited	-12154.4	432025.2	215	Paragneiss (15 m to 25 m)
Pit11	Borehole	Exploited	-11937.7	432121.3	280	Paragneiss (21 m)
Pit16	Borehole	Exploited	-11947.2	432123.0	310	Paragneiss (36 m)

of elevated ³H levels in precipitation, which resulted from atmospheric thermonuclear testing in the early 1950s to late 1970s. Sampling for ³H analyses was carried out in polyethylene bottles in September 2010 and July 2011. Analyses were conducted at the Hydrogeology Department of the University of Avignon by electrolytic enrichment (Kaufmann and Libby, 1954) and the liquid scintillation counting method (Thatcher et al., 1977).

The use of the man-made gases CFCs and SF_6 concentrations in natural waters as a potential dating tool was recognized in the mid-1970s. Detectable concentrations of CFCs and SF_6 are found in post-1950 groundwater. The presence of CFCs and SF_6 in groundwater indicates recharge after 1950, or mixing of older waters with post-1950 water (Busenberg and Plummer, 1992).

Because of the stabilization of the atmospheric concentration of ³H since the 1970s, CFCs and SF₆ are better tools for post-70 recharged groundwater. In fact, atmospheric concentrations of SF6 are expected to continue to increase into the 21st century (Ko et al., 1993). This enables the continued use of SF₆ as a hydrologic tracer in the future. In contrast, CFCs have atmospheric mixing ratios that have decreased since the 1990s. Moreover, though there are numerous examples of successful CFC applications, CFC dating is quite complicated, notably due to the behavior of gas in the unsaturated zone, local contamination (Oster et al., 1996), degradation processes in anoxic environments (Hinsby et al., 2007; Sebol et al., 2007) and the need for additional parameters such as the estimation of excess air, which is based on the Ne/Ar ratio or the determination of different noble gases (Heaton and Vogel, 1981; Beyerle et al., 1999; Aeschbach-Hertig et al., 1998; Gooddy et al., 2006; Gourcy et al., 2009). Sulfur hexafluoride has many advantages as an environmental tracer in comparison to CFCs. Sulfur hexafluoride does not react with the substrate or sorb onto aquifer organic matter and apparently does not biodegrade, even in highly reducing environments as is the case with chlorofluorocarbons (Busenberg and Plummer, 2000; Koh et al., 2007). However, some natural sources of SF6 have been highlighted in granitic environments (Harnisch et al., 1996; Harnisch and Eisenhauer, 1998).

Sampling for rare gases was conducted in summer 2011. In the non-exploited boreholes, the water was pumped until electric conductivity stability was reached before sampling for CFCs and SF_6 measurements. In these four boreholes, chemical and flow logging were carried out in 2010 and specific levels corresponding to water influxes were selected to be sampled for groundwater age determination. A submersible pump (Grundfoss MP1) was used and placed immediately above these levels. For exploited boreholes, water was sampled directly from the tap at the outlet of the well avoiding any mixing with air. Spring water was sampled directly at the emergence. In some cases it was necessary to increase the pressure by reducing the flow opening.

Waters for CFCs and SF₆ analyses were sampled in stainlesssteel ampoules after washing through at least three volumes of the ampoule before closing it. No contact with air was allowed during sampling. Water for noble gas analyses was sampled in 500 mL glass bottles by overflushing. The bottles were submerged in flowing water, flushed, and capped without headspace.

The analyses were performed at the Geosciences Rennes Laboratory with the methodology described in Labasque et al. (2006) and Ayraud et al. (2008). Groundwater CFC and SF₆ concentrations were obtained by degassing water samples by N₂ stripping. Gases were trapped in a stainless-steel tube filled with Porasil C and maintained at -100 °C in an ethanol bath. After 10 min of pre-concentration, the gases were injected into a gas chromatograph equipped with an electron capture detector (GC–ECD) by immersing the trap into boiling water. The analytical uncertainty is estimated to be 1% for CFCs (Labasque et al., 2006; Ayraud et al., 2008) and near 5% for SF₆. Thus, the global uncertainty on age, including sampling, analysis, selection of the recharge temperature in Henry's law, and dispersion- adsorption effects, is estimated to ±2 a.

Excess air and recharge temperature has been deduced from Ar and Ne measurements (Labasque et al., 2006; Ayraud et al., 2008). Noble gases are extracted by head-space extraction with a He phase. They were then determined using a micro-gas chromatograph (GC 3000, SRA instruments). Uncertainties are around 3% for Ne measurements (water equilibrated with atmosphere at $12 \,^{\circ}$ C) and less than 2% for Ar. This analysis allows determining the Ne/Ar ratio and computing an excess air contribution as well as recharge temperature. The calculations assume an average elevation for the samples of 500 m ASL. Excess air calculation is used to correct SF₆ data which could be greatly influenced by it in contrast to CFCs (Maiss and Brenninkmeijer, 1998; Plummer et al., 2001; Vittecoq et al., 2007; Ayraud et al., 2008).

The CFCs and SF₆ concentrations obtained by chromatographic analysis were converted to atmospheric mixing ratios (pptv) according to the estimated recharge temperature and were then compared to the atmospheric evolution curve (USGS CFC lab web site, 2011 compiled from other sources: http://water.usgs.gov/ lab/software/air_curve/) to determine the year of recharge and thus the groundwater apparent age.

3.2.3. Estimation of apparent age

Three CFCs and SF₆ were determined in this study, which gave four independent recharge dates for each sample. Contamination or degradation of one or two CFCs or SF₆ is highlighted by the inter-comparison between the four recharge dates obtained. The apparent water recharge date is the average value of the recharge dates obtained through the different CFCs and SF₆ without taking into account the dates for which a contamination or a degradation is suspected.

Nevertheless, the groundwater age obtained by CFC–SF₆ analyses may differ from the true mean groundwater age in the case of mixing processes (Katz et al., 2004; Weissmann et al., 2002), or matrix diffusion and the term 'apparent age' is used throughout the paper. Also, the terms "recent water" correspond to ages from 0 to 10 a (limit of precision of the four tracers) and the term "old water" corresponds to apparent ages older than 50 a (limit of application of the four tracers).

Two hypothetical lump parametric models, piston flow model (Maloszewski and Zuber, 1996) and exponential model (Maloszewski and Zuber, 1996), were tested to determine the apparent water age. Mixing between two waters of different ages was also tested with a binary mixing model (Cook and Böhlke, 2000). For the piston flow model, an apparent age is given in number of years since infiltration into the saturated zone. In this model, it is assumed that all the flow lines have the same transit times. The piston flow model is only suitable for confined aquifers. In the exponential model, an exponential distribution of transit times is assumed, i.e., the shortest line has the transit time of zero and the longest line has a transit time of infinity. This model can be used in unconfined and partially confined flow systems. For the exponential model, the Mean Residence Time (MRT) is given. The MRT corresponds to the time (in years) for which 2/3 of the water lines are younger. In the case of the binary mixing model, a mixture of young and old water is assumed. The proportion of the two poles of waters is given.

Models were selected on the basis of available geological information but also on the adequacy of the four tracers (in case of no degradation or contamination) for the models. Indeed, given the high geologic and hydrodynamic heterogeneity of hard-rock aquifer due to the weathering model, different models can be used in the same system. In the fissured layer, the water flows are in unconfined conditions. Thus, dating of groundwater from this layer can only be performed with the exponential model. However, due to the definition of the weathered layer and to the application conditions of the models, either one of the three models can be applied for groundwater in this layer, according to the degree of weathering. Details on flow conditions and, therefore, on the proper dating model can also be obtained by borehole logging and pumping tests. Moreover, when geological or hydrological data are not enough, the use of four tracers is also helpful in the choice of the model. Indeed, the four tracers may not give the same apparent age for an invalid model or the measured concentrations may not respond to the model characteristics. In this case, the model and age consistency for all tracers is validated.

4. Results

All the geochemical parameters, noble gases and ³H concentrations are presented in Table 2.

4.1. Groundwater quality

While globally showing low mineralization, groundwaters show a high spatial variability in their chemistry all over the study site (Table 2 and Fig. 2). In springs, the mean electrical conductivity ranges between 46 μ S cm⁻¹, observed in the Mac water (coefficient of variation 2.4%) and 180 μ S cm⁻¹ observed in Sc4, (coefficient of variation 5.3%). For spring waters, three classes of mineralization can be defined. The first class is the groundwater under anthropogenic influence with the highest mineralization largely influenced by NO₃⁻ contamination (particularly Sc4).

The second class includes the springs with an average conductivity ranging from 70 µS cm-1 to 120 µS cm-1. The springs Pe18, Ip6, Sc2, Se3, La7l, La16l, Ar1, H2 and Esp belong to this class for which the mean conductivity is of 93 $\mu S\,cm^{-1}$ (Table 2). The springs C3, H20, Mac, and La10c are grouped in the third class. The latter shows the lowest mineralization observed over the massif of Ursuya. The electrical conductivity in this class varies between 40 μS cm⁻¹ and 80 μS cm⁻¹ with a mean of about 61 µS cm⁻¹ (Table 2). For the boreholes, a classification based on mineralization is also possible. Therefore, the groundwater from the boreholes Ar3, Ar5, Pe4, Pe5, Pit11 and Pit16 can be distinguished from those in Ip2, Osp5 and Osp9. The electrical conductivity of the water from the first group is close to that of the springs (Table 2) with a minimum mean of 64 µS cm⁻¹ in Pe5 (coefficient of variation 13%) and a maximum in Pe4 (mean of 177 µS cm⁻¹ with a coefficient of variation of 12.8%). For the second group, the mineralization is much higher (Table 2). In Ip2 the mean electrical conductivity is of 265 µS cm⁻¹ (coefficient of variation 5.3%), in Osp5 it is 326 µS cm⁻¹ and 374 µS cm⁻¹ in Osp9 (16.5%).

Fig. 2 shows the spatial variation of water types in springs and boreholes. Four water-types are observed in spring water. The water type is Ca-HCO₃ for Ar1, H2 and Esp, and Na-HCO₃ for C3, H2O, La7l and La16l. The water-type of Ip6, La10c, Mac, Pe18, Sc2 and Se3 is Na-Cl and is Ca-Cl for Sc4. Fig. 2 also displays the water-type of the boreholes, all of Ca-HCO₃ water-type except Pe5 and Ar5, which are of Na-Cl and Na-HCO₃ water-type, respectively.

4.2. Estimation of recharge temperature and excess air

The concentrations of dissolved Ne and Ar were used to estimate recharge temperatures and excess air (Herzberg and Mazor, 1979; Heaton and Vogel, 1981; Busenberg et al., 1993). The Ar versus Ne graph (Fig. 3) shows the repartition of the sampled points in relation to solubility equilibrium and excess air. The Ne concentrations range from $9.38 \ 10^{-9} \ mol \ L^{-1}$ to $1.63 \ 10^{-8} \ mol \ L^{-1}$ and the Ar concentrations from $1.62 \ 10^{-5} \ mol \ L^{-1}$ to $2.05 \ 10^{-5} \ mol \ L^{-1}$ (Table 2). Fig. 3 shows the differences in Ar and Ne concentrations between springs and boreholes. The mean recharge temperature for boreholes is estimated to be $11 \ ^{\circ}$ C and $12 \ ^{\circ}$ C for springs.

The excess air measurements range from 1.5 mL L^{-1} to 11 mL L^{-1} with an average of 6 mL L^{-1} . Two types can be distinguished. Excess air greater than 5 mL L^{-1} (springs C3, H2, H20, Ip6, La10c, Mac and Pe18; boreholes Ar3, Pit11, Ar5, Ip2, Osp5 and Pe5) indicates that samples have entrapped air during fast recharge through highly permeable fractures in rocks (Busenberg and Plummer, 1992; Dunkle et al., 1993; Koh et al., 2007). The four springs emerging from the fissured layer (Table 1) belong to this class. The values under 5 mL L^{-1} define the second class. The boreholes Pit16 and Pe4 and spring La71 demonstrate very low excess air (from 1.5 mL L^{-1} to 2.5 mL L^{-1}). Between these two extremes, La16l, Pe5 and Osp9 have an excess air between $3.5 \text{ and } 5 \text{ mL L}^{-1}$.

Table 2 Mean field pa variation coe	aramet	ters, mean io it in%).	nic compositi	ion of ground	lwater, quality co	ontrol on the analy	ses, dissolved ga	ises and ³ H conce	entrations (N: r	umber of san	nples for field par	rameters and io	nic comp	osition, IB:	ionic balance	in parentheses:
Sample ID	z	EC (µS/cm)	Hq	T (°C)	HCO_{3}^{-1} (mg L ⁻¹)	CI ⁻ (mg L ⁻¹)	$s0_4^{2-}$ (mg L ⁻¹)	NO_{3}^{-1} (mg L ⁻¹)	$\frac{Na^{\ast}}{(mg \ L^{-1})}$	$({\rm mg}L^{-1})$	Mg^{2+} (mg L ⁻¹)	Ca ²⁺ (mg L ⁻¹)	1B (%)	(TU) H ^E	Ne (mol L ⁻¹)	Ar (mol L ⁻¹)
AR1	19	105 (1.7)	6.10 (1.9)	12.9 (2.3)	27 (9.1)	9.28 (9.1)	2.06 (41.9)	10.22 (18.2)	7.70 (4.2)	1.45	4.03 (6.3)	8.51 (10.7)	9.27	2.6 ± 0.6	1.65E-8	1.79E-5
۵	18	69 (13.4)	6.39 (5.9)	10.8 (5.1)	16 (14.9)	6.34 (14.1)	4.61 (58.46)	5.38 (22.3)	5.46 (8.3)	(15.8) 0.82	2.11 (16.0)	6.83 (15.65)	11.2	2.9±0.6	1.37E-8	1.79 E-5
H20	17	48 (7.3)	5.94 (2.4)	11.6 (3.9)	11 (18.6)	5.89 (31.0)	2.40 (36.8)	2.66 (26.0)	5.34 (9.5)	0.86	1.61 (23.2)	2.83 (37.2)	13.1	3.6 ± 0.3	1.43E-8	1.80 E-5
H2	17	97 (4.0)	6.54 (2.1)	12.4 (1.9)	36 (3.9)	7.59 (27.4)	2.60 (43.2)	1.64 (28.1)	7.69 (4.1)	(21.5) 1.24	3.38 (11.5)	8.61 (13.3)	9.6	3.1 ± 0.3	1.37E-8	1.86 E-5
lp6	19	107 (5.8)	5.84 (2.9)	13.4 (4.6)	15 (6.8)	11.51 (30.5)	1.43 (41.0)	17.59 (24.8)	8.41 (10.2)	(21.8) 3.57	3.70 (20.19)	6.17 (24.8)	11.2	3.6 ± 0.3	1.46E-8	1.84 E-5
La10c	80	79 (2.6)	5.59 (3.6)	13.1 (0.8)	10 (20.1)	9.20 (10.81)	0.78 (54.3)	13.40 (14.8)	6.88 (9.3)	(13.7)	2.85 (18.6)	4.60 (19.0)	9.1	3.3±0.5	1.26E-8	1.77 E-5
La 161	100	53 (3.7)	5.85	12.8 (8.3)	15 (24.4)	7.50 (19.5)	1.89 (49.5)	2.04 (63.4)	7.23 (12.6)	(23.8) 0.98	1.81 (25.8)	3.24 (47.8)	9.7	2.5±0.5	2.22E-8	1.79 E-5
			(4.03)							(20.9)						
La7l	19	109 (2.2)	5.85 (2.7)	13.3 (3.1)	21 (9.6)	10.79 (36.7)	1.22 (41.04)	17.88 (17.92)	10.42 (6.9)	1.84	4.45 (11.6)	5.87 (21.6)	9.0	2.8 ± 0.6	1.02E-8	1.62 E-5
Mac	19	46 (2.41)	5.42 (4.7)	11.3 (0.8)	5 (24.5)	6.43 (15.09)	0.22 (50.76)	7.58 (14.8)	5.38 (9.8)	0.96	1.61 (19.5)	1.79 (43.6)	9.7	3.1 ± 0.4	1.23E-8	1.74 E-5
Esp	15	89 (4.3)	6.62 (2.4)	12.0 (2.7)	32 (7.5)	6.93 (20.7)	1.07 (55.0)	4.81 (17.7)	6.64(8.2)	1.23	2.77 (22.88)	8.41 (19.0)	6.5	3.2 ± 0.5		
Dalg	02	77 (4.8)	(23 (33)	13 4 (4 1)	(616)11	0.08 (13 0)	1 81 (47.4)	(P 21) 8P 01	(48)	(15.6) 1.45	2 52 (11 0)	(19.1) 78.7	10.8	21+05	1 305.8	1 SO E-5
013.	24	(0°b) 11	(* ' c) co'c	(11%) 6/01	(717) 11	(cert) one	(1.71) 1011	(100) 0101	(D't-) 77'''	(17.2)	(2:11) 77:7	(t'c:) /o't	0,01		0-1001	
5c2	18	63 (4.6)	5.89 (3.3)	13.1 (1.4)	10 (16.2)	7.79 (8.1)	2.26 (48.3)	6.72 (26.6)	6.30 (8.0)	1.00	1.91 (16.5)	4.30 (28.9)	10.6	3.0 ± 0.5		
		1001001			10 017 10				1000	(25.8)		10 237 02 35	5			
Se3	16	60 (1.8) 60 (1.8)	6.22 (3.6) 6.32 (3.4)	14.7 (5.4) 13.1 (1.1)	21 (10.8) 15 (9.4)	(27) 19.36 8.21 (27.1)	1.71 (90.7)	32.04 (17.0) 4.78 (45.0)	9.89 (6.1) 6.74 (5.5)	3.17 (7.8) 0.96	4.77 (11.8) 1.64 (17.7)	16.38 (12.0) 4.58 (22.2)	6.0 7.5	2.8 ± 0.5 3.4 ± 0.5		
						, ,				(14.7)						
Ar3		102	6.66	13.9	34	9.81	2.57	4.38	8.01	1.28	3.61	8.22	5.8	3.0 ± 0.5	1.64E-S	1.98 E-5
A15	- 1	77	6.24	13.7	36	7.36	1.78	4.38	6.62	66.0	3.05	5.16	2.3	3.3±0.3	1.25E-8	1.82 E-5
siazqi	=	(5.C) C02	/./8 (1.b)	(7.0) 5.41	(0.2) 851	(9.01) 11.6	(0.24) C1.2	(7.52) с/.0	8.bU (8.9)	2.00	4.04 (33.10)	(5.21) 85.65	r, T	5.4 ± 0.5	2-325-1	C-7 / 8.1
Osp5	-	326	7.37	14.7	158	14.40	4.37	18.79	10.06	3.63	5.93	53.66	4.4	3.7 ± 0.3	1.33E-8	1.83 E-5
Osp9	00	374	7.46 (2.8)	14.5	134 (6.2)	30.97 (69.3)	33.86 (11.8)	0.18 (57.5)	12.13	1.80	5.89 (19.9)	58.83 (10.8)	1.8	3.0 ± 0.3	1.12E-8	1.71 E-5
	6	(16.5)		(10.1)	100 0000 000				(12.5)	(16.8)						
ba.	ת	(12.8)	0.45 (3.1)	14.0 (5.1)	(s.0s) 24	(50.7) 71.71	(6.20) 61.61	(200) (2002)	(071) 05%	5.41	5.45 (10.1)	(8.05) /0.01	đ.1	C.U I S.S	2-360'I	C-3 /0'1
Pe5	6	64 (13.0)	5.59	13.7	6 (27.2)	9.80 (20.7)	1.16 (55.9)	5.22 (11.0)	7.67 (27.1)	1.36	1.56 (16.4)	3.01 (42.5)	6.3	2.9 ± 0.4	1.14E-S	1.71 E-5
			(2.08)	(11.3)	:					(20.6)	1		6			
Pit16		149	7.03	13.8	50	14.03	0.51	7.80	7.58	4,30	4.37	14.64	6.1	3.3±0.5	1.b4E-8 1.38E-8	2.05 E-5

Annexe C

2058

J. Jaunat et al./Applied Geochemistry 27 (2012) 2053-2067



Fig. 2. Stiff diagrams of groundwater from boreholes (to the left) and from springs (to the right).



Fig. 3. Comparison of concentrations of dissolved Ne and Ar in relation to solubility equilibrium and excess air. The calculations assume an average elevation of 500 m ASL.

4.3. Apparent groundwater ages

All the collected samples have ³H concentration ranging from 2.5 \pm 0.5 TU to 3.7 \pm 0.3 TU with an average value of 3.1 \pm 0.4 TU (Table 2). These values are close to the average ³H content of the Dax rainfall (station located about 50 km north of the study area and under clear atmospheric Atlantic influence) measured between 1997 and 1998 (3.1 TU, seven samples) indicating that Ursuy a mount groundwater was recently recharged (Jirakova et al., 2009; Petelet-Giraud et al., 2005).

The measured concentrations of CFCs and SF₆ in groundwater vary between 2.25 pptv and 9.75 pptv for SF₆, 158.8 pptv and 577.1 pptv for CFC-12, 12.2 pptv and 263.4 pptv for CFC-11 and 6.2 pptv and 84.1 pptv for CFC-113. Table 3 gives the rare gas concentrations and apparent ages resulting from the three applied models. The choice of the model is also explained in Table 3. It is based on geological and hydrogeological parameters or on a validation with the tracer concentrations. The Piston flow model gives the best results using the various available environmental tracers. It is the more suitable model for four springs (recent to 22 a) and five boreholes (10–42 a; Table 3). The Binary mixing model is the best model for two springs (mixing between 30% and 45% of a 25 a pole and a recent one) and four boreholes (5% to 95% of recent water and a pole of 25 a to old water; Table 3). The Exponential model is the more suitable for the four springs emerging from the fissured layer (MRT from 11 to 15 a; Tables 1 and 3).

2059

A degradation of CFC-11 and CFC-113 is suspected for OSP9. Microbial degradation in a reducing environment may affect CFC-11 and also other CFCs (Khalil and Rasmussen, 1989; Semprini et al., 1992; Cook et al., 1995; Oster et al., 1996; Shapiro et al., 1997). The CFCs sequence of degradation is: CFC-11 > CFC-113 > CFC-12. It appears when the conditions for NO₃⁻ reduction are observed (Semprini et al., 1992; Höhener et al., 2003). Only CFC-12 was taken into consideration in this case.

Sulfur hexafluoride contamination of terrigenic origin is suspected for some samples (Ip2, Osp5 and Osp9). Indeed, Harnisch et al. (1996) and Harnisch and Eisenhauer (1998) described the presence of SF_6 in post-1960 groundwater circulating in fluorites

Annexe C

in bold).	
nodels (when relevant) and choice of the better model (result	Comment/conclusion
dest water calculated with the three m	Binary mixing model
fRT or proportion of recent and old	Exponential model (MRT in
apparent groundwater age or N	Piston flow modelled
ratio of CFCs and SF ₆ .	CFC (pptv)
mixing	${\rm SF}_6$
ble 3 nospheric	Sample

Sample	SF_6	CFC (p)	ptv)		Piston flow modelled	Exponential model (MRT in	Binary mixing model	Comment/conclusion
8	(pptv)				(years)	years)		
		12	=	113				
AR1	6.45	398.4	186.8	58.5	26 (invalid for SF ₆)	25 (invalid for SF_6)	Recent + 30% of old water	Four tracers only consistent for binary mixing
0	4.77	509.7	227.4	74.6	20	11	Recent + 10% of old water	Three models are valid but the flows are unconfined (fissured layer)
H20	5.03	453.5	224.7	71.5	20 (invalid for SF ₆)	15	Recent + 10% of old water	Three models are valid but the flows are unconfined (fissured layer)
H2	5.44	556.4	239.1	83.8	24	10 (invalid for CFC-12 and CFC-	Recent + 5% of old water (valid only for	Four tracers only consistent for piston flow model
						(113)	CFC-11)	
1p6	2.25	526.0	246.2	76.9	20	8 (invalid for SF ₆)	Invalid	Four tracers only consistent for piston flow model
La10c	5.69	476.7	232.9	71.5	18 (Invalid for SF ₆)	14	Recent + 8% of old water	Two models are valid but the flows are unconfined (fissured layer)
La161	6.38	554.0	200.5	71.5	Recent water	Invalid	Recent + 5% of old water (valid only for	Four tracers only consistent for piston flow model
							CFC-113)	
La7l	7.39	456.6	212.1	68.8	22 (Invalid for SF ₆)	Invalid	Invalid	Three tracers only consistent for piston flow model
Mac	5.92	492.9	239.5	70.6	18 (Invalid for SF ₆)	13	Recent + 10% of old water	Two models are valid but the flows are unconfined (fissured layer)
Pe18	4.31	480.4	208.4	58.4	24 (invalid for SF ₆)	Invalid	Recent + 45% of 25 a water	Four tracers only consistent for binary mixing
Ar3	4.7	577.1	245.5	84.1	10	Invalid	Invalid	Four tracers only consistent for piston flow model
Ar5	5.41	493.2	219.5	61	24 (invalid for SF ₆)	17 (invalid for SFs and CFC-12)	Recent + 20% of 30 a water	Four tracers only consistent for binary mixing
Ip2bis	5.8	456.6	212.1	46.7	26	Invalid	Invalid	SF ₆ excess (not used).
								Three tracers only consistent for piston flow model,
0sp5	5.58	432.9	263.4	55.2	23	25 (only valid for CFC-113)	Recent + 25% of old water (only valid for CFC-113)	SF ₆ excess (not used)
								The set of
Oce0	0.75	5165	A A C	10	02	002	Investig	Three tracers only consistent for piston now model SE-avoids downdation of CEC-11 and CEC-113 (only CEC-12 is used)
ordera	1		t. F		2	2.54		The extense, degeneration of events and events (only events to decuja Trace).
								consistent for anomalist and alsten flam model. MDT and sucheds
								consistent for exponential and piston now model, MKI not available in this contact
Pe4	3.26	158.8	12.2	6.2	42	200 (only valid for CFC-11 and CFC-113)	Invalid	Four tracers only consistent for piston flow model
Pe5	4.55	465.7	214.5	62.9	24 (invalid for SF ₆)	Invalid	Recent + 45% of 25 a water	Four tracers only consistent for binary mixing
Pit11	4.65	570.3	231.5	99	Invalid	14 (invalid for CFC-12)	Recent + 15% of old water	Four tracers only consistent for binary mixing
Pit16	60.9	524.6	231.2	73.2	Invalid	Invalid	Recent + 5% of old water	Four tracers only consistent for binary mixing

Table 4

Туре	Sample ID	Dating results	Water type	Excess air (mL L ⁻¹)	Mineralization (µS cm ⁻¹)	Lithology
Springs	Sc4	Not measured	Ca-Cl	Not measured	Mean = 180	Anthropogenic influence
	C3	Exponential model (11 < MRT < 15)	Na-HCO ₃	>5	Mean = 61	Fissured layer
	H20				Max = 84	
	Mac		Na-Cl		Min = 44	
	La10c					
	Pe18	Binary mixing (recent + 45% of 25 a water)				
	Ip6	Piston flow model (20 a)	Na-Cl	>5		
	Sc2	Not measured			Mean = 93	
	Se3			Not measured	Max = 116	Weathered layer
	La71	Piston flow model (recent water and 22 a)	Na-HCO ₃	<5	Min = 71	
	La16l					
	AR1	Binary mixing (recent + 30% of old water)		<5		
	H2	Piston flow model (24 a)	Ca-HCO ₃	>5		
	Esp	Not measured		Not measured		
Boreholes	Pe4	Piston flow model (10 and 42 a)		<5	Mean = 117	Gneiss/paragneiss
	Ar3				Max = 177	
	Pit16	Binary mixing (recent + 5–45% of 25 water to old water)	Ca-HCO ₃		Min = 64	
	Pit11					
	Pe5		Na-Cl	>5		
	Ar5		Na-HCO ₃	>5		
	Osp9		Ca-HCO ₃	<5	Mean = 321	Limestone
	Osp5	Piston flow model (26-30 a)			Max = 265	
	Ip2				Min = 374	

Summary of the different separations based on geological settings, geochemistry and dating measurements.

from granites and gneisses. Busenberg and Plummer (1997) and more recently Koh et al. (2007), Deeds et al. (2008) and Gourcy et al. (2009) found significant concentrations of SF₆ in groundwater of basaltic and crystalline aquifers. The geogenic production of SF₆ is estimated at 1% on a world scale but it can locally represent an important source (Vittecoq et al., 2007). Harnisch and Eisenhauer (1998) showed that SF₆ can be released from certain natural rocks and minerals by heating, crushing and dissolution in water. The occurrence of natural SF₆ seems to be linked to the presence of fluorite, which can occur in the veins of pegmatites and quartz contained in the materials of the massif of Ursuya. Fluorite is also common as an accessory mineral in granites and gneisses (Busenberg and Plummer, 2000). Consequently, SF₆ data may not always be coherent with other data and may give, when used alone, limited information on water ages in these particular geological settings.

Table 4 gives a resume of all the separations obtained from geological settings, geochemical analyses, excess air evaluation and dating tools.

5. Discussion

5.1. Origin of chemical elements - water-rock interaction

The high variability of water geochemistry observed in Table 2 and Fig. 2 can be partly linked to the geology and land use. The five classes of mineralization for spring and boreholes geochemistry presented in Table 4 are partly consistent with this relationship. This relationship is also shown on Fig. 4. For the spring waters, three classes of mineralization were defined. The first class is the groundwater under anthropogenic influence with the highest mineralization. The NO₃⁻ concentration of the Sc4 spring (32.0 mg L⁻¹; Table 2) shows a significant anthropogenic influence compared to other springs. In temperate climates and under forest or grassland, it is considered that natural NO₃⁻ concentration is <10 mg L⁻¹ (Einsiedl and Mayer, 2006; Foster et al., 1982; Bertrand et al., 2010). Considering that the main source of N is fertilizer or manure, the NO3 concentrations indicate varying anthropogenic influence on the whole studied area. The second class includes the springs with an average conductivity compared to all monitored springs (116 µS cm⁻¹ and 71 µS cm⁻¹). This group is the springs discharging from the weathered layer (Fig. 1 and Table 4). The springs discharging from the fissured layer (Fig. 1 and Table 4) are grouped in the third class. The latter shows the lowest mineralization observed over the massif of Ursuya. For the boreholes, this classification is difficult because of a lack of knowledge about the characteristics of the exploited layer and the existence of geochemical processes that will be discussed later on. However, the groundwater flowing in gneiss can be distinguished (conductivity is in the same range as that of the springs) from those flowing in metamorphic limestones (Fig. 4 and Table 4). The limestone formation was observed during drilling (Armand et al., 1995; Armand and Triscos, 1997, 1999) and its influence is reflected by higher electrical conductivity compared to other samples, due mainly to Ca2+ and HCO3 concentrations (Table 2).

Similar observations can be made when considering Mg2+ concentrations (Fig. 4). The springs discharging in the weathered zone have higher Mg^{2+} concentrations (1.3–6.3 mg $L^{-1},$ mean about 3.6 mg L-1) than those discharging in the fissured zone (1.0-4.0 mg L-1, mean about 2.0 mg L-1). The weighted mean concentration of Mg2+ measured in precipitation on the Ursuya mount, for the same period, is about 0.6 mg L-1. Infiltration accounts for 43.3% of the total precipitation. Such infiltration and precipitation concentration ranges lead to a maximum expected mean annual Mg2+ concentration in recharge water of 1.4 mg L-1. Thus, it is considered that concentrations above 1.4 mg L^{-1} imply water-rock interaction, as non-atmospheric Mg2+ is exclusively of terrigeneous origin. It is worth noting that there are globally higher concentrations in the samples from the weathered zones compared to the fissured zone (Fig. 4). This observation is valid for all elements with a principal terrigeneous origin (Ca2+, HCO3). This gradient of mineralization is both the result of different water-rock interactions



Fig. 4. Box plots displaying the EC, Mg²⁺ concentration, Cl⁻ concentration and NO₂⁻ concentration of the groundwater from springs in the weathered and fissured zones and from boreholes. Points represent single sampling.

depending on the geological material (weathered or fissured) and the flow conditions. The latter and, in particular, the transfer time will be discussed later.

Such a relationship is not observed for elements of atmospheric or anthropogenic origin. Nitrate concentrations below 10 mg L⁻¹ can be explained by reduced agricultural land use, but also by a solute transfer time greater than the period corresponding to agricultural activities or by denitrification processes (Gourcy et al., 2009). For the very low NO3 concentrations, a hypothesis of a low to no anthropogenic impact is accepted, the observed concentrations being considered as natural background. The land use confirms this hypothesis except for Osp9 and Pe4. Eight sampling points are clearly affected by an anthropogenic influence with NO₃ concentrations >10 mg L⁻¹ and among them, only Ip6 (17.6 mg L⁻¹), La7l (17.9 mg L⁻¹), Osp5 (18.8 mg L⁻¹) and particularly Sc4 (32.0 mg L-1) showed high NO3 concentrations. These eight sampling points are located in pastures land. These springs and boreholes have mean Cl⁻ concentrations >9 mg L⁻¹ (Table 2). The weighted annual mean concentration of Cl- in precipitation is about 4.1 mg L-1 and the maximum expected mean annual Clconcentration in recharge water is of 9.4 mg L-1. These high Cl concentrations and a positive correlation between Cl- and NO3 $(r^2 = 0.6)$ for these groundwater indicates an anthropogenic origin of Cl- (Saffigna and Keeney, 1977; Hamilton and Helsel, 1995; Martin et al., 2004; Celle-Jeanton et al., 2009).

The Cl⁻ and NO₃⁻ concentrations in the groundwater of Osp9 and Pe4 do not show the same correlation. The NO₃⁻ concentration of near zero in Osp9 compared to the high Cl⁻ concentration (31.0 mg L⁻¹) can be explained by denitrification. Nitrate reduction coupled with pyrite oxidation in aquifers has been reported widely (Strebel et al., 1989; Postma et al., 1991; Robertson et al., 1996; Appelo and Postma, 2005; Ayraud et al., 2006, 2008; Tarits et al., 2006; Vencelides et al., 2010). The presence of sulfide minerals is mentioned by Boissonnas et al. (1974) close to and in the study area. Indeed, pyrite was extracted in the village of Itxassou until 1954. Due to Fe-silicate and sulfide minerals present in crystalline rocks along with low C contents, as soon as water leaves the soil, NO₃⁻ reduction is coupled to sulfide oxidation through an autotrophic denitrification process according to the following equation (Nordstrom and Southam, 1997):

$$5FeS_2 + 14NO_3^- + 4H^+ \rightarrow 7N_2 + 10SO_4^{2-} + 2H_2O + 5Fe^{2+} \eqno(1)$$

This hypothesis is confirmed by the chemistry of Osp9, which shows anoxic conditions (mean O₂ saturation about 2.3% along its depth), and a high mean SO_4^{2-} concentration (33.9 mg L^{-1} , Table 2).

The same process of denitrification can be assumed in the Pe4 borehole. The O₂ saturation is zero from 25 m depth to the bottom and the SO_4^{2-} content is relatively high compared to the other sampling points, with a mean concentration about 14.2 mg L⁻¹ (Table 2).

5.2. Water-rock interactions and apparent groundwater age

Fig. 5 shows the relationships between mineralization and groundwater apparent age. Even if it is difficult to compare apparent age determined through different mixing models, their definitions allow this comparison. Piston apparent ages plot exactly on the determined age, or between 0 and 10 a in the case of recent groundwater. The apparent ages determined with the exponential model are plotted on the MRT, i.e. the age for which 2/3 of the water lines are younger. The plotted MRT can be considered as mixing between 66% of young water (from 0 a), and 33% of the oldest water (up to infinity). Binary mixing plots have to be considered as mixing between recent water (0-10 a) and an oldest proportion. The binary mixings are plotted on the age of the oldest proportion (or between 50 a and infinity in the case of old water). The proportion of the plotted oldest water of the mixture is also given. In Fig. 5, a relationship is shown between apparent ages and mineralization. The range of conductivity of the groundwater from the three boreholes drilled in metamorphosed limestone is generally higher than that of the other sampling points. It is then difficult to compare the electrical conductivity of these three samples with the 16 others. Concerning the four springs emerging in the fissured layer, their electrical conductivities are in the lowest range observed in the massif of Ursuya (between 44 and 61 µS cm-1).



Fig. 5. EC and Mg2+ concentrations versus apparent ages.

The exponential model is applied and the calculated MRT are low, between 11 and 15 a. When the piston flow model is applied, apparent age is strongly correlated with electrical conductivity. Spring La16l has a lower piston apparent age (0-10 a) and lower electrical conductivity. In contrast, the Pe4 borehole has the highest piston apparent age and highest electrical conductivity. Between these two extreme samples, a positive correlation appears between all piston apparent ages and electrical conductivities. For binary mixing, the influence of the oldest water proportion on mineralization is strongly marked for the two boreholes Pit11 and Pit16. The oldest pole is more than 50 a. Even if the proportion of the oldest water is low, the global mineralization of these two samples is among the highest observed on the massif of Ursuya. It can be explained by the very strong mineralization of the oldest water in the mixing besides that of the youngest one. In the same way, the lower proportion of old water in the Pit16 sample compared to that of Pit11 results in a lower electrical conductivity. All these observations show that the transit time is a major factor controlling the chemistry of groundwater. It also shows that, for similar geology, the longer the transit time, even in case of mixing, the greater the mineralization. Fig. 5 also shows the relationhip between Mg2+ concentrations and groundwater apparent ages. Similarly to electrical conductivity, a correlation between Mg2 concentration and apparent age can be observed. Sources of Mg can be found in the minerals from the gneiss and paragneiss of the Ursuya massif such as biotite, amphiboles and cordierite that are very abundant in this area (Boissonnas et al., 1974; Jammes et al., 2009). Considering that Mg2+ has an exclusively terrigenous origin, the correlation is related to water-rock interaction which progresses with residence time increase. The saturation indices computed using the PHREEQC code (Parkhurst and Appelo, 1999) are all negative (except for calcite and dolomite for the water from the borehole Ip2, 0.87 and 1.04, respectively) which demonstrates that equilibrium is not reached and that dissolution is continuous along flowpaths. This explains the greater Mg2+ concentrations, and as for the global mineralization, in older groundwater or on mixing with old groundwater.

5.3. Evidence of differential flowpaths

Therefore, the spatial variability of the chemistry of groundwater in the massif can be attributed to both the different geological materials and the travel time of the groundwater. However, the different types of layers constituting the system will also impact on the groundwater flow patterns.

The different layers of the weathering profile described above have their own hydraulic properties which will define the flowpath conditions. In the fissured one, waters mainly circulate along fractures and fissures, and the flow is mainly governed by the physical properties of the rock heterogeneities such as openings, spacing and connectivity (Singhal and Gupta, 1999; Berkowitz, 2002; Cook, 2003; Neuman, 2005). Where the fissured layer outcrops, these conditions combine to result in rapid groundwater flow under unconfined conditions. In this configuration, the mineralization is low because of a short transit time and low solubility of materials. In contrast, the weathered layer acts more like a porous medium which implies a storage function (Mazurek et al., 1996; Taylor and Howard, 2000; Bonnet et al., 2001; Berkowitz, 2002; Aquilina et al., 2004; Maréchal et al., 2004; Wyns et al., 2004; Ayraud et al., 2008) and, therefore, higher transit times. The chemistry of groundwater flowing in the weathered layer is characterized by higher terrestrial elements concentrations and greater global mineralization because of the longer transit-time and the greater solubility of the intercepted materials. Furthermore, different degrees of weathering can be defined in this layer. This will result in varying thickness, and in hydrodynamic properties more or less favor-

able for flow. Indeed, in weathered materials, porosity and hydraulic conductivity are strongly dependant on the degree of weathering, the more the weathering is developed, the less the initial rock properties are conserved and the less the hydrodynamic characteristics are favorable for groundwater flow. Also, in conditions of strong weathering and great thickness, the weathered layer can be impermeable and act as a hydraulic barrier. In this case, the flow in this layer will be null or quasi null. Groundwater flow is then only allowed in the lesser or non-weathered underlying materials. In the case of less weathering, hydrodynamic properties allow water circulation through the weathered layer but also in the unweathered underlying layer, which is here the fissured one. In this case, mixing between groundwater of the two layers is possible. However, the chemical characteristics of the groundwater of the fissured layer in these conditions are very different from those of the outcropping fissured layer because of a longer transit time.

These different flowpaths are well represented in the massif of Ursuya and can be observed in Fig. 6 which shows the relationship between apparent ages (and the associated calculation model) and flowpath layers.

In the fissured zone, only the exponential model is used and the apparent ages are close to each other, with MRT between 10 and 15 a. These values confirm the rapid groundwater flow and the unconfined conditions described in the definition of this layer. The geochemistry of groundwater from this flowpath is characteristic of rapid transfer time with low mineralization.

In the weathered zone, the piston flow model and binary mixing are applied. When the degree of weathering is high, mixing between groundwater from the weathered and fissured layer is not allowed and the flows are only in the underlying fissured one. The piston flow model correctly represents this flow pathway. In Fig. 6, the low apparent ages of groundwater from the springs H2 and LA16l could be explained by a thinner but well weathered layer. Conversely, the binary mixing model gives a good approximation of mixing between weathered and fissured water. The apparent ages calculated with the binary mixing model in Ursuya massif are the result of mixing between recent waters flowing in a poorly developed weathered layer and the oldest ones flowing in an underlying fissured layer after a long transit time.



Fig. 6. Apparent ages of the groundwater from springs in the weathered zone and fissured zone and from boreholes.

The differences between these two last flow pathways can be illustrated by comparison of the results from boreholes Pe4 and Pe5. Borehole logging conducted in Pe4 has highlighted two levels of groundwater flow with no mixing with each other. The first level (0–25 m depth) corresponds to the weathered layer with a conductivity (110 μ S cm⁻¹) included in the range of groundwater from this layer (Fig. 4). The second level corresponds to the fissured layer underlying the weathered one. This level has been sampled for CFCs and SF₆ analyses. It shows higher electrical conductivity (200 μ S cm⁻¹) and apparent age (piston flow model: 42-a-old). Furthermore, a pumping test performed in 2010 has already high-lighted semi-confined conditions. The denitrification process described above is more evidence for such confinement.

By contrast, groundwater in borehole Pe5 shows an apparent age in the same range as the groundwater of the weathered zone springs (binary mixing model with 45% of 25-a-old water) as well as the electrical conductivity ($64 \mu S \, cm^{-1}$, stable over the entire depth) and all the measured geochemical parameters (Table 2). This borehole is geographically (Fig. 1 part 1) and geochemically (Table 2) very close to Pe18 spring. Flowmeter logging performed in Pe5 during summer 2011 showed that all the water inflows are situated in the 15 first m below the soil, in the weathered layer. Therefore, the water emerging from Pe18 spring is similar as the one caught in borehole Pe5. Here, there is no sign of confinement. Binary mixing in the water from this borehole and this spring is a mixture between recent water in the weathered layer and an older one flowing in the fissured layer.

These observations on specific sampling points can be extended to the entire study site.

5.4. Conceptual model

Based on groundwater geochemistry, modelled ages and lithological conditions, it is possible to define three different flowpaths for springs and two for boreholes (Fig. 7).

- For springs:
- In the fissured zone, when it is outcrops, the shallow water shows low mineralization and young apparent ages. The exponential model is the better model (Fig. 7-1) with a RMP around 10 a. The water table is unconfined and the groundwater flows rapidly along the fissures of the gneissic rock. The mineralization is low because of a short transit time and the low solubility of intercepting materials.
- . In the weathered zone, the shallow water emerging from springs is more mineralized, and the transfer time is longer. The binary mixing model (Fig. 7-2.a) or the piston flow model (Fig. 7-2.b) are possible. In the case of the binary mixing model, the weathered layer is not well enough developed to create a hydraulic barrier between the two layers and it can then be considered as a transition zone. This configuration allows mixing between recently infiltrated groundwater in the weathered layer and another one flowing in the underlying fissured layer. The oldest groundwater is more mineralized because of a long transit time (25 a here), and influences the geochemistry of the global mixture. If the weathered layer is well enough developed, mixing between the two layers is not possible (Fig. 7-2.b). The groundwater flows only in the weathered layer through an isolated pathway with a variable transfer time (piston flow model from 11 to 22 a).

For boreholes:

 The piston flow model is better adapted to the boreholes that tap highly mineralized groundwater (Fig. 7-3). In this context, the flows are under confined conditions. The pumping test

2064



Fig. 7. Conceptual model of the groundwater circulation in the fractured and weathered gneissic massif of Ursuya. More explanation in the text. Location (A and B) shown in Fig. 1.

conducted in 2010 in the boreholes Ip2, Ospi9 and Pe4 confirms this confinement. No pumping tests have been performed in the exploited boreholes. The groundwater flows in the fissured and/ or weathered layer but without any mixing between them. The weathered layer is well enough developed to prevent any mixing. The transit time is high (26–42 a) in case of flow in the underlying fissured levels. The apparent age observed here may be linked to that of the oldest proportion of the binary mixing model springs (Fig. 7-2.a). Apparent age is lower in the case of flow in the weathered layer (10 a in Ar3). The time of contact between water and rock allows groundwater to acquire its mineralization. The highest mineralization of the boreholes drilled in metamorphic limestone is accounted for by the rocks type but the functioning is similar.

 The last category concerns the boreholes intercepting mixing groundwater (Fig. 7-4) with similar flowpaths to binary mixing springs (Fig. 7-2.a). The global mineralization of the mixture is defined by the mineralization of two groundwater poles and their proportion. Thus, a small proportion of highly mineralized old water can result in a global mixture which is highly mineralized compared to the generally observed mineralization in the Ursuya massif.

6. Conclusions

Groundwater apparent ages were determined from CFCs and SF_6 in a hard-rock aquifer (massif of Ursuya, Northwestern Pyrenean chain, France). The combination of geological patterns, geochemical data and apparent ages highlight the different flowpaths of the groundwater within the Ursuya massif. The combination of CFCs and SF₆ for dating young groundwaters has been shown to be a relevant approach in the case of complex mixing scenarios even with a relatively low density of sampling points. In this paper, detailed geological field characterization and a hydrogeological investigation of boreholes have been used, coupled to hydrogeochemical measurements and multiple dating tracers and relevant interpretation models. This procedure provided valuable information on different flowpaths, in the case of an incompletely understood system such as Ursuya massif.

2065

The widely observed compartmentalization of hard-rock aquifers strongly impacts on the hydrodynamic conditions of groundwater circulation. Thus, the flows in the fractured layer are in unconfined conditions along fractures and fissures and they are mainly governed by the physical properties of the rock heterogeneities. The exponential model is systematically applied in this context and the calculated mean residence time is low. The rapid circulation and the low solubility of the matrix generate low mineralization. When a weathered layer is present, the piston flow model or binary mixing model is applied, depending on the degree of weathering. When a high degree of weathering is observed, a hydraulic barrier appears between the weathered and the fissured layers. Mixing between water from these two compartments is not allowed and the flows are performed in confined conditions, in the deep fissured zone. The Piston flow model is then applied with apparent ages as a function of the distance travelled by water from the infiltration zone, i.e. the area with the least developed weathered layer. In this context of circulation, mineralization and particularly the terrigenic element concentrations increased concomitantly with apparent ages. When the weathered layer is poorly developed, mixing between the two levels is observed. The binary mixing model can then be applied for age calculation.

2066

I. Jaunat et al. / Applied Geochemistry 27 (2012) 2053-2067

Recently infiltrated water from the weathered layer is mixed with an older one from the buried fissured layer. In this situation, the global mineralization of the groundwater is an equilibrium between the two poles of mixing, depending on their proportions and on their individual mineralization.

This information makes it possible to better manage the resource, in accordance with the natural capacities of the water table, the drinking water supply needs and the land use. As the water needs in this sector of the Northern Basque Country are constantly increasing, great attention needs to be paid to the quality of the resource. Furthermore, given the significant time for groundwater renewal frequently observed in this study, a decrease in the quality of this resource could be difficult to reverse. Even though only a few samples have shown high NO3 concentrations, control on the land use should be maintained in order to preserve groundwater quality.

Acknowledgments

This study was financially supported by the "Conseil Général des Pyrénées Atlantiques", the "Conseil Régional d'Aquitaine", the "Agence de l'Eau Adour-Garonne" and the European Regional Development Fund (ERDF). The authors would like to thank the municipalities of Bayonne, Hasparren, Cambo-les-Bains and the SIAEP of Mendionde-Bonloc and Macaye-Louhossoa for their support and contribution to the implementation of the project. The authors would also like to thank three anonymous reviewers and Professor R. Fuge for their valuable comments that helped to improve the quality of the manuscript.

References

- Acworth, R., 1987. The development of crystalline basement aquifers in a tropical environment, Quart, J. Eng. Geol. 20, 265-272.
- Aeschbach-Hertig, W., Scholosser, P., Stute, M., Simpson, H., Ludin, A., Clark, J., 1998. A ³H/³He study of ground water flow in a fractured bedrock aquifer. Ground Water 36 661-670
- Appelo, C., Postma, D., 2005. Geochemistry, Groundwater and Pollution, second ed. Balkema.
- Aquilina, L., De Dreuzy, J., Bour, O., Davy, P., 2004. Porosity and fluid velocities in the upper continental crust (2 to 4 km) inferred from injection tests at the Soultzsous-Forets geothermal site. Geochim. Cosmochim. Acta 68, 2405–2415. Armand, C., Triscos, J., 1997. Ville de Hasparren (Pyrénées Atlantiques) Recherche
- d'eau potable par sondages dans le massif de l'Ursuya Est (64). ANTEA. Armand, C., Triscos, J., 1999. Ville de Hasparren (64) Realisation de trois forages dans le massif de l'Ursuya, destinés à l'alimentation en eau potable Dossier d'ouvrage exécuté. ANTEA.
- Armand, C., Saint-Marc, E., Ligouret, P., 1995. Ursuya (64) Partie est Carte de vulnérabilité des eaux souterraines et prospection géophysique. BRGM.
- Ayraud, V., Aquilina, L., Pauwels, H., Labasque, T., Pierson-Wickmann, A., Aquilina, A., Gallat, G., 2006. Physical, biogeochemical and isotopic processes related to heterogeneity of a shallow crystalline rock aquifer. Biogeochemistry 81, 331-
- Ayraud, V., Aquilina, L., Labasque, T., Pauwels, H., Molenat, J., Pierson-Wickmann, A., Durand, V., Bour, O., Tarits, C., Le Corre, P., Fourre, E., Merot, P., Davy, P., 2008. Compartmentalization of physical and chemical properties in hard-rock aquifers deduced from chemical and groundwater age analyses. Appl. Geochem. 23, 2686–2707.
- Berkowitz, B., 2002. Characterizing flow and transport in fractured geological media: a review. Adv. Water Resour. 25, 861–884.
- Bertrand, G., Celle-leanton, H., Huneau, F., Loock, S., Renac, C., 2010. Identification of different groundwater flowpaths within volcanic aquifers using natural tracers for the evaluation of the influence of lava flows morphology (Argnat basin, Chaîne des Puys, France). J. Hydrol. 391, 223-234.
- Beyerle, U., Aeschbach-Hertig, W., Hofer, M., Imboden, D., Baur, H., Kipfer, R., 1999. Infiltration of river water to a shallow aquifer investigated with ³H/³He, noble gases and CFCs. J. Hydrol. 220, 169–185.
- Bockgard, N., Rodhe, A., Olsson, K.A., 2004. Accuracy of CFC groundwater dating in a crystalline bedrock aquifer: data from a site in southern Sweden. Hydrogeol. J. 12.171-183.
- Boissonnas, J., Le Pochat, G., Thibault, C., Bernatzk, M., 1974. Carte géologique d'Iholdy au 1/50 000, no. 1027. BRGM.
- Bonnet, E., Bour, O., Odling, N., Davy, P., Main, I., Cowie, P., Berkowitz, B., 2001. Scaling of fracture systems in geological media. Rev. Geophys. 39, 347-383.

- Busenberg, E., Plummer, L., 1992, Use of chlorofluorocarbons (CCI3F and CCI2F) as hydrologic tracers and age-dating tools: the alluvium and terrace system of central Oklahoma. Water Resour. Res. 29, 2257-2283.
- Busenberg, E., Plummer, L., 1997. Use of Sulphurhexafluoride as a Dating Tool and as a Tracer of Igneous and Volcanic Fluids in Groundwater, Geol. Soc. Am. Abstracts with Programs, vol. 29, p. A78.
- Busenberg, E., Plummer, L., 2000, Dating young groundwater with sulfur hexafluoride: natural and anthropogenic sources of sulfur hexafluoride. Water Resour. Res. 36, 3011-3030.
- Busenberg, E., Weeks, E., Plummer, L., Bartholemay, R., 1993. Age Dating Groundwater by Use of Chlorofluorocarbons (CCI3F and CCI2F2) and Distribution of Chlorofluorocarbons in the Unsaturated Zone, Snake River Plain Aquifer, REP. 93-405447.
- Celle-Jeanton, H., Travi, Y., Loŷe-Pilot, M.D., Huneau, F., Bertrand, G., 2009. Rainwater chemistry at a Mediterranean inland station (Avignon, France): local contribution versus long-range supply. Atmos. Res. 91, 118-126.
- Chilton, P., Foster, S., 1995. Hydrogeological characterisation and water-supply potential of basement aquifers in tropical Africa. Hydrogeol. J. 3, 36-49. Chilton, P., Smith-Carington, A., 1984. Characteristics of the weathered basement
- aquifer in Malawi in relation to rural water supplies. In: Proc. Harare Symp., Challenges in African Hydrology and Water Resources
- Cook, P., 2003. A Guide to Regional Groundwater Flow in Fractured Rock Aquifers. CSIRO
- Cook, P.G., Böhlke, J., 2000. Determining timescales for groundwater and solute transport. In: Cook, P.G., Herczeg, A. (Eds.), Environmental Tracers in Subsurface Hydrology. Kluwer Academic, pp. 1–30.
- Cook, P.G., Solomon, D., 1997. Recent advances in dating young groundwater:
- Cook, P.G., Solomon, D., 1997. Recent advances in utating young globalwater, chlorofluorocarbons, ³H/³He and 85Kr, J. Hydrol. 191, 245–265.
 Cook, P.G., Solomon, D., Plummer, L., Busenberg, E., Schiff, S., 1995. Chlorofluorocarbons as tracers of groundwater transport processes in a shallow, silty sand aquifer. Water Resour. Res. 31, 425–434.
- Cook, P.G., Love, A., Robinson, N., Simmons, C., 2005. Groundwater ages in fractured rock aquifers. J. Hydrol. 308, 284–301.
- Courtois, N., Lachassagne, P., Wyns, R., Blanchin, R., Bougaïré, F., Somé, S., Tapsoba, A., 2010. Large-scale mapping of hard-rock aquifer properties applied to Burkina Faso. Ground Water 48, 269–283.
 De Vries, J., Simmers, I., 2002. Groundwater recharge: an overview of processes and whether the second bacter is a second bacter.
- challenges. Hydrogeol. J. 10, 5–17. Deeds, D., Vollmer, M., Kulongoski, J., Miller, B., Mühle, J., Harth, C., Izbicki, J., Hilton, D., Weiss, R., 2008. Evidence for crustal degassing of CF4 and SF₆ in Mojave Desert groundwaters. Geochim. Cosmochim. Acta 72, 999–1013. Dewandel, B., Lachassagne, P., Boudier, F., Al-Hattali, S., Ladouche, B., Pinault, J., Al-
- Suleimani, Z., 2005. A conceptual hydrogeological model of ophiolite hard-rock aquifers in Oman based on a multiscale and a multidisciplinary approach. Hydrogeol. J. 13, 708-726.
- Dewandel, B., Lachassagne, P., Wyns, R., Marechal, J., Krishnamurthy, N., 2006. A generalized 3-D geological and hydrogeological conceptual model of granite aquifers controlled by single or multiphase weathering. J. Hydrol. 330, 260-284.
- Dunkle, S., Plummer, L., Busenberg, E., Phillips, P., Denver, J., Hamilton, P., Michel, R., Coplen, T., 1993. Chlorofluorocarbons (CCI3F and CCI2F2) as dating tools and hydrologic tracers in shallow ground water of the Delmarva Peninsula, Atlantic oastal plain, United States. Water Resour. Res. 29, 3837-3860.
- Einsiedl, F., Mayer, B., 2006. Hydrodynamic and microbial processes controlling nitrate in a fissured-porous karst aquifer of the Franconian Alb, Southern Germany. Environ. Sci. Technol. 40, 6697–6702.
- Foster, S., Cripps, A., Smith-Carington, A., 1982. Nitrate leaching to groundwater. Phil. Trans. Roy. Soc. Lond. Ser. B Biol. Sci. 296, 477–489.
- Glynn, P., Plummer, L., 2005. Geochemistry and the understanding of ground-water systems. Hydrogeol. J. 13, 263-287.
- Gooddy, D., Darling, W., Abesser, C., Lapworth, D., 2006. Using chlorofluorocarbons (CFCs) and sulphur hexafluoride (SF₆) to characterise groundwater movement and residence time in a lowland Chalk catchment. J. Hydrol. 330, 44-52.
- and residence time in a towiand chain tationic to j, rytos, and the solution of the solution o island (Martinique, French West Indies), J. Contam. Hydrol. 108, 107-117. Hamilton, P., Helsel, D., 1995. Effects of agriculture on groundwater quality in 5
- regions of the United States. Ground Water 33, 217–226. Harnisch, J., Eisenhauer, A., 1998. Natural CF4 and SF6 on earth. Geophys. Res. Lett.
- 25. 2401-2404.
- Harnisch, J., Borchers, R., Fabian, P., Maiss, M., 1996. Tropospheric trends for CF4 at C2F6 since 1982 derived from SF6 dated stratospheric air. Geophys. Res. Lett. 10, 1099-1102
- Heaton, T., Vogel, J., 1981. "Excess air" in groundwater. J. Hydrol. 50, 201–216. Herzberg, O., Mazor, E., 1979. Hydrological applications of noble gases and temperature measurements in underground water systems: examples from Israel. J. Hydrol. 41, 217-231.
- Hinsby, K., Hojberg, A., Engesgaard, P., Jensen, K., Larsen, F., Plummer, L., Busenberg, E., 2007. Transport and degradation of chlorofluorocarbons (CFCs) in the pyritic Rabis Creek aquifer, Denmark. Water Resour. Res. 43, W10423.
- Höhener, P., Werner, D., Balsiger, C., Pasteris, G., 2003. Worldwide occurrence and fate of chlorofluorocarbons in groundwater. Crit. Rev. Environ. Sci. Technol. 33, 1-29.
- Houston, J., Lewis, R., 1988. The Victoria province drought relief project. II. Boreho yield relationships. Ground Water 26, 418-426.
- Hrkal, Z., Milicky, M., Tesar, M., 2009. Climate change in Central Europe and the sensitivity of the hard rock aquifer in the Bohemian Massif to decline of

recharge: case study from the Bohemian Massif. Environ. Earth Sci. 59, 703-713.

- Huneau, F., Blavoux, B., Bellion, Y., 2001. Differences between hydraulic and radiometric velocities of groundwaters in a deep aquifer: example of the Valréas Miocene aquifer (southeastern France). C. R. Acad. Sci. – Ser. IIA – Earth Planet Sci. 333, 163–170.
- Jammes, S., Manatschal, G., Lavier, L., Masini, E., 2009. Tectonosedimentary evolution related to extreme crustal thinning ahead of a propagating ocean: example of the western Pyrenees. Tectonics 28, TC4012.
- Jirakova, H., Huneau, F., Celle-Jeanton, H., Le Hrkal, Z., Coustumer, P., 2009. Palaeorecharge conditions of the deep aquifers of the Northern Aquitaine region (France). J. Hydrol. 368, 1–16.
- Katz, B., Chelette, A., Pratt, T., 2004. Use of chemical and isotopic tracers to assess nitrate contamination and ground-water age, Woodville Karst Plain, USA. J. Hydrol. 289, 36-61.Kaufmann, S., Libby, W.F., 1954. The natural distribution of tritium. Phys. Rev. 93.
- Kaumann, S., Libby, W.F., 1954. The natural distribution of tritum. Phys. Rev. 93, 1337–1344.
- Khalil, M.A.K., Rasmussen, R.A., 1989. The potential of soils as a sink of chlorofluorocarbons and other man-made chlorocarbons. Geophys. Res. Lett. 16, 679–682.
- Ko, M., Dak Sze, N., Wang, W., Shia, G., Goldman, A., Murcray, F., Murcray, D., Rinsland, C., 1993. Atmospheric sulfur hexafluoride: sources, sinks and greenhouse warming. J. Geophys. Res. 98, 10,499-10.507.
- Kinhama, C., 1933. Hospitelite, Res. 98, 10,499–10,507.
 Koh, D., Plummer, L., Busenberg, E., Kim, Y., 2007. Evidence for terrigenic SF₆ in groundwater from basaltic aquifers, Jeju Island, Korea: implications for groundwater dating. J. Hydrol. 339, 93–104.
- Labasque, T., Ayraud, V., Aquilina, L., Le Corre, P., 2006. Dosage des compsés chlorofluorocarbonatés et du tétrachlorure de carbone dans les eaux souterraines. Application à la datation des eaux. Cahiers techniques de Géosciences Rennes. No. 4.
- Lachassagne, P., Wyns, R., Bérard, P., Bruel, T., Chéry, L., Coutand, T., Desprats, J., Le Strat, P., 2001. Exploitation of high-yields in hard-rock aquifers: downscaling methodology combining GIS and multicriteria analysis to delineate field prospecting zones. Ground Water 39, 568-581. Lachassagne, P., Wyns, R., Dewandel, B., 2011. The fracture permeability of Hard
- Lachassagne, P., Wyns, R., Dewandel, B., 2011. The fracture permeability of Hard Rock Aquifers is due neither to tectonics, nor to unloading, but to weathering processes. Terra Nova 23, 145–161.
- Maiss, M., Brenninkmeijer, C., 1998. Atmospheric SF₆: trends, sources and prospects. Environ. Sci. Technol. 32, 3077–3086.
- Environmental Tracer Data, Manual on Mathematical Models in Isotope Hydrogeology. IAEA-TECDOC-910, pp. 9–58.
- Maréchal, J., Dewandel, B., Subrahmanyam, K., Torri, R., 2003. Specific methods for the evaluation of hydraulic properties in fractured hard-rock aquifers. Curr. Sci. 85, 511–516.
- Maréchal, J., Dewandel, B., Subrahmanyam, K., 2004. Use of hydraulic tests at different scales to characterize fracture network properties in the weatheredfractured layer of a hard rock aquifer. Water Resour. Res. 40, W11508.
- Martin, C., Aquilina, L., Molenat, J., Carteaux, L., Faucheux, M., Ruiz, L., Gascuel-Odoux, C., 2004. Seasonal and interannual variations of nitrate and chloride in stream waters related to spatial and temporal patterns of groundwater concentrations in agricultural catchments. Hydrol. Process. 18, 1237–1254.Mazurek, M., Bossart, P., Eliasson, T., 1996. Classification and Characterisation of
- Mazurek, M., Bossart, P., Eliasson, T., 1996. Classification and Characterisation of Water-conducting Features at Aspö: Results of Investigations on the Outcrop Scale. SKB International Cooperation Report ICR 97-01, SKB, Stockholm, Sweden.
- Mcguire, K., Mcdonnell, J., Weiler, M., Kendall, C., Mcglynn, B., Welker, J., Seibert, J., 2005. The role of topography on catchment-scale water residence time. Water Resour. Res. 41, W05002.
- Modica, E., Buxton, H.T., Plummer, L.N., 1998. Evaluating the source and residence times of ground-water seepage to streams, New Jersey Coastal Plain. Water Resour. Res. 34, 2797–2810.
- Neuman, S., 2005. Trends, prospects and challenges in quantifying flow and transport through fractured rocks. Hydrogeol. J. 13, 124–147.
- Nordstrom, D., Southam, G., 1997. Geomicrobiology of sulfide mineral oxidation, geomicrobiology: interactions between microbes and minerals. Rev. Mineral. 35, 361–390.
- Oster, H., Sonntag, C., Münnich, K.O., 1996. Groundwater age dating with chlorofluorocarbons. Water Resour. Res. 32, 2989-3001.

- Parkhurst, D., Appelo, C., 1999. User's Guide to PHREEQC (version 2), A Computer Program for Speciation, Batch-reaction, One-dimensional Transport, and Inverse Geochemical Calculations. U.S. Geol. Surv. Water Resour. Invest. Rep. 99-4259.
- Petelet-Giraud, E., Casanova, J., Chery, L., Négrel, P., Bushaert, S., 2005. Attempt of isotopic characterisation (8¹⁸O and 8²H) of present rainwater signature using lakes and reservoirs: application to south-western France. La Houille Blanche 2, 57–62.
- Plummer, L., Busenberg, E., Böhlke, J., Nelms, D., Michel, R., Schlosser, P., 2001. Groundwater residence times in Shenandoah National Park, Blue Ridge Mountains, Virginia, USA: a multi-tracer approach. Chem. Geol. 179, 937-111.
- Postma, D., Boesen, C., Kristansen, H., Larsen, F., 1991. Nitrate reduction in an unconfined sandy aquifer – water chemistry, reduction processes, and geochemical modelling. Water Resour. Res. 27, 2027–2045. Rademacher, L., Clark, J., Boles, J., 2003. Groundwater residence times and flow on the forst and chemistry detection of the Michigan States.
- Rademacher, L., Clark, J., Boles, J., 2003. Groundwater residence times and flow paths in fractured rock determined using environmental tracers in the Mission Tunnel; Santa Barbara County, California, USA. Environ. Geol. 43, 557–567.
- Robertson, W., Russel, B., Cherry, J., 1996. Attenuation of nitrate in aquitard sediments of southern Ontario. J. Hydrol. 180, 267–281. Saffgan, P., Keeney, D., 1977. Nitrate and chloride in ground-water under irrigated
- Salingina, F., Keeney, D., 1977. Nitrate and chioride in ground-water under intrgated agriculture in central Wisconsin. Ground Water 15, 170–177.Sebol, L., Robertson, W., Busenberg, E., Plummer, L., Ryan, M., Schiff, S., 2007.
- Jebbi, E., Robertson, W., Bucherty, E., Pannier, E., Ryan, M., Schn, S., 2007. Evidence of CFC degradation in groundwater under pyrite-oxidizing conditions. J. Hydrol. 347, 1–12. Semprini. L. Hookins, G.D., Mccarty, P.L., Roberts, P.V., 1992. In-situ transformation
- emprint, L., Hopkins, G.D., McCarly, P.L., Roberts, P.V., 1992. In-situ transformation of carboneterachloride and other compounds resulting from biostimulation under anoxic conditions. Environ. Sci. Technol. 26, 2454–2461.
- Shapiro, S., Schlosser, P., Smethie, W., Stute, 1997. The Use of H-3 and Tritiogenic He-3 to Determine CFC Degradation and Vertical Mixing Rates in Framvaren Fjord, Norway, Mari, vol. 59, pp. 141–157. Singhal, B., Gupta, R., 1999. Applied Hydrogeology of Fractured Rocks. Kluwer.
- Singhal, B., Gupta, R., 1999. Applied Hydrogeology of Fractured Rocks. Kluwer. Strebel, O., Duynisveld, Whm Botcher, J., 1989. Nitrate pollution of groundwater in western-Europe. Agric. Ecosyst. Environ. 26, 189–214.
- Stuart, M., Maurice, L., Heaton, T., Sapiano, M., Micallef Sultana, M., Gooddy, D., Chilton, P., 2010. Groundwater residence time and movement in the Maltese
- islands a geochemical approach. Appl. Geochem. 25, 609-620. Tarits, C., Aquilina, L., Ayraud, V., Pauwels, H., Davy, P., Touchard, F., Bour, O., 2006. Oxido-reduction sequence related to flux variations of groundwater from a fractured basement aquifer (Plomeur area, France). Appl. Geochem. 21, 29-47.
- Taylor, R., Howard, K., 2000. A tectono-geomorphic model of the hydrogeology of deeply weathered crystalline rock: evidence from Uganda. Hydrogeol. J. 8, 279– 294.
- Thatcher, L.L., Janzer, V.J., Edwards, R.W., 1977. Methods for determination radioactive substances in water and fluvial sediments. In: Techniques of Water Resources Investigations. U.S. Geol. Surv., pp. 79–81.
- Toth, D., Katz, B., 2006. Mixing of shallow and deep groundwater as indicated by the chemistry and age of karstic springs. Hydrogeol. J. 14, 1060–1080.
- Vencelides, Z., Hrkal, Z., Prchalova, 2010. Determination of the natural background content of metals in ground waters of the Czech Republic. Appl. Geochem. 25, 755–762.
- Vittecoq, B., Gourcy, L., Baran, N., 2007. Datation des eaux souterraines de Martinique par l'analyse des CFC, SF₆ et tritium et relation avec les concentrations en nitrates et produits phytosanitaires. BRGM/RP-55844-FR. Weissmann, G., Zhang, Y., Labolle, E., Fogg, G., 2002. Dispersion of groundwater age
- Weissmann, G., Zhang, Y., Labolle, E., Fogg, G., 2002. Dispersion of groundwater age in an alluvial aquifer system. Water Resour. Res. 38, pp. 16-1-16-13. White, A., Bullen, T., Schulz, M., Blum, A., Huntington, T., Peters, N., 2001.
- White, A., Bullen, T., Schulz, M., Blum, A., Huntington, T., Peters, N., 2001. Differential rates of feldspar weathering in granitic regoliths. Geochim. Cosmochim. Acta 65, 847–869.
- Wyns, R., Baltassat, J., Lachassagne, P., Legchenko, A., Vairon, J., Mathieu, F., 2004. Application of proton magnetic resonance soundings to groundwater reserve mapping in weathered basement rocks (Brittany, France). Bull. Soc. Géol. France 1, 21–34.
- Yao, T., 2009. Hydrodynamisme dans les aquifères de socle cristallin et cristallophyllien du sud-ouest de la Côte d'Ivoire: cas du département de Soubré. Apports de la télédétection, de la géomorphologie et de l'hydrogéochimie. Conservatoire National des Arts et Métiers (France), Univ. Cocody (Côte d'Ivoire).

Résumé

Les aquifères fracturés sont un enjeu majeur de l'hydrogéologie actuelle. Ils constituent une ressource essentielle pour de nombreuses populations. Le massif de l'Ursuya (France, 64), en est une illustration. Constitué de formations métamorphiques fracturées, il est intensément exploité pour l'alimentation en eau potable. Une approche multidisciplinaire a permis la compréhension du fonctionnement de ce système. Les résultats obtenus constituent une avancée dans la connaissance des aquifères discontinus et offrent des pistes pour une gestion raisonnée de cette ressource.

Le signal d'entrée est caractérisé dans sa composante quantitative et qualitative. Le suivi des paramètres climatiques permet d'estimer la lame d'eau participant à la recharge de l'aquifère. La caractérisation isotopique de l'eau précipitée met ensuite en évidence une origine majoritairement atlantique des masses d'airs, responsables des précipitations sur le nord-ouest du Pays Basque. Des circulations atmosphériques sur la péninsule Ibérique, l'Europe du Nord et la région méditerranéenne sont cependant responsables de certains événements pluvieux. La composition chimique de l'eau de pluie, résultant de ces origines, est caractérisée par une faible acidité et par des concentrations en éléments anthropiques parfois élevées.

L'hydrochimie des eaux souterraines est étudiée conjointement avec des données de temps de séjour acquises par l'interprétation des concentrations en ³H, CFC et SF₆. Les caractéristiques physico-chimiques, les temps de séjours mesurés (moins de 10 ans à plus de 50 ans) et les phénomènes de mélanges associés permettent de réaliser un modèle conceptuel des écoulements souterrains. Celui-ci met en exergue le rôle prépondérant du profil d'altération développé dans les milieux cristallins (de la surface vers la profondeur : altérites, roche fissurée et roche saine), du point de vue de la minéralisation de l'eau comme de celui des modalités d'écoulement.

Une approche quantitative est finalement proposée. Du point de vue hydrodynamique, l'hétérogénéité spatiale est importante $(10^{-4} \text{ m s}^{-1} < \text{K} < 10^{-8} \text{ m s}^{-1})$. Les altérites offrent une capacité de stockage et de régulation de la recharge. Un modèle numérique synthétise et valide ces résultats. Les simulations montrent de fortes interactions entre les réseaux d'écoulements superficiel et souterrain et de faibles impacts de l'exploitation actuelle sur les flux d'eau souterraine. Les évolutions climatiques ne modifieront pas significativement les écoulements durant les prochaines décennies. Une diminution des débits des sources et des cours d'eau est toutefois probable. Ce modèle numérique et l'ensemble des résultats obtenus serviront de base pour une gestion raisonnée de la ressource en eau de l'aquifère de l'Ursuya.

Mots clés : Aquifère fracturé, Profil d'altération, Signal d'entrée, Ions majeurs, Isotopes stables, Temps de séjour, Modèle numérique, Pays Basque.

Abstract

Hard-rock aquifers are one of the major challenges for the current hydrogeology. These fractured formations are intensively exploited for drinking water supply becoming an essential resource for many people. The metamorphic massif of Ursuya (France, 64) is one of this strategic aquifer. A multidisciplinary approach has led to understand the functioning of this system. The results help to progress in the knowledge of discontinuous media and they provide supports for a rational management of this resource.

The input signal is characterized by both quantitative and qualitative ways. Monitoring of climate parameters is used to estimate the amount of aquifer recharge. Isotopic characterization of rainwater highlights the principal Atlantic origin of air masses which are responsible of precipitation on the north-western Basque Country. Some rainfall events are also due to atmospheric circulation over the Iberian Peninsula, the Northern Europe and the Mediterranean region. The chemical composition of rainwater, resulting from these origins, is characterized by a low acidity and sometimes by high concentrations of anthropogenic elements.

The hydrochemistry of groundwater is studied in conjunction with residence time data. These are acquired by the interpretation of ³H, CFCs and SF₆ concentrations. The chemical characteristics, the measured residence times (less than 10 years to over than 50 years) and the associated mixing processes allow the achievement of a conceptual model of groundwater flow. It point out the role of the weathering profile (from the surface to the depth : weathered layer, fractured rock and fresh bedrock) from the point of view of the mineralization as well as the flowpaths.

A quantitative approach is finally proposed. Boreholes studies show highly heterogeneous hydrodynamic properties $(10^{-4} \text{ m s}^{-1} < \text{K} < 10^{-8} \text{ m s}^{-1})$. Weathered materials provide a storage capacity and a smoothing of the recharge variations, these results are synthesized and validated by a numerical model. The simulations show strong interactions between the surface flow network and the water table. It also highlights the low impact of the current groundwater exploitation on the aquifer and that climate change will not significantly modify the groundwater flows in the coming decades. Nevertheless, a decrease of the springs and streams flow is probable. This numerical model and all these results constitute the basis for a rational management of water resources in the Ursuya aquifer.

Key words : Hard-rock aquifer, Weathered profile, Input signal, Major ions, Stable isotopes, Residence time, Numerical model, Basque Country.