Comprendre les **transferts de contaminants** dans le sol et protéger nos **ressources en eau**

L'eau de boisson ou d'irrigation ouvre une voie privilégiée par laquelle les contaminants, issus de certaines activités industrielles, peuvent atteindre l'homme. Les scientifiques, cherchant à maîtriser les risques engendrés par ces activités, se sont donnés comme mission prioritaire de comprendre et de simuler les transferts de métaux lourds, radionucléides et autres composés organiques toxiques dans les sols.



Prélèvement d'échantillons d'eau dans la Durance pour analyses.

a maîtrise des risques sanitaires et environnementaux liés aux activités industrielles ou nucléaires passe par la maîtrise de la chaîne "Source de danger -Transfert - Cible" (figure 1). Dans l'hypothèse d'une contamination des sols par des métaux lourds, des radionucléides ou encore des composés organiques, la principale voie d'atteinte potentielle des populations passe par le transfert hydrogéologique vers les ressources en eau de boisson ou d'irrigation. L'eau prime sur le sol car, si l'on peut interdire l'accès d'un terrain à des usagers, les ressources en eau, comme l'air que nous respirons, demeurent communes. Évaluer ce risque suppose de quantifier la migration des contaminants à travers le sol et les roches sous-jacentes, cela jusqu'aux nappes d'eau souterraines. Pour y parvenir, il s'avère nécessaire d'adopter une approche intégrée allant des opérations de terrain jusqu'à la modélisation, alliant des mesures et des simulations chimiques comme physiques. Cette approche repose sur la connaissance de l'écoulement des eaux dans les systèmes naturels mais aussi du transport des contaminants par ces eaux. Même pour des contaminations



Figure 1.

Schéma conceptuel des transferts hydrogéologiques dans l'environnement résultant de la contamination d'un sol (modifié d'après Marjorie Miltenberger).



de sol avérées, les évaluations de risques sur les ressources en eau sont préventives dans la plupart des cas et demandent des projections dans le futur. La difficulté réside donc dans la validation des simulations et l'analyse des incertitudes associées.

Le cadre des transferts

Lorsque des contaminants se déposent sur un sol, ils se dissolvent partiellement et progressivement dans l'eau de pluie qui les transporte verticalement à travers le sol, puis le sous-sol, lors de son processus d'infiltration. Après avoir traversé la zone non saturée (figure 1), ces éléments ou ces composés chimiques peuvent ainsi parvenir jusqu'à la nappe d'eau souterraine, à plusieurs mètres ou plusieurs dizaines de mètres sous la surface du sol. Là, ces différentes substances se trouvent une nouvelle fois diluées puis transportées sub-horizontalement selon l'écoulement général des eaux souterraines dans la nappe. Celle-ci a pour exutoires naturels les rivières, quand elle n'est pas prélevée à l'aide de puits ou forages pour des usages d'alimentation en eau potable, domestique, agricole ou industrielle.

L'identification des contaminants

Pour identifier la présence d'un contaminant dans l'un des compartiments de l'environnement (sol, zone non saturée, nappe), il faut pouvoir comparer la quantité mesurée à un référentiel. On a recours à des méthodes d'analyses performantes capables de mesurer ces substances à l'état de traces. En effet, les contaminations étant très rarement massives, il est nécessaire de caractériser leur étendue jusqu'aux concentrations nulles. La plupart des substances se trouvent déjà dans l'environnement, y compris celles d'origine artificielle. Ces substances proviennent de contaminations antérieures à l'activité d'intérêt sur le site étudié ou bien de contaminations diffuses, telle l'émission de **plomb** par le trafic routier, les retombées des essais nucléaires aériens mondiaux ou la catastrophe de Tchernobyl.

Concernant la très grande part d'éléments et composés chimiques existant aussi à l'état naturel, il faut distinguer la part provenant naturellement du terrain (appelée aussi fond géochimique) de celle apportée par l'activité contaminante. Un des moyens d'y parvenir consiste à mesurer l'abondance des différents isotopes constituant l'élément chimique recherché. Cette signature isotopique peut différer entre le fond géochimique et le contaminant, notamment pour l'uranium appauvri. Dans la majorité des cas, seule la comparaison entre les concentrations mesurées sur le site étudié et les concentrations du fond géochimique local permet de mettre en évidence une contamination. La détermination fine du fond géochimique, qui dépend de la nature et de l'histoire des sols et des roches, figure donc comme une étape majeure dans l'expertise environnementale d'un site.

Le comportement des contaminants

La solubilité des contaminants déposés au sol permet de contrôler la quantité potentiellement disponible pour la migration en solution aqueuse. À cet équilibre **thermodynamique** viennent souvent s'ajouter des effets **cinétiques**. Selon l'affinité des contaminants avec la matrice minérale ou organique des sols et des roches traversées par l'eau, leur transport s'effectue plus ou moins rapidement par rapport à l'écoulement de l'eau. De nombreux éléments chimiques et composés naturels, (en plus du **pH** et des conditions d'**oxydo-réduction**) contribuent également à modifier la quantité d'espèces chimiques sous



Dispositif de prélèvement des eaux souterraines dans un puits sur la station expérimentale de Roselend (Savoie), avec suivi en continu des paramètres physicochimiques, des volumes pompés et du niveau piézométrique.

58

lesquelles un même contaminant existe en solution, et par là, ses propriétés d'interaction et de transport. La maîtrise des risques suppose donc de comprendre, modéliser et simuler ces phénomènes physicochimiques.

Simulation de la migration des contaminants

Simuler la migration des contaminants suppose l'association de deux facteurs: l'écoulement des eaux et le transport des substances d'intérêt, depuis le sol jusqu'à la nappe, puis au sein de la nappe vers les exutoires.

• Pour simuler la migration verticale en zone non saturée, il est indispensable de connaître la teneur en eau à chaque niveau de profondeur et cela en fonction de l'intensité de l'infiltration. La teneur en eau, variable en zone non saturée, contrôle la perméabilité. Ce comportement se décrit au moyen de formulations mathématiques dont les paramètres proviennent de la mesure des propriétés de rétention d'eau par capillarité des roches en laboratoire. La simulation du transport de soluté, en zone non saturée, permet d'estimer le flux de contaminant arrivant dans la nappe, en fonction du temps, et pour chaque point d'un **maillage** représentant la zone contaminée. Ce flux constitue l'entrée du modèle de transport dans la nappe, appelée aussi **zone saturée**.

 Préalablement à la simulation du transport en zone saturée, il faut simuler l'écoulement des eaux dans la nappe. Ce premier volet de modélisation hydrogéologique repose sur la détermination du champ d'écoulement de la nappe souterraine, vecteur potentiel des contaminants en solution. Le modèle d'écoulement s'appuie sur la loi de Darcy. Via un coefficient de perméabilité servant de paramètre au modèle, cette loi consiste à relier la vitesse de l'eau au gradient de charge hydraulique, c'est-à-dire à la variation dans l'espace du niveau d'eau (dit niveau **piézométrique**) qui serait mesuré dans un puits. Mais la perméabilité s'avérant généralement mal connue et seulement de manière ponctuelle par le biais de pompages d'essais dans un petit nombre de forages dimensionnés dans ce dessein, c'est le niveau piézométrique qui permet d'arriver au résultat par simple mesure du niveau d'eau dans tous les types de forages. Il s'agit donc, le plus souvent, de résoudre un problème inverse, autrement dit de déterminer le champ de perméabilité qui produit, via un code d'écoulement, un champ piézométrique donné. Ce champ piézométrique peut se définir précisément à partir des mesures disponibles et à l'aide de techniques géostatistiques pouvant inclure une information auxiliaire. Par exemple, il s'avère que le niveau piézométrique se trouve parfois corrélé à l'altitude topographique, paramètre beaucoup plus facilement mesurable que le niveau d'eau dans les nappes. Il devient alors possible de construire un champ piézométrique par krigeage avec dérive externe (figure 2). Ce champ piézométrique sera ensuite utilisé, en entrée du problème inverse, pour estimer un champ de perméabilité.

• Le calcul du transport du soluté en zone saturée constitue le deuxième volet de la modélisation hydrogéologique. L'interaction entre le soluté et la roche joue ici un rôle fondamental. Cette interaction, pour le transport en zone saturée comme en zone non saturée, est le plus



souvent représentée par un terme de retard. Celui-ci se fonde sur l'hypothèse, très simplificatrice, d'une adsorption proportionnelle à la concentration en solution, et réversible, du soluté sur la roche. Une modélisation plus complète de cette interaction peut être réalisée à l'aide de codes de calcul couplant les réactions chimiques et le transport. Dans ce cas, la complexité devient alors très supérieure et requiert une connaissance fine de la géochimie, difficile à atteindre dans une modélisation à l'échelle d'une région de quelques dizaines à quelques centaines de kilomètres carrés. Une autre simplification consiste à décomposer le transport en deux étapes bidimensionnelles, correspondant à une migration verticale en zone non saturée, suivie d'une migration sub-horizontale en zone saturée. Cette méthode évite de recourir à une modélisation en trois dimensions, toujours difficile à mettre en œuvre et à maîtriser. Le modèle de transport en zone saturée permet d'estimer les concentrations en contaminant, au cours du temps, sur l'ensemble du domaine modélisé. Aux points d'usage des eaux souterraines répertoriés dans l'environnement



Figure 3.

Schéma illustrant les fractionnements entre les isotopes 234 et 238 de l'uranium au cours des processus de **désintégration radioactive**, notamment le recul alpha, et de la dissolution facilitée par la fragilisation des sites **cristallins** qui en découle (modifié d'après Amélie Hubert). La quantification de ces processus, qui s'ajoutent à ceux plus classiquement connus de dissolution et d'adsorption-désorption, permet le recalage des simulations numériques du transport de l'uranium sur des temps très longs. Les **périodes** de désintégration radioactive des différents isotopes sont mentionnées (j: jours; a: années).

Figure 2. Exemple de champ piézométrique obtenu par krigeage de données piézométriques et utilisant l'information topographique en dérive externe. du site contaminé, ces concentrations simulées sont comparées à celles du fond géochimique et, si elles les dépassent, aux limites ou références de qualité, dont un bon nombre ont été définies selon les nombreux usages possibles de l'eau.

Validation des simulations par comparaison avec les mesures et analogues naturels

Figure 4. (a) Exemple de calcul de concentration en contaminant en fonction du temps faisant apparaître l'intervalle de confiance et la moyenne dérivés de l'analyse d'incertitude. (b) Exemple de carte de probabilité de dépassement d'un seuil de décision donné. La validité des simulations repose, notamment, sur leur capacité à reproduire les concentrations mesurées dans les eaux souterraines, dans les cas où les contaminants, initialement présents dans le sol, auraient en partie atteint la nappe. Néanmoins, le nombre de points de comparaison possible s'avère généralement très limité: rarement plus d'un ou deux puits d'observation montrent des eaux de nappe contaminées, les autres constituent un réseau de surveillance préventive. De plus, le retour d'expérience ne dépasse pas les 50 ans. Cette durée est très courte



au regard des centaines, milliers, voire dizaines de milliers d'années qui seraient nécessaires pour que la migration des contaminants (notamment les métaux lourds et les principaux radionucléides) arrive par les eaux souterraines jusqu'aux exutoires de la ressource. D'où la nécessité d'utiliser des systèmes analogues à ceux étudiés mais dont la durée de fonctionnement a été déjà bien supérieure. C'est le cas de la migration de l'uranium naturellement présent dans les roches. En plus des phénomènes bien connus de dissolution et d'adsorption-désorption, il a pu également être démontré, qu'à l'échelle du millier, voire de la dizaine de milliers d'années, d'infimes fractionnements entre les différents isotopes de l'uranium et de ses descendants (figure 3) se produisent au cours des processus naturels de dissolution et de transport: cela, depuis les sols vers la nappe, et au sein de celle-ci. Ces fractionnements dépendent de la durée d'interaction, de la vitesse de l'eau, de la solubilité des roches renfermant l'uranium ainsi que des propriétés chimiques de celui-ci. Ces fractionnements peuvent se reproduire à l'aide de codes de calcul et permettre ainsi de déterminer les paramètres manquants et de valider les modèles sur le long terme.

Estimation de robustesse, analyse de sensibilité, calcul des incertitudes

La complexité de l'ensemble de la modélisation induit des incertitudes. Celles-ci proviennent, en majeure partie, de la méconnaissance des paramètres scalaires : infiltration, porosité, dispersivité, paramètres de la rétention d'eau par capillarité, coefficient de retard... Ce type d'incertitude se traite aisément à l'aide de calculs de Monte-Carlo. En revanche, la méconnaissance du champ de perméabilité nécessite un traitement spécifique. Des simulations géostatistiques permettent de simuler un ensemble de champ de perméabilités proches du champ de perméabilité de référence issu du problème inverse. Les zones où l'écoulement s'avère particulièrement incertain peuvent ainsi être mises en évidence. Ceci permettra d'influer sur le choix de l'emplacement de futurs forages où le niveau piézométrique et la perméabilité pourront être mesurés. Il est également possible d'accéder aux incertitudes globales sur les concentrations de contaminants au cours du temps et sur l'ensemble du domaine modélisé. S'en déduisent les probabilités de dépassement de limites ou références de qualité (figure 4a et 4b).

La compréhension et la simulation des transferts, depuis les sols contaminés vers les ressources en eau, figure comme un élément clef de la maîtrise des risques. Celle-ci nécessite une approche multidisciplinaire traitant des couplages physiques et chimiques des systèmes, dont les finalités, applicative et fondamentale, constituent la clef d'une grande variété de problématiques sociétales touchant à la sécurité et à l'environnement : préservation des ressources en eau, lutte contre le réchauffement **climatique** et prévention des risques naturels.

> Éric Pili et François Renard
> Département analyse, surveillance, environnement (Dase)
> Direction des applications militaires CEA Centre DAM Ile-de-France