

Processus de dénitrification au sein d'un aquifère de socle (schistes à pyrites): caractérisation du fonctionnement hydrogéochimique à l'échelle locale, dans le cadre d'un petit bassin versant breton

ANNE MARTELAT

*BRGM Direction de la Recherche, Département Hydrologie, Géochimie et Transferts,
1039 rue de Pinville, F-34000 Montpellier, France*

JEAN-CLAUDE FOUCHER

*BRGM Direction de la Recherche, Département Physico-chimie, BP 6009, F-45060 Orléans
Cedex 2, France*

PATRICK LACHASSAGNE

*BRGM Direction de la Recherche, Département Hydrologie, Géochimie et Transferts,
1039 rue de Pinville, F-34000 Montpellier, France*

HELENE PAUWELS

*BRGM Direction de la Recherche, Département Hydrologie, Géochimie et Transferts,
BP 6009, F-45060 Orléans Cedex 2, France*

Résumé Une approche conjointe, géochimie et hydrogéologique, permet de caractériser la nature et la dynamique des processus de dénitrification mis en évidence au sein d'un aquifère constitué de schistes riches en pyrite. Celui-ci est étudié à l'échelle d'un dispositif expérimental composé de plusieurs forages espacés d'une dizaine de mètres et captant des niveaux compris entre 1 et 100 m de profondeur. Les pompages d'essais montrent la dualité du système aquifère qui apparaît comme constitué d'un compartiment superficiel (altérites, formations superficielles), à vocation capacitive, surmontant les schistes sains, à perméabilité de fractures et fissures, et rôle essentiellement transmissif. Le suivi détaillé des variations du chimisme des fluides et des fluctuations temporelles de la piézométrie selon la verticale montre un écoulement saisonnier, vers le bas, de fluides d'origine superficielle riches en nitrates. La présence de pyrite au sein du compartiment profond permet leur dénitrification par oxydation des sulfures. Ce processus de dénitrification autotrophe est rapide. Il se produit à proximité de l'interface compartiment superficiel/compartiment profond.

INTRODUCTION

En Bretagne, l'intensification de l'agriculture entraîne des concentrations en nitrates très élevées dans les eaux de surface (Cann, 1996). Les principales ressources en eaux souterraines de cette région se situent en milieu de socle cristallin et présentent également des contaminations importantes en nitrates. Néanmoins, au sein des aquifères schisteux, des indices de dénitrification naturelle attribués en partie au moins à un processus autotrophe (Pauwels, 1994) sont observés.

Ce processus contribue aux importantes variations verticales de concentrations en nitrates, avec des eaux très contaminées, au sein des compartiments aquifères les plus superficiels et des teneurs en nitrates négligeables à nulles au sein des eaux souterraines circulant en profondeur.

Une approche conjointe hydrogéologique et géochimique a été mise en œuvre sur le Bassin Versant Représentatif Expérimental (BVRE) du Coët Dan (commune de

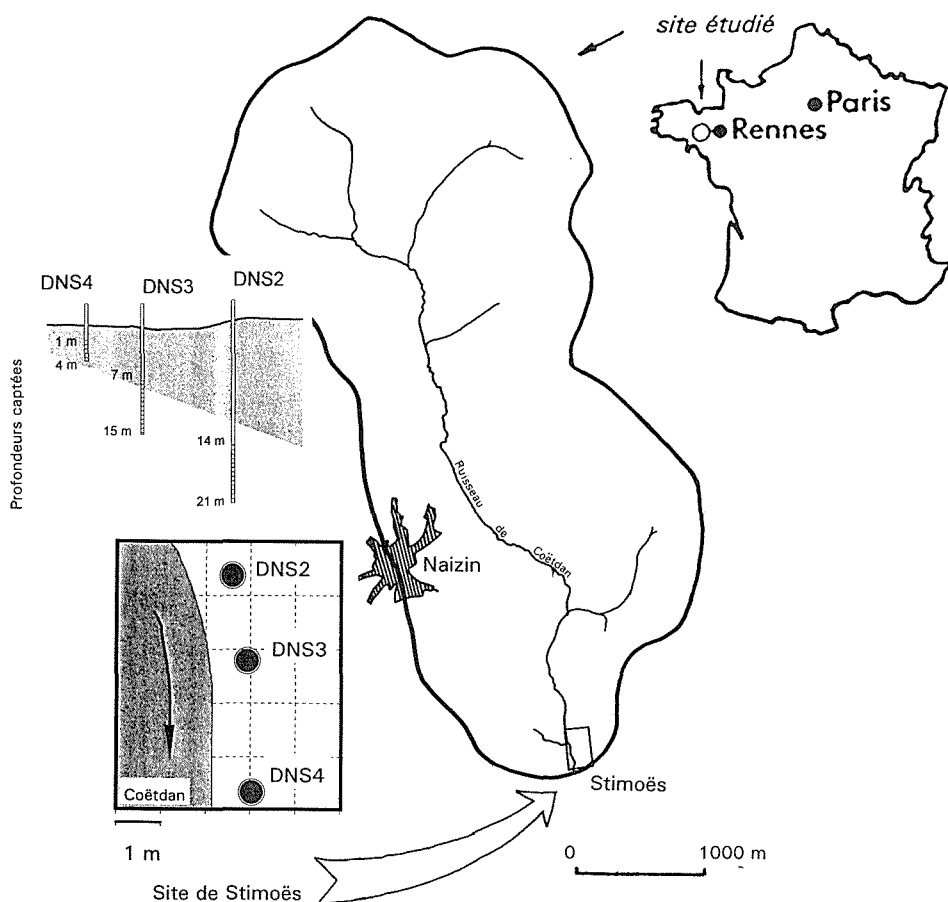


Fig. 1 Bassin Versant Représentatif Expérimental du Coëtдан. Localisation du site de Stimoës situé dans ce bassin.

Naizin, Morbihan, France) (Fig. 1), dans le but d'étudier la composante souterraine du transfert des nitrates sur ce site et en particulier la part de la dénitrification, parmi l'ensemble des mécanismes mis en jeu au cours de ce transfert.

Le sous-sol de ce bassin versant est constitué pour l'essentiel de schistes fissurés et fracturés riches en pyrite, surmontés d'une couverture altéritique, colluviale, alluviale et limoneuse. A l'échelle du bassin versant, la forme de la surface piézométrique suit la topographie, indiquant ainsi une faible perméabilité globale du milieu. L'écoulement des eaux souterraines au sein de ce système présente une composante verticale non négligeable contrôlée essentiellement par la topographie. Selon un schéma classique, les eaux s'infiltrent préférentiellement en haut de versant puis sont drainées par le cours d'eau principal en bas de versant (Martelat *et al.*, 1996a).

Le site de Stimoës, situé en bas de versant, à la limite aval du bassin (Fig. 1), fait l'objet de suivis géochimique et hydrogéologique approfondis. Un dispositif constitué de piézomètres captant différentes profondeurs entre 1 et 100 m sous la

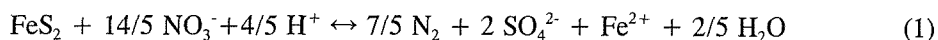
surface du sol, permet de suivre conjointement l'évolution de la chimie des eaux et des charges hydrauliques à la verticale du site, depuis janvier 1995.

RESULTATS DU SUIVI CHIMIQUE

Les résultats du suivi chimique sont présentés pour trois des ouvrages implantés sur le site de Stimoës: DNS4, DNS3 et DNS2. L'agencement de ces ouvrages est représenté en Fig. 1. Ils captent respectivement les profondeurs: 1-4 m, 7-15 m et 14-21 m, sous la surface du sol.

Des évolutions temporelles de la composition chimique des eaux prélevées au sein de ces trois ouvrages ont été observées et sont illustrées par les Fig. 2 (DNS4), Fig. 3 (DNS3) et Fig. 4 (DNS2) pour les trois éléments suivants:

- le nitrate: recueilli par les eaux souterraines circulant à faible profondeur au cours de leur trajet vers l'aval du bassin versant;
- le sulfate: produit de la dénitrification autotrophe, dont la réaction complète s'écrit:



- le chlorure: élément inerte, pouvant être un marqueur de mélanges entre fluides.

Les eaux échantillonnées par l'ouvrage superficiel DNS4 (Fig. 2) sont très chargées en nitrates (jusqu'à 200 mg l⁻¹) alors que les eaux prélevées plus

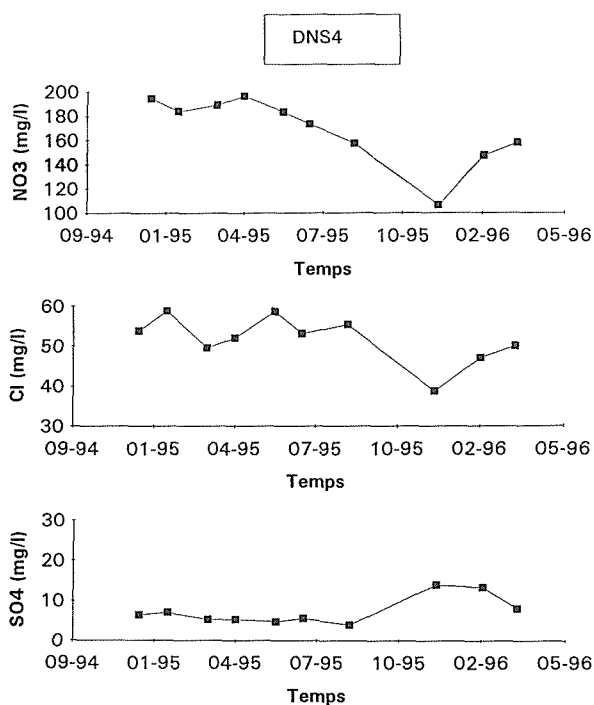


Fig. 2 Evolutions des concentrations en nitrate, chlorure et sulfate au sein de l'ouvrage DNS4, entre janvier 1995 et mai 1996.

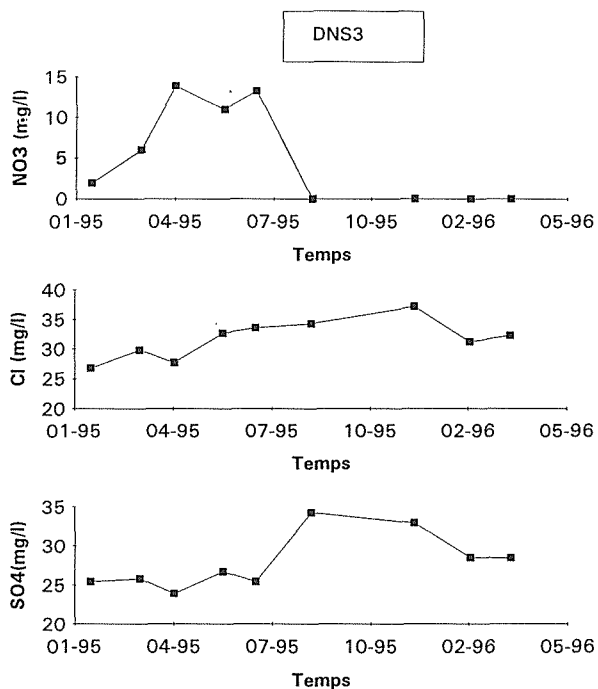


Fig. 3 Evolutions des concentrations en nitrate, chlorure et sulfate au sein de l'ouvrage DNS3, entre janvier 1995 et mai 1996.

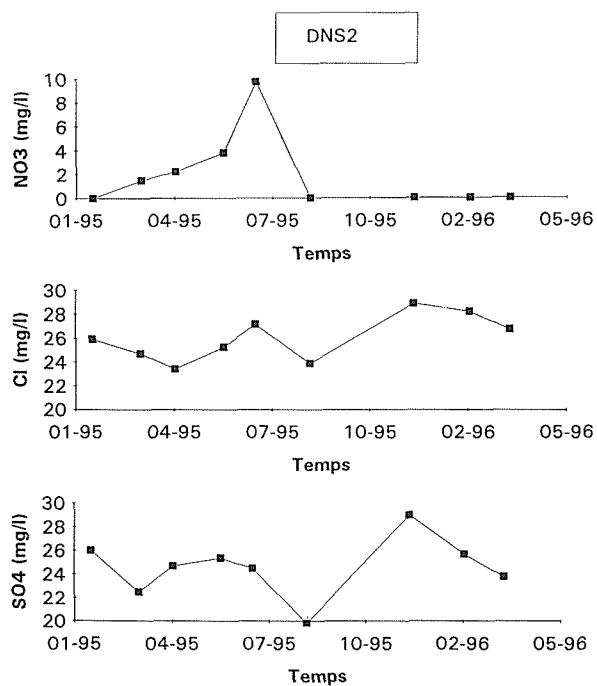


Fig. 4 Evolutions des concentrations en nitrate, chlorure et sulfate au sein de l'ouvrage DNS2, entre janvier 1995 et mai 1996.

profondément en DNS3 (Fig. 3) et DNS2 (Fig. 4), présentent des teneurs plus faibles, voire non détectables. Parallèlement à la disparition des nitrates, on constate en profondeur une augmentation des teneurs en sulfates qui sont libérés lors de la réaction de dénitrification autotrophe décrite par la réaction (1).

Une légère contamination en nitrates des eaux profondes est mise en évidence entre avril et août 1995; celle-ci diminue avec la profondeur et atteste de l'infiltration des fluides riches en nitrates du niveau superficiel vers la profondeur.

L'infiltration vers la profondeur des fluides superficiels fait croître les teneurs en chlorures des fluides plus profonds. Connaissant cette concentration en profondeur à partir d'un ouvrage captant des fluides jusqu'à 80 m, à toutes les dates de prélèvements dans DNS2 et DNS3, l'évaluation des proportions du mélange entre les fluides des deux origines est possible. Ainsi, les fluides recueillis dans DNS3 contiennent entre 20 et 37% de fluide superficiel et ceux, plus profonds, de DNS2 en contiennent entre 5 et 16%. Les proportions d'un tel mélange conduisent à des teneurs en nitrates plus élevées que celles réellement mesurées. L'abattement en nitrate au cours de l'infiltration des eaux des horizons superficiels vers la profondeur est alors interprété comme de la dénitrification.

RESULTATS DU SUIVI HYDROGEOLOGIQUE

Des pompages d'essai réalisés sur des ouvrages du site de Stimoës captant différentes profondeurs ont permis de mettre en évidence une variabilité verticale importante des propriétés hydrogéologiques du système aquifère. Deux compartiments ont été identifiés:

- un compartiment superficiel, à porosité d'interstices, de faible perméabilité et fort emmagasinement, qui assure un rôle essentiellement capacitif et alimente, en conditions de pompage, les couches profondes. Il correspond à l'ensemble de la couverture altéritique, colluviale et alluviale, d'une dizaine de mètres d'épaisseur;
- un compartiment situé plus en profondeur, constitué par les schistes sains à porosité de fracture et de fissure. Il est de ce fait localement bien perméable, mais à faible emmagasinement global et joue un rôle essentiellement transmissif.

Une faible connexion hydraulique existe entre ces deux compartiments.

Les niveaux d'eau ont été mesurés au sein des ouvrages DNS2, DNS3 et DNS4, en conditions d'écoulement naturel. Ce suivi (Fig. 5(a)) fait apparaître une composante verticale non négligeable de l'écoulement, dont le sens varie de façon saisonnière:

- En période de hautes eaux (janvier 1995 à avril 1995 et octobre 1995 à avril 1996), un flux ascendant s'établit entre le compartiment profond et le compartiment superficiel et contribue à l'alimentation du cours d'eau (Fig. 5(a)).
- Au cours de la période de basses eaux (juin 1995 à septembre 1995) (Fig. 5(b)), les niveaux descendent lentement. Dans une première phase de juin à juillet, le compartiment superficiel, encore soutenu par le niveau du cours d'eau, contribue à l'alimentation du compartiment profond. Dans une seconde phase, la nappe superficielle se vidange beaucoup plus rapidement, après l'assèchement du cours d'eau. Parallèlement, la vidange de la nappe profonde est plus lente. Il en résulte

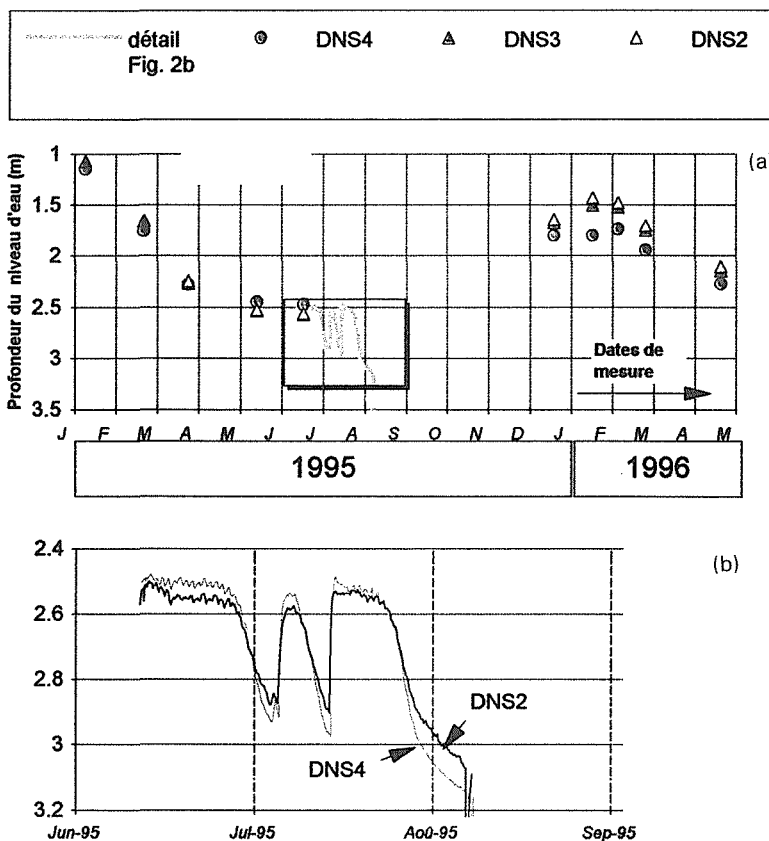


Fig. 5 Evolution des niveaux piézométriques au sein du compartiment superficiel de l'aquifère (DNS4) et du compartiment profond (DNS2). Données ponctuelles entre janvier 1995 et mai 1996 (a) et détail des enregistrements réalisés en continu entre juin et septembre 1995 (b).

une reprise des écoulements verticaux ascendants. Ces deux phases de tarissement lent et de tarissement rapide se reproduisent ensuite après chaque crue (Fig. 5(b)).

DISCUSSION ET CONCLUSIONS

A l'échelle du site de Stimoës, une contamination de l'aquifère profond par les nitrates est mise en évidence pendant la période d'avril à juillet 1995, alors que les gradients de charges indiquent des écoulements verticaux descendants, du compartiment superficiel, vers le compartiment profond. Au cours de cette infiltration, les eaux du compartiment superficiel chargées en nitrates et en chlorures se mélangent avec les eaux du compartiment profond, dépourvues de nitrates et moins riches en chlorures, faisant ainsi croître les teneurs en ces deux éléments, mais une partie des nitrates est transformée au cours du processus de dénitrification.

La présence de pyrite dans le compartiment profond permet la dénitrification des fluides par oxydation des sulfures. Des sulfates sont alors libérés, mais les analyses

réalisées sur des eaux prélevées entre 32 et 80 m, montrent que leur concentration diminue avec la profondeur (maximum de SO_4 à 23 mg l^{-1} en juillet). Il semblerait donc que le front de dénitrification autotrophe soit assez proche de l'interface: compartiment superficiel/compartiment profond.

Courant juillet et août 1995, des inversions rapides du sens des écoulements verticaux sont observées, avec encore de courtes périodes d'infiltration en réponse aux crues d'orages, puis les flux deviennent ascendants pour toute la période hivernale. Le processus de dénitrification autotrophe s'est donc produit dans un intervalle de temps réduit, correspondant aux phases d'infiltration; c'est par conséquent un processus rapide.

L'évolution au cours du temps de ce processus dépendra de la vitesse de consommation de la pyrite, au sein des schistes sains. Il importe donc de connaître localement de façon détaillée l'ensemble des phénomènes qui interviennent, en couplant l'analyse des transferts d'eau et des processus géochimiques qui influencent le transfert des nitrates. Une telle démarche pourrait aboutir à la conception et au dimensionnement d'un dispositif de "recharge dénitrification" exploitant les propriétés du sous sol pour la production d'eau potable dénitrifiée.

Les modalités de dénitrification peuvent varier, sur des sites en position différente au sein du bassin versant (haut et milieu de versant, absence d'influence locale du ruisseau). Aussi, une approche plus globale est menée à l'échelle du bassin versant (Martelat *et al.*, 1996b). Son objectif à long terme est de rechercher les clés d'une optimisation de la gestion et de l'aménagement du territoire, en contexte de schistes pyriteux et fracturés.

REFERENCES

- Cann, C. (1996) Variations des teneurs en azote dans quelques cours d'eau bretons. In: *Symp. Hydrologie dans les Pays Celtiques*, 193-202. Les colloques no 79, INRA edn.
- Martelat, A., Lachassagne, P. & Pauwels, H. (1996a) Caractérisation des écoulements et des processus de dénitrification au sein d'un aquifère fissuré (schistes pyriteux du BVRE de Naizin, Morbihan). In: *16ème Réunion des Sciences de la Terre*, 147.
- Martelat, A., Lachassagne, P. & Pauwels, H. (1996b) Dénitrification naturelle au sein d'un aquifère de schistes à pyrites (Naizin, Morbihan, France). Apport de la caractérisation hydrogéologique du système à la compréhension des processus de dénitrification. In: *Actes du 1er Colloque Interceltique d'Hydrologie et de Gestion des Eaux* (Bretagne 96), 23-24. INSA edn.
- Pauwels, H. (1994) Natural denitrification in groundwater in the presence of pyrite: Preliminary results obtained at Naizin (Brittany, France). *Mineralogical Magazine* **58A**, 696-697.