Fonctionnement et vulnérabilité d'un système karstique multicouche à partir d'une approche multi-traceurs et d'un suivi haute-résolution : application aux Sources du Toulon à Périgueux (Dordogne, France)

Guillaume Lorette

▶ **To cite this version:**

Guillaume Lorette. Fonctionnement et vulnérabilité d'un système karstique multicouche à partir d'une approche multi-traceurs et d'un suivi haute-résolution : application aux Sources du Toulon à Périgueux (Dordogne, France). Mécanique statistique [cond-mat.stat-mech]. Université de Bordeaux, 2019. Français. NNT : 2019BORD0116 . tel-02303518

HAL Id: tel-02303518
https://theses.hal.science/tel-02303518

Submitted on 2 Oct 2019

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.

université de BORDEAUX

THÈSE PRÉSENTÉE

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR DE

L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX

ÉCOLE DOCTORALE SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR

SPÉCIALITÉ : MÉCANIQUE

Par **Guillaume LORETTE**

FONCTIONNEMENT ET VULNERABILITE D'UN SYSTEME KARSTIQUE MULTICOUCHE A PARTIR D'UNE APPROCHE MULTI-TRACEURS ET D'UN SUIVI HAUTE-RESOLUTION

Application aux Sources du Toulon à Périgueux (Dordogne, France)

Sous la direction de : Alain DENIS, Roland LASTENNET, et Nicolas PEYRAUBE

Soutenue le 10 juillet 2019 devant le jury composé de :

Hervé JOURDE (Professeur des Universités – Université de Montpellier)	Président du jury
Christelle GUILHE-BATIOT (Maître de Conférences – Université de Montpellier)	Rapporteur
Valérie PLAGNES (Professeur des Universités – Université de Paris Sorbonne)	Rapporteur
Mathieu SEBILO (Maître de Conférences – Université de Paris Sorbonne)	Examinateur
Alain DENIS (Professeur des Universités – Université de Bordeaux)	Directeur de Thèse
Roland LASTENNET (Maître de Conférences – Université de Bordeaux)	Co-Encadrant
Nicolas PEYRAUBE (Maître de Conférences – Université de Bordeaux)	Co-Encadrant

Fonctionnement et vulnérabilité d'un aquifère karstique multicouche à partir d'une approche multi-traceurs et d'un suivi haute-résolution

Application aux Sources du Toulon à Périgueux (Dordogne, France)

Ce travail est financé grâce au support des partenaires suivants :

Ce travail a bénéficié de supports techniques et discussions fructueuses au sein du Service National d'Observation du Karst, et des laboratoires suivants :

Résumé

Ce travail de thèse s'inscrit dans une démarche d'approfondissement des connaissances du fonctionnement des aquifères karstiques. Pour cela, le site pilote des Sources du Toulon, siège d'une alimentation multiréservoirs, a été choisi et offre une fenêtre d'observation privilégiée sur les relations hydrogéologiques entre les aquifères de la marge Nord du Bassin aquitain. Elles sont utilisées depuis 1832 pour l'alimentation en eau potable de la ville de Périgueux, et constituent actuellement son unique ressource.

L'objectif de ce travail a été de tester une approche multi-traceurs et un suivi haute-résolution pour caractériser le fonctionnement et la vulnérabilité d'un aquifère karstique multicouche.

L'utilisation d'une approche couplée hydrodynamique et hydrochimie a mis en évidence l'alimentation des Sources du Toulon par une ressource profonde et captive en complément d'un aquifère libre plus superficiel. Ces informations ont été intégrées dans le contexte hydrogéologique global de la zone d'étude pour proposer une nouvelle délimitation du bassin d'alimentation des Sources du Toulon.

L'utilisation d'un suivi haute-résolution a permis de préciser le fonctionnement hydrogéologique du système karstique étudié. Il en ressort des fonctionnements différents suivants les crues, avec des transferts de masse pouvant s'étendre de quelques jours à quelques semaines.

L'apport des isotopes des nitrates ($\delta^{15}N_{-NO3^-}$; $\delta^{18}O_{-NO3^-}$) a permis d'identifier deux origines des nitrates mesurés dans les eaux de surface et souterraines : les fertilisants minéraux de synthèse utilisés pour l'agriculture, et les rejets d'assainissement individuels.

L'évaluation temporelle de la vulnérabilité spécifique des Sources du Toulon à certains marqueurs de contamination tels que les particules, les éléments bactériologiques et les nitrates a permis de distinguer plusieurs masses d'eau superficielles et subsuperficielles participant à l'alimentation pendant les crues, et jouant un rôle différent dans le transfert des contaminants.

Mots clés : *Karst, hydrochimie, hydrodynamique, suivi haute-résolution, traçage artificiel, isotopes des nitrates, turbidité, bactériologie.*

Abstract

This work is included in an approach for a better knowledge of karst aquifers. For this, the Toulon Springs pilot site was chosen, and provides the opportunity to study relationships between multilayered karst aquifers of the northern edge of the Aquitaine sedimentary basin. Toulon Springs are major regional springs and are located in Périgueux (Dordogne County, France). They have been supplying water to the metropolitan area of Périgueux since 1832.

This work aim to test an innovative multitracer approach coupled with a physicochemical high-resolution auto-monitoring to characterize functioning and vulnerability of a multilayered karst aquifer.

The use of a coupled hydrodynamic and hydrochemical approach has highlighted Toulon Springs supply by a deep and captive aquifer, in addition to a more subsuperficial aquifer. This information has been incorporated into the global hydrogeological situation of the study area to propose a new delineation of Toulon Springs hydrogeological cathment.

The use of a high-resolution monitoring enables to specify the hydrogeological functioning of the studied karst system. The analysis performed on several flood events, identify that mass transfer can range from a few days to a few weeks.

The use of nitrate isotope ($\delta^{15}N_{-NO3^-}$; $\delta^{18}O_{-NO3^-}$) enables to identify two main nitrate sources in both surface water and groundwater: (i) inorganic fertilizer; (ii) sewage from individual house.

The last part of this work was to analyse Toulon Springs temporal vulnerability during floods to marker of contamination such as particles, dissolved organic carbon, nitrate, and bacteria. Hence, several water type from surface runoff, unsaturated zone and saturated zone were identify as responsible of contaminant transfer: (i) water from saturated zone is responsible of vulnerability to mineral particles; (ii) water from unsaturated zone is responsible of vulnerability to nitrare; (iii) water from surface runoff is responsible of vulnerability to bacteria contamination.

Mots clés : *Karst, hydrochemistry, hydrodynamic, high resolution monitoring, tracer test, nitrate isotopes, turbidity, bacteria.*

Thèse préparée au sein du laboratoire I2M UMR CNRS 5295
Institut de Mécanique et d'Ingénierie de Bordeaux
Département Génie Civil Environnemental
Bâtiment B18 - Allée Geoffroy Saint Hilaire CS 50023 - 33615 Pessac Cedex France

Remerciements

Entreprendre un travail de Thèse c'est avant tout s'engager un travail de recherche individuel, parfois même un peu solitaire. Mais c'est aussi avoir la chance de s'intégrer dans une équipe en place, une famille solidaire, et de participer à son fonctionnement. Le document rendu à la fin d'une thèse, même s'il reflète principalement le premier aspect, tient aussi du second et parfois bien plus qu'on ne le pense. Il est en tout cas le fruit de nombreux conseils et de partage divers. C'est à tous ceux qui m'ont accompagné, suivi, guidé, conseillé, épaulé et soutenu que je m'adresse ici.

Mon aventure de presque 5 ans au laboratoire I2M de l'Université de Bordeaux a été motivé par une soif de connaissance et de formation en hydrogéologie. **Roland LASTENNET**, **Alain DENIS** et **Nicolas PEYRAUBE** ont su répondre à mes attentes. Ils ont surtout été les acteurs majeurs de ces travaux. Ils ont su les diriger, et les guider bien au-delà d'un simple encadrement professionnel. En pensant à eux, c'est tant de moments de bienséance qui me reviennent, mais c'est aussi d'autres, beaucoup plus informels. Les sentiments qui en ressortent sont surtout un sentiment de confiance, de gaieté et de sérénité.

S'il y a bien une chose dont je n'ai jamais douté pendant toutes ces années, c'est bien d'eux. Je n'aurais jamais de mots assez forts pour leur adresser ma gratitude et mon respect, mais ce qui est sûr c'est que sans eux ce travail aurait un tout autre aspect.

Qu'ils puissent trouver à travers ce document, je l'espère, la satisfaction qu'ils souhaitaient au début de NOTRE Thèse.

Je souhaite adresser tout particulièrement mes sincères remerciements à **Mathieu SEBILO** qui a suivi ces travaux de loin, géographiquement, mais qui a été en réalité l'un des principaux acteurs des progrès de cette thèse. Mathieu, merci pour tous ces conseils, ces méthodologies de travail que tu m'as apporté et qui sont venues consolider mon bagage professionnel et humain. J'espère que nous aurons encore de nombreuses occasions de partager nos expériences professionnelles, ou non.

J'en profite pour remercier **Véronique VAURY** pour le passage des analyses isotopiques.

Court mais enrichissant, c'est les termes que j'utiliserais pour qualifier mon passage dans l'équipe du laboratoire Morphodynamique Continentale et Côtière de l'Université de Rouen. Je tiens à remercier l'ensemble du laboratoire mais surtout **Matthieu FOURNIER**, **David VIENNET** et **Julie GONNANT** pour leur accueil et leur partage. Soyez assurés que je vous en suis très reconnaissant. Votre apport à ces travaux fut important. J'espère avoir également l'occasion de partager de nombreux moments avec vous, surtout s'il s'agit de profiter de la gastronomie normande ; même si je suis obligé d'affirmer par chauvinisme qu'elle ne vaut pas celle du Périgord !

Cette thèse n'aurait probablement jamais vu le jour sans l'aide inconstatable de **Jean-Christophe STUDER** qui a montré une ténacité sans faille pour nous permettre de la réaliser. Et c'est également à **toute l'équipe de l'Agence de SUEZ** à Périgueux que je souhaite m'adresser ici. J'ai passé mes 5 années à vous remercier, et je continuerai probablement encore longtemps. Je ne sais pas qu'est-ce qui a été le plus important pour moi : votre accueil et tous nos moments de rire ou votre aide technique et toutes les choses que vous m'avez apprises. Ce qui est certain c'est que grâce à vous je profitais d'une journée par semaine de décompression où seule le rire et le travail dans la bonne humeur comptaient.

C'est tant de bons souvenirs qui accompagnent mes pensées de **Jérôme DONNETE**, **Julien FRANT**, **Pierre PINET**, **Philippe SAVY**, et **Emilien CASTAING**. C'est bien plus que de simples remerciements qu'il faudrait car sans vous : pas de SSERK'ŒIL, pas de données, pas de prélèvements en crue.

Je remercie également la direction de l'Agence de SUEZ à savoir **Pascal DAMIANI** et **Sylvain DESCAT** pour la confiance qu'ils nous ont accordé pour la réalisation de cette thèse. Qu'ils trouvent à travers ce document des éléments pour assurer une exploitation durable des Sources du Toulon.

C'est aussi à toute l'équipe de la mairie de Périgueux que j'adresse toute ma gratitude. Via ces travaux, ils expriment leur volonté de protection de leur ressource qui leur est si chère et qui fait partie du patrimoine historique périgourdin. Merci donc principalement à **Nelly PERRAUD-DAUSSE**, **Franck CHATIGNOUX** et **Martine BALOUT** pour toute votre gentillesse, votre soutien et vos conseils. Je pense pouvoir affirmer que vous avez fait de moi un orateur vigilant pour la vulgarisation scientifique via les animations que vous m'avez proposé.

J'adresse mes remerciements au personnel de l'**Agence de l'eau Adour Garonne**, et en particulier à **Pierre MARCHET** pour son soutien et son aide dans ma thèse. « Une vraie mine d'or de connaissance » est-ce assez fort ? Pas sûr… Merci à toi Pierre pour tes connaissances et ton expérience que tu m'as toujours fait partager dans la bonne humeur.

Je remercie sincèrement les membres du jury de cette thèse pour leurs excellents conseils et pour m'avoir décerné le titre de Docteur de l'Université de Bordeaux : le président **Hervé JOURDE**, **Christelle GUILHE-BATIOT** et **Valérie PLAGNES** pour l'avoir rapportée, **Mathieu SEBILO** pour l'avoir examinée, et bien sûr encore **Roland**, **Alain** et **Nicolas**.

J'ai une petite pensée pour les chiens de Nicolas qui sont venus animer cette soutenance.

Une zone d'étude de 200 km² c'est assez grand, et ça l'est encore plus quand on la connait mal. Heureusement pour moi j'ai pu être suivi de près par **Patrick ROUSSEAU** qui en connait tous les recoins. Toujours partant pour une prospection, la passion qui l'anime devrait être un exemple pour tous. Patrick les bons plans, il montre les endroits où injecter les colorants, où prospecter pour des pertes, mais aussi où bien manger. Tu m'as fait découvrir le restaurant Chez Léa, devenu par la suite le point central de mon terrain d'étude. Mais tu m'as surtout appris l'observation et la patience. Bon sur ce dernier point j'ai encore des progrès à faire je te l'accorde.

J'en profite pour remercier le Comité Département de Spéléologie et surtout certains membres qui m'ont aidé, à savoir **Sandra**, **Pompon** et **Lionel**. Merci à vous pour votre gentillesse, votre partage, et aussi pour votre initiation à la spéléologie !

J'ai eu la chance de pouvoir bénéficier sur mon terrain de thèse de personnes locales qui ont été essentiel au bon déroulement de ces travaux.

Je souhaite remercier tout particulièrement **Véronique GERBEAU**, **Nicolas RABIER** et **Pierre de ALMEIDA** pour nous avoir permis d'installer nos pluviomètres et station météorologiques.

J'adresse ma gratitude à **Marie Pierre SAERVANT** pour m'avoir laissé accéder à la source du stade COPO.

Merci à **Monsieur et Madame TUFFIER** pour nous avoir laisser accéder au forage de la Roussie à Champcevinel et qui nous ont toujours accueillis avec beaucoup de gentillesse.

Merci à **Guillaume VERGNAUD** pour ses conseils dans les écoulements du vallon de Foncroze et pour nous avoir laissé installer du matériel sur son terrain lors des traçages hydrogéologiques. Merci Guillaume pour ton accueil toujours chaleureux et pour tous tes tuyaux si précieux.

Je remercie également **Christian CHABOT** pour nous avoir laissé accéder au forage de la Luminade à Cornille, pour son partage de connaissance et pour son enthousiasme.

Cette thèse n'aurait pas été ce qu'elle est sans l'apport du travail de **Valentine BUSQUET**, **Jonathan SABIDUSSI**, et **Antoine FORMAGNE**, qui furent d'une aide inestimable pour le travail de terrain. Nivellements, prélèvements, prospections, traçages, équipement de source, jaugeages en rivière, partage de pluie diluvienne, test en laboratoire, que d'aventures vécues ensemble. Vous avez chacun à votre façon apporté une réelle plus-value à notre travail.

Parce qu'une thèse ne se mène jamais seul, l'accompagnement au quotidien par tous mes collègues du laboratoire I2M fut essentiel à ma bonne réussite. Tout d'abord à **Nicolas HOUILLON**, **Elodie RODNEY**, et **Damien BUQUET**, des partenaires de bureau en or qui furent si importants ; d'une part pour ces belles discussions, pour m'avoir fait bénéficier de leur expérience et bien sûr pour tous les moments de rire que nous partagions quotidiennement. L'équipe ne serait pas ce qu'elle est sans **Fabien NAESSENS** et **Sylvain MATEO**, qui font que les idées, parfois farfelues, prennent une forme réelle.

J'exprime également toute ma gratitude à **Isabelle DUSANIER** et **Marie Charlotte LAVENIER** dans leur aide essentielle dans la gestion administrative de cette thèse aux multiples missions de terrain, commandes diverses ou analyses.

Je remercie également tous les autres collègues du laboratoire, maîtres de conférences, professeurs des Universités, doctorants ou post doctorants, qui ont fait que, de près ou de loin, toutes ces années ne restent qu'un merveilleux souvenir.

Comment ne pas remercier les collègues du laboratoire Ecobioc de l'UMR EPOC. 2 étages nous séparaient mais pourtant je ne pouvais pas m'empêcher de monter. Merci à **Pierre ANSCHUTZ** pour toute l'aide que tu m'as apporté dans mon travail, et pour tous les protocoles et conseils que tu n'as jamais hésité à me partager. Et puis bien sûr merci à toi **Dominique POIRIER**, ou Domi, pour toute ta bonne humeur que tu amenais au quotidien, et pour toutes les blagues qu'on a pu faire ensemble. Je pense qu'on peut dire facilement que tu m'as offert un deuxième laboratoire d'accueil.

Mes pensées vont également vers **toute l'équipe enseignante de l'UFR des Sciences de la Terre et de la Mer** qui m'a permis de faire mes premiers pas dans l'enseignement dans lequel j'ai pris beaucoup de plaisir. Merci à tous pour vos conseils et votre accompagnement.

Je remercie tous les doctorants du laboratoire EPOC avec qui nous partagions beaucoup de bons moments. Mes remerciements vont tout particulièrement vers **Kelly FAUQUEMBERGUE** qui a réalisé sa Thèse en parallèle et avec qui nous avons passé de nombreux moments à discuter de tout et de rien, ou simplement à prendre un verre en fin d'après-midi.

Mes remerciements s'adressent également au personnel du BRGM Aquitaine, en particulier à **Olivier CABARET**, **Bruce AYACHE**, **Eglantine HUSSON**, et **Cécile**

BAUDEMENT, pour le partage de données, les discussions enrichissantes que nous avions, les coups de main sur ArcGIS, mais aussi pour toute la gentillesse pour que vous aviez à mon égard.

Je souhaiterais remercier **l'ensemble des collègues du Système National d'Observation du Karst** qui permettent à tout doctorant d'enrichir sa culture karstique, de prendre conscience que nos travaux s'intègrent dans une problématique plus globale que notre site d'étude, de profiter d'un panel de spécialiste dans le domaine du karst, mais également de toujours se sentir accompagné lors des congrès. Merci pour nos échanges si intéressants et pour tous les autres bons moments partagés.

Parce qu'un travail de thèse c'est souvent beaucoup d'engagement personnel, d'énergie mobilisée et de doute, il est essentiel de pouvoir se sentir à l'abri autours de personnes proches.

Je remercie donc mes amis de toujours pour m'avoir soutenu dans cette aventure, pour s'y être intéressé, pour m'avoir même accompagné sur le terrain, mais surtout pour m'avoir sorti de là quand j'en avais besoin. Merci donc à **Thibault**, **Laurine**, **Joffrey**, **Clément**, **Mathieu**, **Camille**, **Amandine**, **Kévin**, **Florent**, **Charlotte**, **Sophie**, **Thomas**, **Camille** et **Guillaume**.

Enfin, je terminerai ces remerciements en remerciant ma famille pour m'avoir soutenu pendant mon parcours.

Sommaire Général

INTRODUCTION 27

CHAPITRE 1 L'AQUIFERE KARSTIQUE ; SA STRUCTURE, SES PROBLEMATIQUES ET SES ENJEUX 33

1. La structure de l'aquifère karstique 37

2. Les problématiques et les enjeux des aquifères karstiques 39

3. Le traçage des eaux karstiques souterraines par utilisation des traceurs géochimiques naturels et artificiels 41
3.1 Les traceurs géochimiques naturels 41
3.1.1 Les traceurs des interactions eau-roche et du temps de résidence 41
3.1.2 Les traceurs de l'infiltration et de l'influence anthropique 42
3.1.3 Les isotopes stables de la molécule d'eau et du carbone 43
3.2 Les traceurs artificiels 44
3.2.1 Les différentes sortes de traceurs artificiels 44

4. Conclusion du Chapitre 1 47

CHAPITRE 2 LES SOURCES DU TOULON : CONTEXTE GENERAL, DESCRIPTIFS EXPERIMENTAUX DEPLOYES ET STRATEGIE D'ECHANTILLONNAGE 49

1. Cadre géologique et hydrogéologique du département de la Dordogne 53
1.1 Histoire géologique régional 54
1.1.1 Evolution géodynamique globale de la marge Nord du Bassin aquitain 54
1.1.2 La géologie structurale de la marge Nord du Bassin aquitain 56
1.1.3 Périodes favorables à la karstification 57
1.2 Nature et géométrie des formations 59
1.2.1 Le Socle Paléozoïque 62
1.2.2 Le Trias 62
1.2.3 Le Jurassique inférieur (Lias) 62
1.2.4 Le Jurassique moyen (Dogger) 62
1.2.5 Le Jurassique supérieur (Malm) 63
1.2.6 Le Crétacé supérieur 63
1.2.7 Les formations tertiaires 64
1.2.8 Les formations de recouvrement 64
1.3 Cadre hydrogéologique régional : un aquifère multicouche carbonaté 66
1.3.1 L'aquifère multicouche du département de la Dordogne 66
1.3.2 Un fonctionnement hydrogéologique complexe et mal connu 68
1.3.3 Des cartes piézométriques des aquifères du département de la Dordogne 68

2. Présentation de l'hydrosystème multicouche des Sources du Toulon 73
2.1 Le site du Toulon 73
2.1.1 Localisation et historique 73
2.1.2 Surveillance et installations mises en place 74
2.2 Caractérisation du contexte climatique 76
2.2.1 Le dispositif de suivi climatique de l'agglomération de Périgueux 76
2.2.2 Les conditions climatiques de février 2014 à septembre 2018 77
2.3 Contexte hydrologique 81
2.4 Occupation du territoire et géomorphologie 82
2.5 Intégration au sein du cadre hydrogéologique régional 83
2.5.1 Cadre géologique local 83
2.5.2 Cadre hydrogéologique local 88
2.6 Résumé des principales caractéristiques hydrogéologiques de l'hydrosystème multicouche des Sources du Toulon 91

3. Stratégie d'échantillonnage et analyses 93
3.1 Les campagnes de prélèvements 97
3.1.1 Caractérisation du signal d'entrée 97
3.1.2 Prélèvement sur la source de l'Abîme du Toulon et suivi haute résolution 98
3.1.3 Prélèvement bimensuel de 5 sources karstiques 99
3.1.4 Les campagnes spatiales de prélèvement 100
3.1.5 Les campagnes de traçage hydrogéologique 100
3.2 Les prélèvements et protocole analytique 100
3.2.1 Les prélèvements 100
3.2.2 Les mesures *in situ* 100
3.2.3 Les analyses sur les éléments dissous 101
3.2.4 Les analyses des éléments particulaires 102
3.2.5 Les analyses des éléments bactériens 102

CHAPITRE 3 LE FONCTIONNEMENT HYDROGEOLOGIQUE DES SOURCES DU TOULON PAR APPROCHE HYDRODYNAMIQUE ET HYDROCHIMIQUE 103

1. Caractérisation quantitative et qualitative du signal d'entrée dans l'aquifère 107
1.1 Evaluation du signal d'entrée 107
1.1.1 Présentation des données utilisées 107
1.1.2 Estimation de l'infiltration de 2007 à 2018 107
1.2 Le bilan hydrologique pour une première estimation de la surface du bassin d'alimentation des Sources du Toulon 117

2. Evaluation du fonctionnement hydrogéologique des Sources du Toulon par caractérisation hydrodynamique et hydrogéochimique 119
2.1 Caractérisation des réponses hydrodynamiques des Sources du Toulon 119
2.1.1 Présentation des données utilisées 119
2.1.2 Méthodologies appliquées 120
2.1.3 L'estimation de la capacité de vidange du système par analyse des courbes de récession 122

2.1.4 Evaluation des réponses hydrodynamiques du système lors des évènements pluvieux par analyse corrélatoire simple et croisée 124
2.1.5 Emplacement des Sources du Toulon dans la classification des aquifères karstiques 125
2.2 Caractérisation des réponses hydrochimiques des Sources du Toulon 126
2.2.1 Présentation des données utilisées 126
2.2.2 Présentation des différents types d'eaux des aquifères de la zone d'étude par utilisation des données des forages profonds 128
2.2.3 Analyse des différents type d'eau identifiés aux Sources du Toulon 130
2.2.4 Comparaison des signatures géochimiques des sources de la zone d'étude132
2.2.5 Relation Magnésium – Oxygène dissous dans l'aquifère karstique multicouche du Toulon..... 133
2.2.6 La datation des eaux souterraines locales et les origines des eaux des Sources du Toulon..... 134
2.3 Schéma conceptuel de fonctionnement hydrogéologique des Sources du Toulon 136

3. Vers une meilleure délimitation des bassins d'alimentation des systèmes karstiques à alimentation multiréservoirs 139
3.1 Décomposition de l'hydrogramme au cours du cycle hydrologique..... 139
3.2 Réalisation d'un nouveau bilan hydrologique 142
3.3 Apport des traçages artificiels 142
3.3.1 Choix des points d'injection et des points de surveillance 143
3.3.2 Résultats des traçages artificiels 145
3.4 Nouvelle délimitation du bassin d'alimentation des Sources du Toulon 147

4. Conclusion du Chapitre 3 et perspectives..... 151

CHAPITRE 4 APPORT DU SUIVI HAUTE-RESOLUTION POUR LA PRECISION DU FONCTIONNEMENT HYDROGEOLOGIQUE DES AQUIFERES KARSTIQUES..... 153

1. Le SSERK'ŒIL : Le Système de Surveillance d'Etude et de Recherche sur le Karst – Observation, Enregistrement, Interprétation, Laboratoire *in situ* 157
1.1 Le problème technique à résoudre..... 157
1.2 Le fonctionnement du SSERK'ŒIL..... 157
1.2.1 Du dispositif technique au rapatriement des données..... 157
1.2.2 La calibration et la vérification des mesures..... 163
1.2.3 L'entretien du SSERK'ŒIL..... 165
1.3 Avantages et utilisation du SSERK'ŒIL 166

2. Analyse temporelle des données haute-résolution pour évaluer le transfert des éléments dissous dans l'aquifère karstique 167
2.1 Présentation des données utilisées..... 167
2.2 Analyse de la chronique à long terme 167
2.3 Analyse de l'évolution des paramètres hydrochimiques pendant les crues.. 171
2.3.1 Présentation des crues 171

2.3.2 Analyse des réponses des paramètres physico-chimiques en lien avec les évènements pluvieux 172

3. Apport du traitement du signal des chroniques haute-résolution 179
3.1 Traitement du signal de la chronique à long terme 179
3.1.1 L'analyse des corrélogrammes simples 180
3.1.2 L'analyse des corrélogrammes croisés 182
3.2 Traitement du signal à l'échelle de l'évènement de crue 185
3.2.1 Exemple d'une crue de printemps (avril 2016) 185
3.2.2 Exemple d'une crue de faible intensité engendrée en période d'étiage (juillet 2017) 188
3.2.3 Discussion sur l'apport des analyses corrélatoires 189

4. Conclusion du Chapitre 4 et perspectives 191

CHAPITRE 5 DEVELOPPEMENT METHODOLOGIQUE POUR LA CARACTERISATION DE LA VULNERABILITE VIS-A-VIS DES CONTAMINATIONS PAR LES NITRATES EN UTILISANT LES ISOTOPES DES NITRATES 193

1. Les traceurs des origines des nitrates : les isotopes des nitrates 197
1.1 Le cycle de l'azote et les isotopes de l'azote 197
1.2 Processus entraînant le fractionnement isotopique 198
1.2.1 La fixation du diazote par les végétaux 198
1.2.2 L'ammonification (minéralisation) 198
1.2.3 La volatilisation de l'azote ammoniacal 198
1.2.4 La nitrification 199
1.2.5 La dénitrification 199
1.3 Les compositions isotopiques attendues pour les différents pôles potentiels de nitrate 200
1.3.1 Les sources atmosphériques 201
1.3.2 Les fertilisants 201
1.3.3 Le lisier et les rejets domestiques 201
1.4 Les limites de l'utilisation des isotopes des nitrates 201
1.5 Stratégie d'échantillonnage pour l'identification des sources d'azote sur le bassin versant karstique des Sources du Toulon 202

2. Caractérisation spatiale des contaminations par les nitrates dans les eaux de surface et dans les eaux souterraines 205
2.1 Campagne de novembre 2015 205
2.2 Campagne de janvier 2016 206
2.3 Campagne de mai 2016 207

3. Caractérisation des sources de nitrates sur le bassin versant karstique des Sources du Toulon 209
3.1 Rappels sur les principes gouvernant les compositions isotopiques des nitrates 209

3.2 Les données isotopiques 209
3.3 Caractérisation des pôles de nitrates 214
3.3.1 Les apports atmosphériques 215
3.3.2 L'azote total des sols 216
3.3.3 Les fertilisants azotés de synthèse 216
3.3.4 Les sols cultivés avec apport de fertilisants azotés de synthèse 216
3.3.5 Les sols agricoles avec apport de boues de STEP 216
3.3.6 Les rejets d'assainissements individuels 217
3.4 Origines des sources de nitrates dans les eaux de surface et souterraines 217
3.4.1 Quelles sources des nitrates dans le compartiment de surface ? 217
3.4.2 Quelles sources de nitrates dans le compartiment souterrain ? 219

4. Devenir des nitrates dans l'aquifère karstique multicouche des sources du Toulon 223
4.1 Utilisation des isotopes des nitrates pour la précision du fonctionnement hydrogéologique de l'aquifère multicouche du Toulon 223
4.2 Utilisation des isotopes des nitrates pour la gestion de la ressource en eau 226

5. Conclusion du Chapitre 5 et perspectives 229

CHAPITRE 6 DEVELOPPEMENT D'UNE APPROCHE POUR LA DETERMINATION DES PERIODES DE VULNERABILITE DU KARST PAR ANALYSE DES SIGNAUX DE TURBIDITE, COD, ET NO_3^- 231

1. Les traceurs particulaires 235
1.1 Définition de la turbidité 235
1.1.1 Etude du signal de la turbidité 235
1.2 Stratégie mise en place 236

2. Analyse des éléments particulaires et des traceurs de l'infiltration pour la caractérisation de la vulnérabilité de la ressource en eau 239
2.1 Variabilité géochimique 239
2.1.1 Crue de février 2017 239
2.1.2 Crue de décembre 2017 240
2.2 Analyse des données normalisées 241
2.3 Analyse des particules en suspension et des éléments bactériens 242
2.3.1 Distribution de taille des particules 242
2.3.2 Caractérisation des particules au microscope électronique à balayage 243
2.3.3 Eléments bactériologiques 244
2.4 Schéma conceptuel de transfert de particules, COD, NO_3^- et bactéries pendant les crues aux Sources du Toulon 245

3. Discussion sur la relation NO_3^- - COD dans le traçage des eaux karstiques 249
3.1 Identification des infiltrations diffuses et concentrées à partir des relations entre le nitrate et le carbone organique dissous dans l'aquifère karstique 249
3.2 Utilisation des données haute-résolution NO_3^- et COD pour une meilleure caractérisation temporelle de la vulnérabilité de la ressource en eau 250

4. Conclusion du Chapitre 6 et perspectives 253

DISCUSSION SUR L'AQUIFERE KARSTIQUE MULTICOUCHE DU TOULON 255
Les caractéristiques physiques de l'hydrosystème karstique multicouche du Toulon 257
Variabilité temporelle de la chimie des eaux des Sources du Toulon au cours du cycle hydrologique : témoin d'une double alimentation complexe 258
Circulations générales des eaux souterraines dans le système karstique 259
Conséquence du fonctionnement hydrogéologique sur la délimitation du bassin d'alimentation des Sources du Toulon 260
Conséquence du fonctionnement hydrogéologique sur la vulnérabilité et la gestion durable de la ressource en eau 262

CONCLUSION ET PERSPECTIVES 263
Les perspectives générales 267

BIBLIOGRAPHIE 271

ANNEXES 293

Liste des figures

Figure 1 : Affleurement des roches carbonatées en Europe. La délimitation des roches carbonatées détermine une limite maximale aux aquifères karstiques (modifié d'après Chen et *al.*, 2017)..... 29
Figure 2 : Localisation des Sources du Toulon dans le département de la Dordogne et dans la ville de Périgueux..... 30
Figure 3 : A gauche, la source de l'Abîme du Toulon. A droite, le captage de la source du Cluzeau du Toulon. 31
Figure 4 : Représentation du système karstique (Mangin, 1975). 37
Figure 5 : Modèle conceptuel des écoulements dans les aquifères karstiques (modifié d'après Hartman et *al.*, 2014). Les pointillés verts foncés et rouge correspondent respectivement aux compartiments superficiels et profonds de l'aquifère karstique..... 38
Figure 6 : Localisation de la Dordogne dans le Bassin aquitain..... 53
Figure 7 : Contexte géodynamique de la France au Jurassique supérieur et les déformations engendrées par l'ouverture du Golfe de Gascogne (Guillocheau et *al.*, 2003).. 55
Figure 8 : Schéma structural du Périgord (modifié d'après Platel, 1989). 57
Figure 9 : Périodes favorables à la karstification associées à la charte chrono-karstique de la marge Nord du Bassin aquitain (Husson et *al.*, 2017)..... 59
Figure 10 : Carte géologique de la Dordogne (modifiée d'après la carte géologique numérisée, réalisée dans le cadre du projet Karst 24 ; Cabaret et *al.*, 2012). 60
Figure 11 : Coupe géologique NE-SW interprétée du département de la Dordogn 61
Figure 12 : log géologique des formations rencontrées dans le département de la Dordogne..... 65
Figure 13 : Carte piézométrique de l'aquifère multicouche du Jurassique réalisé dans des conditions de basses eaux en octobre 2016..... 69
Figure 14 : Carte piézométrique de l'aquifère multicouche du Crétacé supérieur réalisé dans des conditions de basses eaux en octobre 2016. 70
Figure 15 : Topographie de la vasque de la source de l'Abîme (modifié d'après Von Stempel, 1972). 74
Figure 16 : Présentation du site du Toulon. 75
Figure 17 : Localisation du réseau de suivi climatique sur la zone d'étude..... 77
Figure 18 : Comparaison inter-anuelle des données de températrure et de précipitation avec les moyennes mensuelles de température (2007-2018) et de précipitations (1995-2018). En couleur, les données de l'année considérée, en noir les moyennes mensuelles..... 80
Figure 19 : Principales rivières et cours d'eau de la zone d'étude..... 81
Figure 20 : Contexte géomorphologique et occupation du territoire en amont des Sources du Toulon..... 83
Figure 21 : Contexte géologique de l'hydrosystème karstique des Sources du Toulon.. 84
Figure 22 : Coupe géologique Sud-Ouest - Nord-Est interprétative d'après la carte géologique et les forages de la zone d'étude. Se reporter à la Figure 21 pour le positionnement de la coupe AB. 86
Figure 23 : Coupe géologique Est – Ouest interprétative d'après la carte géologique et les forages de la zone d'étude. Se reporter à la Figure 21 pour le positionnement de la coupe CD. 87
Figure 24 : Localisation des principaux exutoires de la zone d'étude. La légende de la carte géologique est similaire à celle de la Figure 21. La taille des gouttes est proportionnelle au débit des émergences..... 89

Figure 25 : Evolution des périmètres de protections éloignés (PPE) de 1935 à 2004, en lien avec les traçages hydrogéologiques réalisés entre 1980 et 2002. 90
Figure 26 : Chronologie de la stratégie d'étude réalisée sur les Sources du Toulon de février 2014 à octobre 2018. 94
Figure 27 : Localisation de tous les points prélevés pendant l'étude sur les Sources du Toulon depuis février 2014. 97
Figure 28 : Synthèse des prélèvements effectués sur la source de l'Abîme du Toulon dans les différentes conditions d'écoulement, du 1er octobre 2013 au 1er octobre 2018..... 98
Figure 29 : A) Chronique d'évapotranspiration potentielle estimée entre 2007 et 2018 à partir de la formule de Oudin et *al.*, (2005) appliquée sur les données des stations météorologiques d'Antone-et-Trigonant et du Lyonnet. B) Comparaison des valeurs d'ETP estimée du 21/01/2016 au 30/09/2018 à partir des formules de Penman-Monteith et d'Oudin et *al.*, (2005) appliquée sur les données de la station météorologique du Lyonnet..... 109
Figure 30 : Evolution des éléments majeurs mesurés dans les retombés humides prélevées sur le site des ateliers municipaux de Champcevinel de janvier 2016 à septembre 2018. Les évolutions des pluies, du débit des Sources du Toulon, et des températures de l'air sont aussi présentées..... 112
Figure 31 : Evolution des isotopes stables de la molécule d'eau et de l'excès en deutérieum mesurés dans les retombés humides prélevées sur le site des ateliers municipaux de Champcevinel de janvier 2016 à Septembre 2018. L'évolution des pluies, du débit des Sources du Toulon, et des températures de l'air est aussi présentée. 114
Figure 32 : Comparaison des mesures isotopiques des précipitations mesurés à Champcevinel et la droite météorique locale avec la droite météorique mondiale dans le repère $\delta^2H=f(\delta^{18}O)$. Les points en bleus correspondent aux signatures isotopiques de la source de l'Abîme du Toulon. 116
Figure 33 : Evolution temporelle des débits journaliers des Sources du Toulon et des pluies brutes de juillet 2007 à septembre 2018 119
Figure 34 : Analyse de la courbe de récession du cycle hydrologique 2014-2015. La ligne rouge correspond à la tendance de l'évolution des débits de mai 2015 à janvier 2016. 123
Figure 35 : A) Auto-corrélogramme des débits journaliers des Sources du Toulon, de juillet 2007 à septembre 2018. B) Corrélogramme croisé des débits journaliers des Sources du Toulon et des précipitations, de juillet 2007 à septembre 2018. 124
Figure 36 : Classification des systèmes karstiques basée sur les résultats de l'analyse de récession (adaptée d'après El-Hakim et Bakalowicz, 2007 ; Moussu, 2011). 126
Figure 37 : Localisation des forages prélevés ou analysés pendant ces travaux. 128
Figure 38 : Evolution temporelle des débits et des paramètres physico-chimiques mesurés aux Sources du Toulon d'octobre 2013 à septembre 2018. 131
Figure 39 : A) Espace des individus dans le premier plan factoriel établi à partir des échantillons d'eaux des Sources du Toulon, de la fontaine du Godet, de la source de la Clavelie, et de la source du stade COPO. B) Espace des variables dans le premier plan factoriel. HE : Hautes eaux. BE : Basses eaux. 132
Figure 40 :Diagramme magnésium vs oxygène dissous. La flèche rouge illustre le mélange des eaux du Crétacé supérieur avec l'aquifère captif du Jurassique. La flèche noir illustre l'évolution des eaux du Cétacé supérieur vers des eaux à temps de résidence plus long, sans influence d'un autre aquifère. HE : Hautes eaux. BE : Basses eaux. 134
Figure 41 : Localisation des ouvrages ayant été échantillonnés pour une datation des eaux. 135
Figure 42 : Schéma conceptuel de fonctionnement hydrogéologique du système karstique du Toulon. A) période de hautes eaux. B) période de basses eaux. 137

Figure 43 : Méthodologie de calcul de participation de chaque pôle au débit des Sources du Toulon. A) théorie. B) application. 140
Figure 44 : Décomposition de l'hydrogramme des Sources du Toulon. A) Evolution du pourcentage de participation des pôles Jurassique et eaux d'infiltration. B) Evolution des volumes apportés par les deux pôles. 141
Figure 45 : Localisation des points d'injection et des points de surveillance lors des opérations de traçages artificels réalisés pendant ces travaux. Les traçages des études précédentes sont également représentés. 144
Figure 46 : Résultats des traçages artificiels réalisés dans le cadre des travaux de Thèse entre avril 2017 et mars 2018. 146
Figure 47 : Nouvelle proposition du bassin d'alimentation des Sources Toulon. En rouge, le sous bassin karstique fonctionnel. 149
Figure 48 : Localisation du dispositif mis en place sur le site du Toulon 158
Figure 49 : A) Illustration de l'armoire électrique, du système de mesure de l'Abîme du Toulon et du tuyau vers la pompe d'aspiration. B) Illustration des systèmes d'acquisition des mesures dans l'armoire électrique. 159
Figure 50 : A) Composition du système de mesure de l'Abîme du Toulon avec illustration de la chambre de stabilisation et de la chambre de mesure. B) Illustration et localisation des capteurs dans la chambre de mesure. 160
Figure 51 : Schéma du fonctionnement de la station de mesure de l'Abîme du Toulon. 161
Figure 52 : Synoptique du fonctionnement du SSERK'ŒIL. 163
Figure 53 : A) Relation entre le signal du GGUN FL30 et les mesures de laboratoire du carbone organique dissous. B) Relation entre les concentrations en COD mesurées par le spectro::lyser et les concentrations en COD mesurées en laboratoire. 164
Figure 54 : A) Décalage type « offset » réalisé pour calibrer le paramètre nitrate du Spectro::lyser. B) Relation entre les concentrations en nitrate mesurées par le spectro::lyser et les concentrations en nitrates mesurées en laboratoire. 165
Figure 55 : Evolution temporelle de la turbidité mesurée dans l'Abîme du Toulon et de l'ajout de chlorure ferrique pour le traitement de l'eau brute pompée du 01/10/2017 au 15/01/2018. 166
Figure 56 : Evolution temporelle des paramètres physico-chimiques en lien avec les réponses hydrodynamqiues, enregistrée en continu aux Sources du Toulon, du 01/10/2015 au 30/09/2018. 169
Figure 57 : Evolution temporelle des débits et des paramètres physico-chimiques mesurés en continu aux Sources du Toulon. A) crue de février 2017. B) crue de décembre 2017. 173
Figure 58 : Evolution temporelle des débits et des paramètres physico-chimiques mesurés en continu aux Sources du Toulon. A) crue d'avril 2016. B) crue d'avril 2018. 175
Figure 59 : Evolution temporelle des débits et des paramètres physico-chimiques mesurés en continu aux Sources du Toulon. A) crue de juillet 2017. B) crue de novembre 2017. 177
Figure 60 : Corrélogrammes simples réalisés avec l'ensemble des données enregistrées par le SSERK'ŒIL A) débits, B) turbidité, C) conductivité électrique, D) pH, E) température, F) oxygène dissous, G) carbone organique dissous, H) nitrates. 181
Figure 61 : Corrélogrammes croisés réalisés avec l'ensemble des données enregistrées par le SSERK'ŒIL, en considérant la pluie (bleu) ou le débit (rouge) comme signal d'entrée A) débits, B) turbidité, C) conductivité électrique, D) pH, E) température, F) oxygène dissous, G) carbone organique dissous, H) nitrates. 184
Figure 62 : Corrélogrammes croisés réalisés pendant la crue d'avril 2016, en considérant la pluie (bleu) ou le débit (rouge) comme signal d'entrée A) débits, B) turbidité,

C) conductivité électrique, D) pH, E) température, F) oxygène dissous, G) carbone organique dissous, H) nitrates. 187
Figure 63 : Corrélogrammes croisés réalisés pendant la crue de juillet 2017, en considérant la pluie (bleu) ou le débit (rouge) comme signal d'entrée A) débits, B) turbidité, C) carbone organique dissous, D) nitrates. 189
Figure 64 : Principales transformations de l'azote dans les écosystèmes (adapté d'après Kendall, 1998). 197
Figure 65 : Compositions isotopiques attendues des $\delta^{15}N$ et $\delta^{18}O$ issus des différents pôles potentiels (modifié d'après Kendall, 1998). 200
Figure 66 : Localisation des sources karstiques (GW), eaux de surface (SW), forages (B) et sources potentielles de nitrates (NS) échantilonnés. 202
Figure 67 : Concentration en nitrates mesurée sur les points de mesure de la campagne de novembre 2015. 206
Figure 68 : Concentration en nitrates mesurée sur les points de mesure de la campagne de janvier 2016. 207
Figure 69 : Concentration en nitrates mesurée sur les points de la campagne de mai 2016. 208
Figure 70 : Compositions isotopiques des sources potentielles de nitrates mesurées sur la zone d'étude 215
Figure 71 : $\delta^{15}N_{-NO3^-}$ et $\delta^{18}O_{-NO3^-}$ mesurés dans les eaux de surface de la zone d'étude. 218
Figure 72 :Concentrations en nitrates et compositions isotopiques de l'azote 15 des nitrates des échantillons du compatiment de surface. 219
Figure 73 : $\delta^{15}N_{-NO3^-}$ et $\delta^{18}O_{-NO3^-}$ mesurés dans les eaux souterraines de la zone d'étude. BE : basses eaux. HE : hautes eaux. 220
Figure 74 : Concentrations en chlorures et rapports molaires NO_3^- / Cl^- pour les échantillons ds eaux souterraines prélevés pendant ces travaux. BE : basses eaux. HE : hautes eaux. 221
Figure 75 : $\delta^{15}N_{-NO3^-}$ et $\delta^{18}O_{-NO3^-}$ mesurés aux Sources du Toulon et dans les forages. BE : basses eaux. HE : hautes eaux. 224
Figure 76 : Schéma conceptuel de fonctionnement du système karstique multicouche du Toulon en lien avec le transfert d'azote, et estimation quantitative des flux d'azote moyens annuels dans l'hydrosystème. 225
Figure 77 : A) Evolution temporelle des débits, des paramètres hydrochimiques, et des éléments bactériens pendant la crue de février 2017. B) Evolution temporelle des débits, et des paramètres hydrochimiques pendant la crue de décembre 2017. 241
Figure 78 : A) $NO_3^-{}_{norm}$ vs COD_{norm} pendant la crue de février 2017. B) pendant la crue de décembre 2017. 242
Figure 79 : Evolution du débit, de la turbidité et de 4 classes de distribution de taille de particules aux Sources du Toulon pendant la crue de février 2017. 243
Figure 80 : Images obtenues après analayse au microscope electronique à balayage des échantillons prélevés aux Sources du Toulon pendant la crue de février 2017. a,b,c : particules minérales, respectivement quartz, calcite, et foraminifère en calcite. d,e,f : particules organiques, respectivement flocs organo-minéral, colonie bactérienne sur un débris végétal, débris végétal. 244
Figure 81 : Synoptique d'utilisation de la méthode d'interprétation proposée dans ces travaux. 247
Figure 82 : Schéma conceptuel illustrant la vulnérabilité du système karstique du Toulon en lien avec la turbidité, les nitraates, et les bactéries en période de crue. Les catégories I, II, III correspondent à celles de la Figure 81. 248

Figure 83 : Synoptique d'utilisation du diagramme $NO_3^-{}_{norm}$ vs COD_{norm} en domaine karstique. 250
Figure 84 : Identification des périodes de vulnérabilité en crue des Sources du Toulon après application de l'analyse des pentes du diagramme $NO_3^-{}_{norm}$ vs COD_{norm}. A) crue de février 2017. B) crue de décembre 2017. 251
Figure 85 : Schéma hydrogéologique du système karstique multicouche du Toulon. . 261

Liste des tableaux

Tableau 1 : Aperçu de quelques caractéristiques des traceurs fluorescents (Käss, 1998). 46
Tableau 2 : a) Température et pluie annuelle pour chaque année de 1995 à 2018. b) Température moyenne annuelle de 2017 à 2018, et précipitation moyenne annuelle de 1995 à 2018. 79
Tableau 3 : Synthèse des traçages artificiels réalisés en amont des Sources du Toulon depuis 1992. 90
Tableau 4 : Synthèse des prélèvements réalisés dans ces travaux depuis février 2014. . 95
Tableau 5 : A) Synthèse des paramètres climatiques permettant l'estimation de la recharge du système karstique du Toulon à partir d'une approche de bilan hydrique du sol. B) Statistique descriptive des paramètres mesurés (Pluie annuelle) et estimés (ETP annuelle, recharge annuelle, part de recharge) à partir d'une approche de bilan hydrique. 111
Tableau 6 : Statistique descriptive des éléments majeurs mesurés dans les retombées humides prélevées sur le site des ateliers municipaux de Champcevinel de janvier 2016 à septembre 2018. n correspond au nombre de valeur. La moyenne calculée est la moyenne pondérée par le cumul de précipitation échantillonné. 113
Tableau 7 : Statistique descriptive des isotopes stables de la molécule d'eau vsSMOW et de l'excès en deutérieum mesurés dans les précipitations prélevées sur le site des ateliers municipaux de Champcevinel de janvier 2016 à septembre 2018. n correspond au nombre de valeur. 115
Tableau 8 : Synthèse des résultats fournis par les bilans hydrologiques appliqués par cycle hydrologique de 2007 à 2018 sur le système karstique du Toulon. 117
Tableau 9 : Synthèse des résultats fournis par le bilan hydrologique appliqué de 2007 à 2018 sur le système karstique du Toulon. 118
Tableau 10 : Caractéristiques des récessions analysée sur le système karstique du Toulon de 2007 à 2017. 122
Tableau 11 : Statistique descriptive des échantillons d'eau analysés aux Sources du Toulon, fontaine du Godet, source de la Clavelie, et source du stade COPO, entre février 2014 et septembre 2018. 127
Tableau 12 : Statistique descriptive des échantillons d'eau analysés sur les forages localisés en Périphérie de la ville de Périgueux. Les données des forages en bleus sont issues des prélèvements réalisés pendant ces travaux. Les données des forages en rouge proviennent de la base de données ADES eau France. 127
Tableau 13 : Synthèse des datations au carbone 14 réalisés sur des ouvrages de Dordogne. N.A. : non analysé. 135
Tableau 14 : Synthèse des paramètres utilisés pour le calcul du bilan hydrologique apporté par les eaux du Crétacé supérieur. A) Bilan hydrologique annuel. B) Bilan hydrologique de 2013 à 2018. 142
Tableau 15 : Description des principales caractéristiques des points d'injection choisis pour les traçages artificiels. 143

Tableau 16 : Description des points de surveillance choisis pour les opérations de traçage multi-traceurs. 144
Tableau 17 : Synthèse des principaux résultats des traçages artificiels. 145
Tableau 18 : Synthèse des capteurs constituants le SSERK'ŒIL. 162
Tableau 19 : Statistiques des séries temporelles des paramètres physico-chimiques enregistrés aux Sources du Toulon avec le SSERK'ŒIL. 170
Tableau 20 : Statistiques descriptives des crues servant à l'analyse des modalités de transfert des éléments dissous et particulaires dans le système karstique du Toulon. 172
Tableau 21 : Synthèse des résultats des analyses corrélatoires simples et croisées réalisées avec l'ensemble de la chronique obtenue par le SSERK'ŒIL, entre octobre 2015 et septembre 2018. ACS : Analyse corrélatoire simple. ACS : Analyse corrélatoire croiée 179
Tableau 22 : Synthèse des résultats des analyses corrélatoires croisées réalisées pendant la crue d'avril 2016. 188
Tableau 23 : Synthèse des sources karstiques, forages et rivières prélevés dans ce travail. 203
Tableau 24 : Description du prélèvement, compositions chimiques ($mg.L^{-1}$) et composition isotopique (‰) des échantillons d'eaux souterraines. 210
Tableau 25 : Description du prélèvement, compositions chimiques ($mg.L^{-1}$) et composition isotopique (‰) des échantillons d'eau de surface. 211
Tableau 26 : Description du prélèvement, compositions chimiques ($mg.L^{-1}$) et composition isotopique (‰) des échantillons de la source de l'Abîme du Toulon. 212
Tableau 27 : Description du prélèvement, compositions chimiques ($mg.L^{-1}$) et composition isotopique (‰) des échantillons d'eau des forages. 213
Tableau 28 : Description de l'échantillon, compositions chimiques ($mg.L^{-1}$) et composition isotopique (‰) des échantillons des sources potentielles de nitrates. 213
Tableau 29 : Statistiques descriptives des paramètres hydrodynamiques, hydrochimiques et bactériologiques mesurées pendant les crues de février 2017 et de décembre 2017. n correspond au nombre de valeurs mesurées. σ correspond à l'écart type. CV correspond au coefficient de variation, exprimé en %. 239
Tableau 30 : Concentrations en bactéries mesurées dans plusieurs aquifères karstiques. 245
Tableau 31 : Synthèse des prélèvements à réaliser. En jaune les paramètres à prélever en routine 305

INTRODUCTION

Si la ressource en eau est généralement considérée comme renouvelable en zone tempérée, 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 (MacDonald et *al*,. 2012 ; 2014 ; Dochartaigh et *al.*, 2015). Face à ces pressions anthropiques toujours croissantes (Wada et *al*,. 2010), une gestion quantitative et qualitative rationnelle des ressources en eau est un enjeu majeur au cœur des préoccupations actuelles et pour les décennies à venir. Cette gestion efficace nécessite une bonne compréhension du fonctionnement des masses d'eau sollicitées, qu'il s'agisse d'eaux souterraines ou de surface.

Parmi les masses d'eau souterraines, les aquifères karstiques sont largement utilisés comme ressource en eau potable. Environ 25 % de la population mondiale dépend en grande partie, ou entièrement, des aquifères karstiques (Ford et Williams, 2007). Les roches carbonatées sont largement distribuées dans le monde entier, et notamment en Europe (Figure 1). Certains pays européens comme l'Autriche, la Slovénie, ou la Croatie dépendent à plus de 50 % de la ressource en eau karstique (COST ACTION 65, 1995).

Comprendre le fonctionnement hydrogéologique des aquifères karstiques (hydrodynamique et hydrochimique) en lien avec la recharge des aquifères est un préalable fondamental pour le développement d'une stratégie de protection et de gestion durable de la ressource en eau.

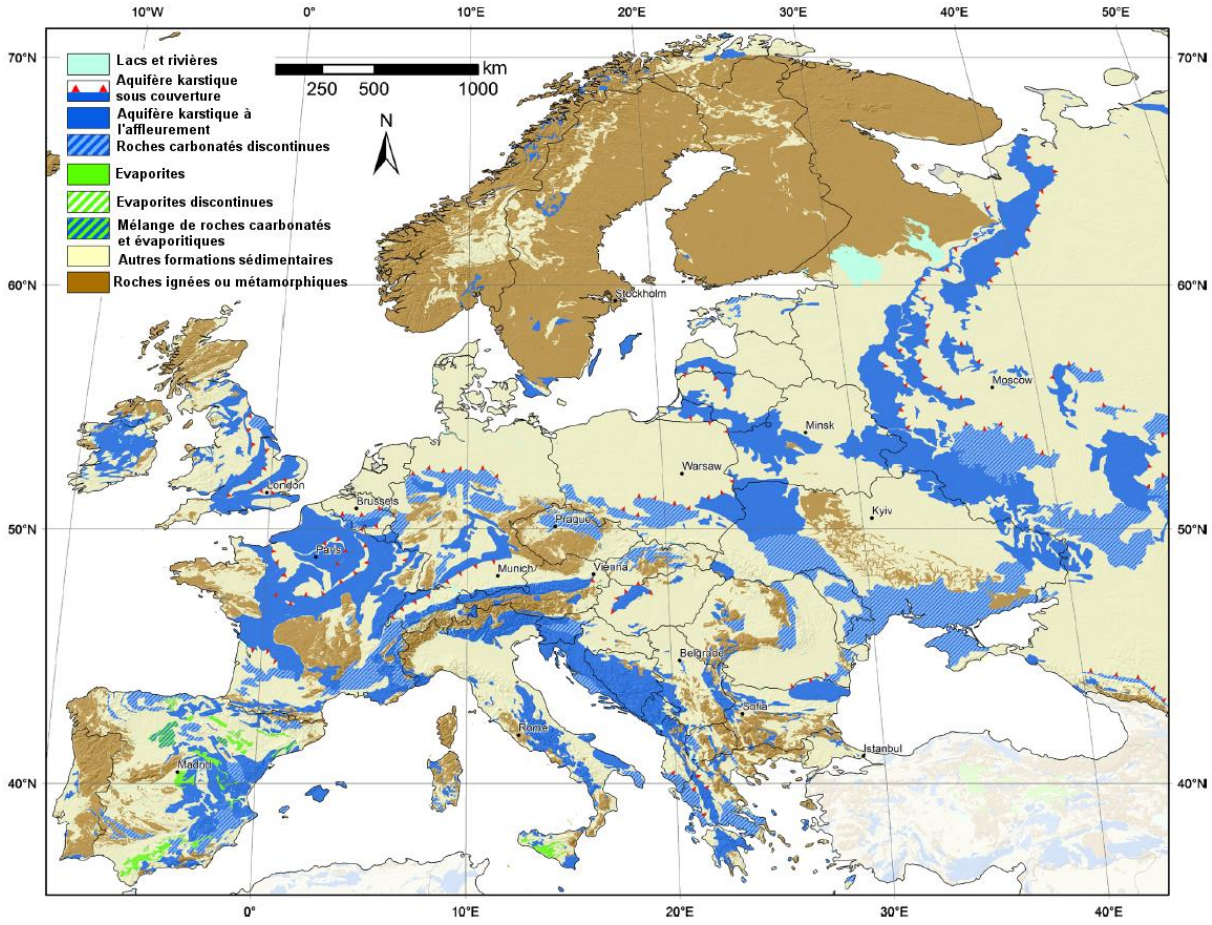


Figure 1 : Affleurement des roches carbonatées en Europe. La délimitation des roches carbonatées détermine une limite maximale aux aquifères karstiques (modifié d'après Chen et *al.*, 2017).

Ce travail de thèse s'intègre dans une problématique de protection de la ressource en eau karstique par caractérisation du fonctionnement hydrogéologique.

L'objectif de ce travail de thèse est de tester la faisabilité d'une approche multi-traceurs couplée à un suivi haute-résolution des paramètres physico-chimiques pour évaluer le fonctionnement et la vulnérabilité d'un système karstique multicouche localisé en bordure de bassin sédimentaire. Ce travail s'appuie sur l'étude des Sources du Toulon, situées dans le département de la Dordogne (Sud-Ouest de la France) (Figure 2). Cette ressource est primordiale pour ce département Dordogne car elle alimente la ville de Périgueux en eau potable depuis 1832 et constitue actuellement son unique ressource.

Les Sources du Toulon sont constituées de deux sources (Figure 3): **la Source de l'Abîme du Toulon** (BSS001WDGM) et la **Source du Cluzeau du Toulon** (BSS001WDGL), situées à une centaine de mètres l'une de l'autre. Depuis 2005, le débit moyen cumulé de ces sources est d'environ 450 $L.s^{-1}$, avec un débit minimum et maximum respectivement de 230 $L.s^{-1}$ et de 940 $L.s^{-1}$. Les études précédentes de Roux (1888), Glangeaud (1935), Schoëller (1970, 1971a, 1971b), Von Stempel (1972), Sourisseau (1984), Angeli (1996), et Lorette (2014) ont confirmé l'origine commune de ces deux sources. La source de l'Abîme correspond à 90 % du débit total des Sources du Toulon, ce qui en fait donc l'exutoire majeur, et notre site expérimental les actions menées pendant ces travaux de thèse.

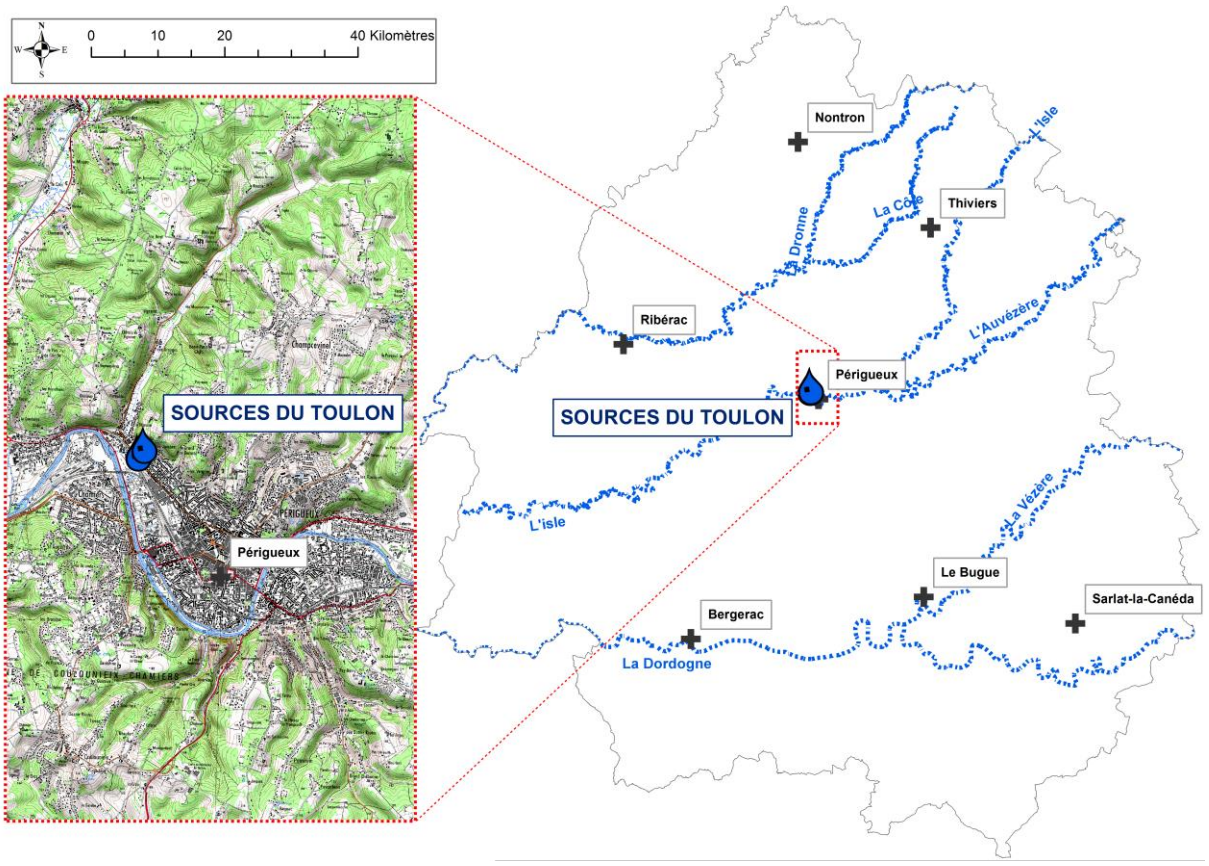


Figure 2 : Localisation des Sources du Toulon dans le département de la Dordogne et dans la ville de Périgueux.

Figure 3 : A gauche, la source de l'Abîme du Toulon. A droite, le captage de la source du Cluzeau du Toulon.

Ce travail de thèse a pour objectif d'améliorer la compréhension et la connaissance du fonctionnement de l'aquifère karstique du Toulon. Pour cela, nous avons dû acquérir de nouvelles données et développer plusieurs axes de recherches complémentaires à une finalité appliquée :

- l'identification des aquifères alimentant les Sources du Toulon ;
- la définition de leur zone d'alimentation ;
- l'estimation du degré de protection de la ressource en eau dans les parties libres et captives de l'aquifère ;
- l'identification des sources et du devenir des nitrates dans l'aquifère karstique ;
- l'évaluation temporelle de la vulnérabilité des Sources du Toulon.

Outre les outils classiques (hydrodynamique, hydrochimie), l'originalité de ces travaux de thèse repose sur (i) : le développement d'un système de mesure en continu précis, fiable et durable dans le temps pour un meilleur monitoring de la qualité des eaux souterraines ; (ii) l'utilisation des isotopes des nitrates ($\delta^{15}N_{-NO3^-}$; $\delta^{18}O_{-NO3^-}$) comme outil innovant de l'hydrogéologie karstique ; (iii) des réflexions sur le fonctionnement des grands aquifères en bordure de bassin sédimentaire, en particulier sur les relations entre les aquifères libres et captifs.

Le **Chapitre 1** présente un bref état des connaissances du fonctionnement des aquifères karstiques et de leurs problématiques pour la gestion de la ressource en eau.

Le **Chapitre 2** présente l'intégration du système karstique du Toulon dans le cadre hydrogéologique régional, ainsi que les approches utilisées pour caractériser son fonctionnement et sa vulnérabilité.

Le **Chapitre 3** expose dans un premier temps le couplage d'une approche hydrodynamique et hydrochimique pour caractériser le fonctionnement hydrogéologique des Sources du Toulon en se focalisant sur l'utilisation des traceurs naturels ou artificiels. Dans un deuxième temps, il propose une réflexion innovante pour la délimitation des bassins d'alimentation des systèmes karstiques à alimentation multiréservoirs.

Le **Chapitre 4** propose premièrement la description du fonctionnement du dispositif de mesure en continu mis en place. Il présente ensuite l'apport de l'utilisation des données haute-résolution pour préciser les transferts des éléments dissous dans l'aquifère karstique à partir d'analyse des variations temporelles et d'analyses corrélatoires simples et croisées.

Le **Chapitre 5** traite d'une approche innovante pour identifier les sources et le devenir des nitrates dans l'aquifère karstique. Il montre également le couplage des outils isotopiques et des outils hydrogéologiques pour préciser le fonctionnement des systèmes karstiques.

Le **Chapitre 6** développe une approche pour préciser temporellement la vulnérabilité de la ressource en eau lors des épisodes de crue, par analyse des signaux en continu de turbidité, carbone organique dissous, et nitrates.

L'ensemble des informations recueillies sont ensuite regroupées pour en réaliser une **discussion sur le système karstique multicouche du Toulon**.

Enfin, ce manuscrit se termine par une **conclusion** et par la proposition de perspectives à ces travaux.

CHAPITRE 1
L'AQUIFERE KARSTIQUE ; SA STRUCTURE, SES PROBLEMATIQUES ET SES ENJEUX

Ce chapitre est dédié à la présentation de la structure du karst et des problématiques liées à la gestion et à la protection des aquifères karstiques. Une deuxième partie présentera les outils de traçage naturel et artificiel classiquement utilisés pour le suivi des eaux karstiques. Les outils plus spécifiques à ces travaux sont détaillés dans les chapitres suivants.

Il ne s'agit pas ici de réaliser une synthèse exhaustive de la structure et du fonctionnement des aquifères karstiques, mais de fournir au lecteur le bagage nécessaire pour apprécier le travail décrit dans les parties suivantes de ce manuscrit.

Pour plus d'informations fondamentales sur le karst en tant que paysage ou aquifère, le lecteur est orienté vers des travaux synthétisant les informations, tels que ceux de Ford et Williams (2007), Peyraube (2011), ou plus récemment Jouves (2018).

1. La structure de l'aquifère karstique

Les nombreux travaux de recherche sur le karst et les aquifères aquifères karstiques permettent de proposer plusieurs définitions pour désigner le processus qui résulte de l'action de dissolution de l'eau sur certains types de roches.

L'origine du mot karst est allemande et provient de la dénomination géographique d'une région s'étendant de Trieste en Italie, jusqu'au mont Sneznik à l'Est de la Slovénie. Cette région était souvent étendue à une région située plus au Nord, le karst de la Carniole jusqu'à Ljubjana (Cvikic, 1960). Le mot karst alors s'est répandu dans l'Europe centrale et occidentale. On désigne sous le nom de « phénomènes karstiques » les formes du relief, les caractères morphologiques et les processus hydrographiques particuliers aux terrains calcaires ou salins sur toute la surface de la Terre. En effet, le paysage karstique résulte des écoulements souterrains particuliers qui se mettent en place progressivement dans les roches carbonatées (calcaires et dolomies) et dans les roches salines (gypse), en lien avec la géodynamique du territoire.

Le karst constitue également un aquifère puisque l'eau souterraine est impliquée dans sa formation et dans son fonctionnement (Mangin, 1975 ; Bakalowicz, 1982). Le système karstique (Figure 4) est l'ensemble de formes de surface et souterraines organisées les unes par rapport aux autres pour constituer une unité de drainage. L'eau de pluie infiltrée se charge en gaz carbonique lors de son passage à travers le sol et, sous l'effet d'un gradient hydraulique, circule dans les fractures de la roche. Par la suite, l'action de l'eau (altération et érosion) élargit les fissures par lesquelles elle circule, les transformant progressivement en conduits. Des conduits organisés en réseau se forment et drainent les eaux depuis la surface jusqu'à une source généralement unique tandis que des zones de stockage connectées au réseau de conduits prennent place dans la zone saturée de l'aquifère. Le résultat se traduit par une hétérogénéité considérable du milieu avec une organisation des vides déterminée par les écoulements souterrains (Mangin, 1975).

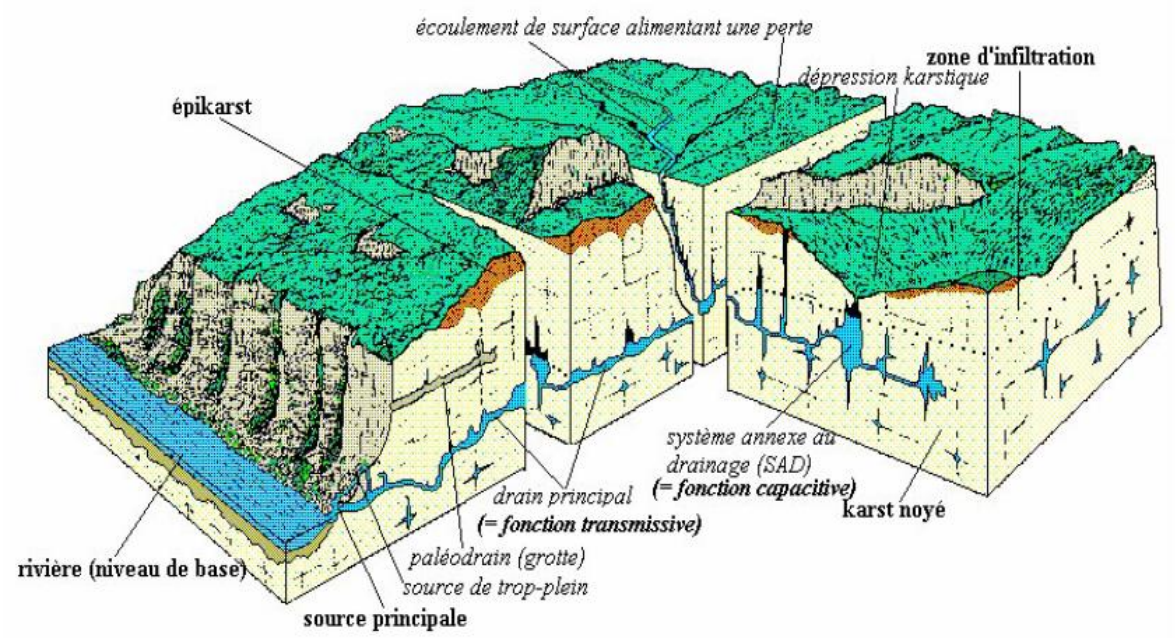


Figure 4 : Représentation du système karstique (Mangin, 1975).

Les aquifères karstiques sont hydrauliquement très hétérogènes, anisotropes et peuvent être décrits par une double porosité et une triple perméabilité. Ces caractéristiques impliquent différents types d'écoulement dans l'aquifère : (i) l'écoulement matriciel, (ii) l'écoulement de fracture-fissure, (iii) l'écoulement de conduits (Liedl et *al.*, 2003 ; Geyer *al.*, 2008). La lithologie, la distribution des failles, la structure et le potentiel hydraulique sont très importants pour générer et contrôler l'écoulement souterrain (Ford et Williams, 1989).

Dans l'aquifère karstique, on distingue la zone épikarstique, la zone non saturée et la zone saturée (Figure 5). La première constitue la zone superficielle du réservoir caractérisée par des processus biogéochimiques et de dissolution importants en raison de sa proximité avec le sol (Blavoux et Mudry, 1986 ; Houillon, 2016), et peut traduire la présence d'un aquifère perché avec une capacité de stockage importante (Klimchouk, 2004 ; Perrin et *al.*, 2003a ; Peyraube, 2011). Sous-jacente, la zone non saturée (Figure 5) est définie comme une zone d'infiltration caractérisée par des vitesses d'écoulements très hétérogènes avec des vitesses de transit très rapides dans les conduits et beaucoup plus lentes dans la matrice fracturée (Bakalowicz, 1982 ; Einsiedl, 2005). Elle peut jouer un rôle conséquent en tant que réservoir (Mudry, 1987 ; Lastennet, 1994 ; Emblanch et *al.*, 1998 ; Batiot 2002 ; Mudarra et Andreo, 2011). Enfin, la zone saturée (Figure 5) constitue la zone noyée du réservoir aquifère avec d'une part le conduit très perméable et d'autre part la matrice fracturée définie comme volume peu perméable mais présentant une capacité de stockage conséquente (Blavoux et Mudry, 1983 ; Kiraly, 1998).

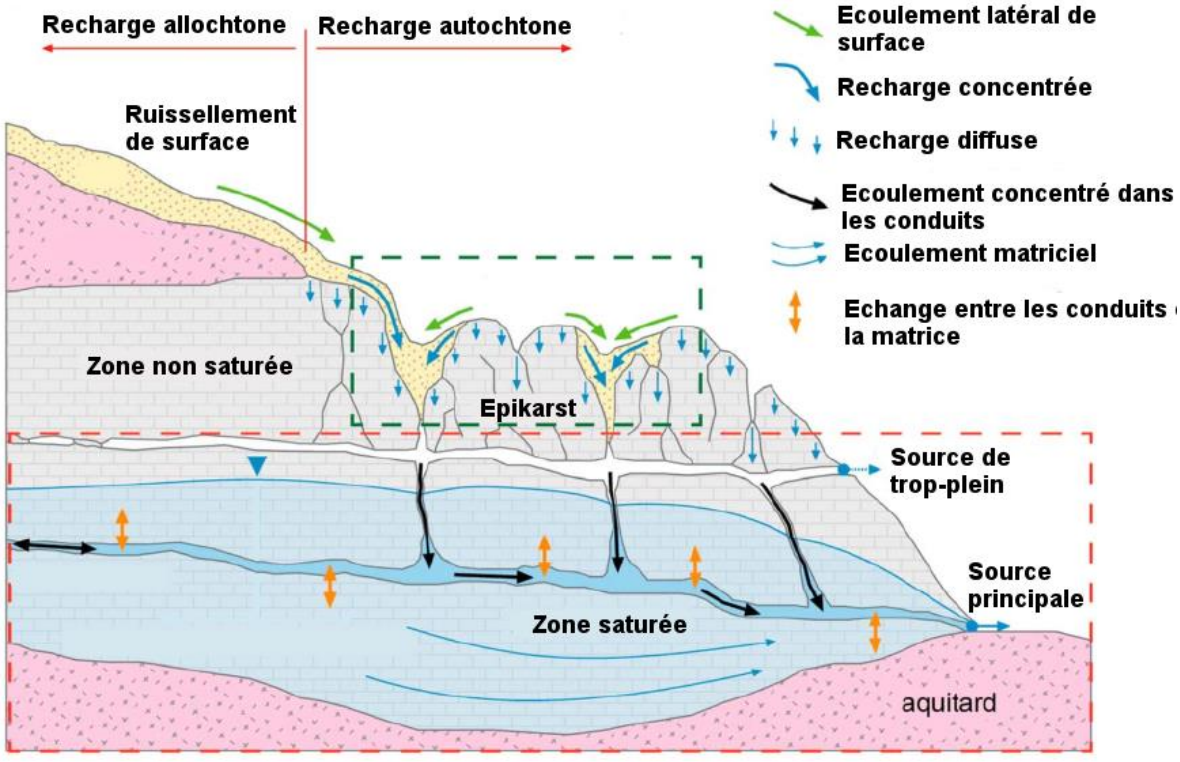


Figure 5 : Modèle conceptuel des écoulements dans les aquifères karstiques (modifié d'après Hartman et *al.*, 2014). Les pointillés verts foncés et rouge correspondent respectivement aux compartiments superficiels et profonds de l'aquifère karstique.

2. Les problématiques et les enjeux des aquifères karstiques

Les aquifères karstiques sont souvent caractérisés par un transport rapide grâce aux réseaux d'écoulement préférentiels dans la zone non saturée et dans la zone saturée (Figure 5). De plus, les écoulements en surface peuvent s'infiltrer par des formes géomorphologiques particulières, tels que des dolines ou des pertes (Figure 4), induisant une infiltration concentrée vers le compartiment souterrain (Pronk et *al.*, 2006 ; Fournier et *al.*, 2007). Les vitesses de circulations dans l'aquifère karstiques sont de l'ordre de quelques mètres par heure à plusieurs centaines de mètres par heure (Atkinson et *al.*, 1973 ; Geyer et *al.*, 2007 ; Labat and Mangin, 2015 ; Marin et *al.*, 2015).

De ces caractéristiques uniques en découlent un fonctionnement hydrogéologique défini comme complexe en comparaison aux aquifères de type poreux (White, 1988 ; Bakalowicz, 1995, 2005 ; Ford and Williams, 2007, Worthington and Ford, 2009). Ces infiltrations concentrées et ces transferts rapides dans l'aquifère conduisent à des changements rapides de la chimie de l'eau, et par conséquent de la qualité de l'eau à l'exutoire des systèmes karstiques après des évènements pluvieux (Mahler et Lynch, 1999 ; Auckenthaler et *al.*, 2002 ; Pronk et *al.*, 2006 ; Heinz et *al.*, 2009, Filippini et *al.*, 2018 ; Schiperski et *al.*, 2015a, 2015b ; Ender et *al.*, 2018).

Du point de vue hydrogéologique, le changement de chimie de l'eau à l'exutoire d'un système karstique est assimilable à l'arrivée d'une eau différente. L'identification de ces différentes eaux, en lien avec les évènements pluvieux, permet d'étudier « **le fonctionnement hydrogéologique d'un aquifère karstique** ».

Comprendre le fonctionnement hydrogéologique des aquifères karstiques en lien avec la recharge des aquifères est un préalable fondamental pour le développement d'une stratégie de protection et de gestion durable de la ressource en eau.

Depuis plusieurs décennies, de nombreux travaux visent à caractériser le fonctionnement hydrogéologique par le développement de méthodologies spécifiques pour les aquifères karstiques. L'analyse de ce fonctionnement est généralement menée en utilisant plusieurs méthodes : (i) de traçage naturel (Bakalowicz, 1979 ; Lakey et Krothe, 1996 ; Lastennet et Mudry, 1997 ; Lopez-Chicano et *al.*, 2001 ; Perrin et *al.*, 2003a ; Moore et *al.*, 2009 ; Mudarra et *al.*, 2012 ; Minvielle et *al.*, 2015 ; Mance et *al.*, 2014 ; Brkic et *al.*, 2018 ; Ayadi et *al.*, 2018), (ii) de traçage artificiel (Atkinson et *al.*, 1973 ; Geyer et *al.*, 2007 ; Luhmann et *al.*, 2012 ; Labat and Mangin, 2015), (iii) de l'analyse des réponses hydrodynamiques aux exutoires (Mangin, 1984 ; Bonacci, 1993 ; Padilla et *al.*, 1994 ; Pulido-Bosh et *al.*, 1995 ; Lambrakis et *al.*, 2000 ; Amit et *al.*, 2002 ; Labat et *al.*, 2002 ; Delbart et *al.*, 2014 ; Eris et Wittenberg, 2015 ; Fu et *al.*, 2016), (iv) de caractéristiques lithologiques des carbonates (Drogue, 1969 ; Kiraly, 1975 ; Burger, 1983).

Les résultats fournis par ces approches peuvent permettre d'alimenter la réflexion d'hydrogéologues pour le développement de modèles conceptuels de fonctionnement hydrogéologique (Mudarra et *al.*, 2012 ; Bicalho et al., 2012 ; Ender et *al.*, 2018).

Le transfert rapide de l'eau dans l'aquifère karstique en fait un milieu particulièrement vulnérable aux contaminations de surface (bactériologie, nitrate, pesticides, polluants émergents, *etc.*). La mesure de tels contaminants traduit un transfert d'une eau dite « récente » jusqu'à l'exutoire des systèmes karstiques. Ce transfert rapide dans l'aquifère

karstique nécessite une bonne gestion de l'évolution de territoire en surface. Il en découle de cette caractéristique que l'aquifère karstique est bon marqueur d'enregistrement des changement globaux (Jeannin et *al.*, 2016).

Le suivi des paramètres hydrodynamiques (pluie, débit) et des paramètres physico-chimiques classiques (température, conductivité électrique) se justifient pour la surveillance de l'évolution des hydrosystèmes karstiques face au changement climatique (Jourde et *al.*, 2018).

En résumé, l'aquifère karstique peut être défini comme :

- **un aquifère hétérogène**, permettant le transit rapide de différentes masses d'eau, et qui nécessite le développement de méthodologies spécifiques pour caractériser son fonctionnement ;
- **vulnérable aux contaminations de surface**, nécessitant une surveillance accrue de la qualité de la ressource en eau, et une évolution de l'occupation du territoire en surface en lien avec le caractère karstique de l'aquifère ;
- **un marqueur du changement climatique**, justifiant la mise en place d'un réseau de suivi, hydrodynamique et physico-chimique, à long terme pour identifier son impact sur la ressource en eau.

3.Le traçage des eaux karstiques souterraines par utilisation des traceurs géochimiques naturels et artificiels

3.1 Les traceurs géochimiques naturels

En domaine karstique, les caractéristiques hydrogéochimiques des eaux souterraines résultent de l'interaction eau-roche déterminées par : (i) la lithologie de l'aquifère, (ii) le temps de résidence dans le système karstique, (iii) les conditions d'écoulement des eaux dans le massif, (iv) l'influence anthopique, (v) les conditions hydrologiques. De nombreux travaux traite des relations entre les processus hydrogéochimiques et les caractéristiques du karst (Bakalowicz, 1994 ; Vaute et *al.*, 1997 ; Petelet et *al.*, 1998 ; Perrin et *al.*, 2003a ; Perrin et *al.*, 2003b ; Barbieri et *al.*, 2005 ; Peyraube et *al.*, 2012 Bicalho et *al.*, 2012 ; Houillon et *al.*, 2017 ; Brkic et *al.*, 2018 ; Filippini et *al.*, 2018). Des travaux complémentaires montrent l'intérêt de l'utilisation du traçage géochimique naturel pour la détermination de : (i) la réactivité de l'aquifère, (ii) la vulnérabilité des aquifères karstiques, (iii) les interactions entre les eaux de surface et les eaux souterraines, (iv) la datation des eaux (Lastennet, 1994 ; Lastennet et Mudry, 1997 ; Emblanch et *al.*, 1998 ; Katz et *al.*, 1998 ; Nativ et *al.*, 1999 ; Batiot et *al.*, 2003b ; Pulido-Leboeuf et *al.*, 2003 ; Négrel & Petelet-Giraud, 2005 ; Hébrard et *al.*, 2006 ; Adinolfi Falcone et *al.*, 2008 ; Bouchaou et *al.*, 2008 ; Silva-Filho et *al.*, 2009; Mudarra et Andreo, 2011 ; Nicolini et *al.*, 2016 ; Ayadi et *al.*, 2018). Les résultats fournis par les traceurs géochimiques naturels peuvent permettre d'alimenter la réflexion d'hydrogéologues pour le développement de modèles hydrodynamiques conceptuels.

3.1.1 Les traceurs des interactions eau-roche et du temps de résidence

Les compositions en éléments chimiques présents dans les eaux souterraines reflètent pour partie la composition minéralogique de la roche mère traversée par l'eau. La matrice détermine et influence le faciès chimique de l'eau. En domaine karstique, les eaux possèdent généralement un faciès bicarbonaté calcique, si la roche mère est composée de calcaire. Le type d'eau sera plus magnésien si la roche mère possède une fraction plus importante de dolomite. Certains types d'eaux peuvent être marqués par une signature plus sulfatée ou chlorurée lors de la présence de minéraux évaporitiques (Vengosh et *al.*, 2000 ; Sánchez-Martos et *al.*, 2002 ; Baioni et Tramontana, 2015 ; Gil-Márquez et *al.*, 2017 ; Linares et *al.*, 2017). Cette signature n'est pas retrouvée dans notre région d'étude et ne nécessite pas un développement exhaustif. Pour plus d'information, le lecteur pourra se référer aux travaux de Faillat & Puradimaja (1995), Kloppmann et *al.*, (2001), Ghabayen et *al.*, (2006), Hébrard et *al.*, (2006) ou encore Bicalho et *al.*, (2012).

Le magnésium (Mg^{2+}) est un bon indicateur du temps de résidence en milieu karstique, lors d'absence de dolomie, due à la faible cinétique de dissolution de la dolomite (Ks = $5.75\ 10^{-9}$ d'après Bakalowicz, 1979). De nombreuses études ont montré l'utilité d'une utilisation du Mg^{2+} pour tracer le temps de résidence des eaux souterraines (Plummer, 1977 ; Plummer et *al.*, 1978 ; Edmunds & Smedley, 2000 ; Fairchild et *al.*, 2000 ; López-Chicano et *al.*, 2001 ; Batiot et *al.*, 2003a ; McMahon et *al.*, 2004 ; Moral et *al.*, 2008 ; Mudarra et al., 2012). Lors de la présence de dolomie, le Mg^{2+} ne devient plus un traceur du temps de

résidence mais un traceur d'origine des masses d'eau (Mudarra et Andreo, 2011 ; Lorette et *al.*, 2016, 2018a).

Depuis les dernières décennies, la concentration en **oxygène dissous** (O_2) dans l'eau n'a reçu que peu d'attention. Du fait de la bonne connexion avec l'atmosphère, l'aquifère karstique possède généralement des eaux à caractère oxique (Perrin et *al.*, 2007 ; Mahler et *al.*, 2011 ; Musgrove et *al.*, 2011). Depuis peu, l'amélioration de la mesure de la concentration en oxygène dissous dans les eaux souterraines permet l'utilisation de ce paramètre pour la caractérisation du fonctionnement des hydrosystèmes karstiques. Peu de travaux à des fins hydrogéologiques existent dans la littérature (Estefanía Lazo-Herenda et *al.*, 2011 ; Mahler et Bourgeais, 2013). Ce paramètre peut cependant être pertinent et ouvrir des perspectives sur l'utilisation d'un nouveau traceur naturel. Une discussion basée sur ce paramètre est proposée dans le Chapitre 3.

3.1.2 Les traceurs de l'infiltration et de l'influence anthropique

Les traceurs de l'infiltration peuvent être utilisés pour déterminer le fonctionnement hydrogéologique d'un système karstique ou pour évaluer sa vulnérabilité.

Les principaux traceurs de l'infiltration couramment utilisés dans la littérature sont : (i) le carbone organique, (ii) le nitrate, (iii) les éléments bactériologiques ; (iii) les chlorures ; (iv) la turbidité. De nouveaux polluants émergeants tels que les produits pharmaceutiques, certains pesticides, et les micro-polluants organiques sont utilisés pour identifier les relations entre les eaux de surface et les eaux souterraines (Einsiedl et *al.*, 2006 ; Schwarz et *al.*, 2011 ; Schiperski et *al.*, 2015b), mais ne sont pas utilisés dans ces travaux.

Le carbone organique dissous (COD) est la partie dissoute dans l'eau du carbone organique totale. Il utilisé en combinaison des traceurs géochimiques et isotopiques pour déterminer le fonctionnement des aquifères karstiques (Emblanch et al., 1998). Les travaux de Batiot (2002) montrent que l'intérêt d'utilisation du COD comme traceur naturel de l'infiltration en complément des autres traceurs couramment utilisés (Ca^{2+}, Mg^{2+}, $\delta^{13}C_{\text{-CID}}$). Ce traceur naturel permet donc de suivre les modalités d'infiltration des eaux en milieu karstique, de différencier les écoulements lents des écoulements rapides, de déterminer l'origine de la matière organique, mais aussi de préciser le temps de séjour de l'eau dans l'aquifère (Batiot et *al.*, 2003 ; Celle-Jeanton et *al.*, 2003 ; Mudarra et Andreo et *al.*, 2011 ; Charlier et *al.*, 2012).

L'ion nitrate (NO_3^-), est la forme la plus mobile et persistante de l'azote (N) elle peut se retrouver dans l'environnement de façon naturelle. Cependant, depuis plusieurs décennies, des augmentations de concentrations en nitrates sont mesurées dans les eaux de surface et souterraines à travers le monde (Nolan and Stone, 2000 ; Siliang et *al.*, 2010 ; El Gaouzi et *al.*, 2013 ; Schwientek et *al.*, 2013 ; Alexia et *al.*, 2015 ; Bu et *al.*, 2017 ; Briand et *al.*, 2017). Dans certains environnements ruraux ou urbains, l'apport d'azote organique ou inorganique induit une accumulation de NO_3^- dans les sols et la zone non saturée de l'aquifère karstique. Le lessivage de ces horizons lors des évènements pluvieux peut engendrer des augmentations de concentrations en nitrates à l'exutoire des systèmes karstiques (Rowden et *al.*, 2001 ; Stueber and Criss, 2005 ; Pronk et *al.*, 2008 ; Pu *al.*, 2011). Ce traceur a été utilisé dans des études précédentes pour identifier et quantifier des arrivées d'eaux superficielles (Malher and Garner, 2009), et préciser certains processus karstiques (Malher et *al.*, 2008). Un modèle conceptuel des réponses en nitrates (mobilisation de nitrates, dilution des nitrates, ou les deux) dans les systèmes karstiques a été proposé par Huebsch et *al.*, (2014) à partir des

études de Malher et *al.*, 2008, Pronk et *al.*, (2009), Rowden et *al.*, (2001), et Stueber and Criss (2005). Les différentes origines possibles des nitrates dans les eaux souterraines demandent le développement de méthodologies spécifiques. Les travaux synthétisés dans ce manuscrit proposent une approche innovante pour caractériser les sources des nitrates dans les eaux. Plus de détails sont donnés dans le Chapitre 5.

Les traceurs bactériologiques mesurés à l'exutoire des systèmes karstiques témoignent du transport rapide des eaux d'infiltration à travers le massif karstique (Personné et *al.*, 1998). Le transport d'éléments pathogènes représente une menace pour la santé publique, principalement à cause des bactéries fécales, telles que **Escherichia Coli** (E.Coli), les **coliformes totaux** et les **entérocoques,** pouvant être associées à des espèces pathogènes (Joseph et *al.*, 1988 ; Personné et *al.*, 1998 ; Mahler & Lynch, 1999 ; Mahler et *al.*, 2000 ; Personné et *al.*, 2004 ; Stuart et *al.*, 2010 ; Galfi et *al.*, 2016).

L'indicateur le plus pertinent d'une contamination fécale et de la possible présence de pathogène est E.Coli. Il est le seule coliforme thermo-tolérant qui peut être associé aux matières fécales (Dussart-Baptista et *al.*, 2003). Sa durée de vie est relativement courte dans les conditions non favorables des environnements aquatiques (Livrozet, 1984). Dans des eaux non stériles, le temps de survie peut parfois ne pas excéder une semaine pour E.Coli et quelques semaines pour les entérocoques.

De nombreux travaux ont démontré les relations entre les organismes bactériens et les éléments particulaires qui facilitent leur transport. Cependant, il a été mis en évidence qu'une augmentation de turbidité à l'exutoire des systèmes karstiques n'est pas toujours accompagné de contamination bactérienne (Dussart-Baptista et *al.*, 2003). Un focus sur ces relations est proposé dans le Chapitre 6.

3.1.3 Les isotopes stables de la molécule d'eau et du carbone

LES ISOTOPES STABLES DE LA MOLECULE D'EAU

Les isotopes stables de la molécules d'eau ($\delta^{18}O_{-H2O}$, $\delta^{2}H_{-H2O}$) sont des outils de comparaison du ratio isotopique de l'oxygène et de l'hydrogène de l'eau par rapport au ratio de référence : le SMOW (Standard Mean Ocean Water). $\delta^{18}O_{-H2O}$ et $\delta^{2}H_{-H2O}$ ont largement été utilisés dans la littérature pour déterminer les origines des eaux, des processus de mélange, ou encore des processus d'évaporation. Ils ont également été utilisés pour évaluer la contribution des eaux de pluie aux crues des exutoires des systèmes karstiques. Citer de façon exhaustive l'ensemble des travaux traitant des isotopes stables de la molécule d'eau serait peu pertinent. Il est possible de citer les principaux travaux en hydrogéologie karstique (Lastennet, 1994 ; Kattan, 1997; Cey et *al.*, 1998 ; Katz et *al.*, 1998 ; Ladouche et *al.*, 2001 ; Perrin et *al.*, 2003a ; Perrin et *al.*, 2003b ; Long & Putnam, 2004 ; Aquilina et *al.*, 2005 ; Bouchaou et *al.*, 2009; Ladouche et *al.*, 2009 ; Ayadi et *al.*, 2018 ; Brkić et *al.*, 2018).

L'ISOTOPE STABLE DU CARBONE

L'isotope stable du carbone, appelé Carbone 13 ou $\delta^{13}C_{-CID}$, est utilisé en hydrogéologie karstique en tant que moyen de détermination de l'origine des eaux. Doctor et *al.*, (2000) se basent sur la signature isotopique des eaux pour distinguer les apports des eaux infiltrées par infiltration diffuse de celles infiltrées à la faveur de pertes. Parmi les

écoulements provenant du massif karstique, le carbone 13 peut permettre de quantifier les apports de la zone non saturée et de la zone saturée (Emblanch et *al.*, 1998 ; Emblanch et *al.*, 2003). D'autres auteurs utilisent le carbone 13 pour ajuster la datation des eaux (Gonfiantini et Zuppi, 2003) ou pour l'étude des paléoclimats (Genty et *al.*, 2006).

3.2 Les traceurs artificiels

Un **traceur artificiel** est défini comme « toute substance (sel, soluble, colorant, corps en suspension, eau marqué par un isotope radioactif, etc.) absente dans les conditions naturelles dans l'aquifère étudié, et détectable, incorporée à l'eau, pour identifier et permettre d'observer son mouvement » (Castany et Margat, 1977).

Un essai de traçage, en milieu souterrain, consiste donc à injecter un traceur en un point de l'aquifère (perte, puits ou piézomètre) et à mesurer l'évolution de la concentration de ce traceur dans l'eau en un point de suivi (puits, piézomètre, source) au cours du temps. La réalisation d'essais de traçage de l'eau souterraine permet, par exemple, d'acquérir les informations nécessaires pour :

- déterminer les **liaisons hydrauliques** entre différents points ;
- déterminer la **vitesse d'écoulement** de l'eau souterraine ou le temps de transfert d'un soluté entre deux points de l'aquifère ;
- évaluer les **processus de mobilité de l'eau** et des solutés au sein du milieu souterrain.

Dans les milieux karstiques, les outils classiques de l'hydrogéologie, (essai de pompage, piézométrie, etc.) permettent difficilement d'obtenir des informations sur les propriétés hydrauliques et géométriques des aquifères étudiés. Les formes géomorphologiques, telles que les dolines, les pertes ou les sources, sont généralement en lien avec des circulations souterraines actives. Les premières études sur les traçages artificiels en milieu karstique (Brown et *al.*, 1969 ; Atkinson et *al.*, 1973) ont démontré le potentiel de ces techniques pour améliorer les connaissances sur les propriétés internes des systèmes.

Dans l'étude des aquifères karstiques, on peut scinder les traçages en deux catégories en fonction des objectifs qu'ils visent :

- les traçages de reconnaissance (ou exploratoires), dont la finalité est de déterminer l'appartenance d'un point (injection) au bassin d'alimentation hydrogéologique d'un exutoire ;
- les traçages de simulation, dont la finalité est de connaître de façon approfondie les paramètres caractéristiques du transit du traceur entre un point d'injection et un point de résurgence connu.

3.2.1 Les différentes sortes de traceurs artificiels

Il existe plusieurs catégories de traceurs artificiels :

- **les traceurs solubles à l'eau** (fluorescents, salins, tensoiactifs, colorants alimentaires, composés aromatiques) ;
- **les traceurs radioactifs** ;
- **les traceurs particulaires** (spores, microsphères fluorescentes, bactéries, etc.).

En domaine karstique, les traceurs les plus fréquemment utilisés sont les traceurs fluorescents. Il existe un grand nombre de substances fluorescentes, mais seules quelques-unes satisfont aux exigences des traceurs en hydrogéologie. Le tableau suivant (Tableau 1) donne un aperçu des traceurs fluorescents généralement utilisés, avec leurs caractéristiques principales (Käss, 1998).

Tableau 1 : Aperçu de quelques caractéristiques des traceurs fluorescents (Käss, 1998).

Dénomination (Synonymes entre parenthèses)	**Index couleur I.C.**	**Spectre excitation / émission [nm]** [4]	**Evaluation toxicologique** [5]	**Limite de détection** ++++ = très bonne + = moyen	**Retardement** (dû à l'adsorption réversible) - = faible --- = élevé	**Restitution du traceur** ++++ = élevée + = faible	**Rapport qualité/prix du traceur** [6] ++++ = très bon + = mauvais	**Propriétés particulières**	**Remarques** (voir aussi commentaires du chap. 2.3.2)
Uranine (Fluorescéine disodique) (Fluorescéine hydraulique)	45350	490 / 515	inoffensif	++++	-	++++	++++	peut être endommagée par des oxydants (p. ex. chlore, ozone)	globalement, le meilleur traceur
Eosine (Eosin Y) (Acid Red 316)	45380	512 / 537	inoffensif	+++	--	+++	+++	grande sensibilité à la lumière	ne pas utiliser en même temps que du bromure
Naphthionate (Naphthionate de sodium) (Acide naphtionique)		323 / 418	inoffensif	+	-	++	++	bruit de fond élevé à la mesure	
Amidorhodamine G (Sulforhodamine G extra)	45220	530 / 555	inoffensif	+++	---	+	++		
Sulforhodamine B (Acide duasyne-rhodamine B 01, Amidorhodamine B)	45100	561 / 586	toxique pour l'environnement	++	---	++	++		limiter son utilisation dans les eaux de surface
Rhodamine B (Basazolrot 71 L)	45170	551 / 576	à déconseiller	+++	---	+	+	très forte adsorption	ne plus utiliser
Rhodamine WT (Acid red 388)		558 / 583	à déconseiller	++	---	+	+		à n'utiliser que dans les cas d'exception
Pyranine	59040	460 / 512	inoffensif	++	-	+	++	faible taux de restitution	
Duasyne Duasyne jaune fluorescent T		449 / 474		++	--	++	++		n'est plus fabriqué
Tinopal (**T**-CBS-X, **T**-ABP liquide)		346 / 435	inoffensif	+	---	+	+	bruit de fond élevé à la mesure	

4. Conclusion du Chapitre 1

La compréhension du comportement des aquifères karstiques (hydrodynamique et hydrochimie), ainsi que des processus de recharge, décharge et circulation, sont un préalable fondamental pour le développement d'une gestion efficace de la ressource en eau. Les études généralement rencontrées dans la littérature visent à caractériser l'origine des flux souterrains, à évaluer quantitativement et qualitativement les ressources, et enfin d'estimer la vulnérabilité de ces aquifères aux contaminations anthropiques.

Les travaux décrits dans ce manuscrit s'intègrent dans une réflexion globale de fonctionnement des aquifères karstiques visant à améliorer les modèles conceptuels de fonctionnement. Pour cela, une approche systémique est mise en place au niveau de l'hydrosystème karstique du Toulon.

Le chapitre suivant fournit les éléments du contexte d'étude et de la stratégie d'échantillonnage établie pour répondre aux questions fondamentales et locales posées.

CHAPITRE 2
LES SOURCES DU TOULON : CONTEXTE GENERAL, DESCRIPTIFS EXPERIMENTAUX DEPLOYES ET STRATEGIE D'ECHANTILLONNAGE

L’histoire géodynamique stratigraphique, et structurale de la marge Nord du Bassin aquitain a fortement influencé la structuration des réservoirs tels qu’ils sont connus actuellement. Depuis plusieurs décennies, de nombreux travaux sur l’étude de la mise en place des aquifères carbonatés de la marge Nord du Bassin aquitain peuvent être recensés permettant d’en réaliser la synthèse bibliographique suivante.

Ce chapitre est dédié à la présentation du contexte de l’étude. Pour cela, une synthèse de l’histoire géologique régionale est réalisée afin de comprendre les grandes phases qui ont conduit à la structuration des réservoirs carbonatés connus actuellement. Ensuite, un cadre hydrogéologique régional est proposé, permettant d’introduire les particularités et les problématiques liées à la zone d’étude, avant d’intégrer l’hydrosystème des Sources du Toulon dans ce cadre global. Enfin, la dernière partie est consacrée à la description de la stratégie d’échantillonnage déployée dans ce travail de Thèse.

1.Cadre géologique et hydrogéologique du département de la Dordogne

Le Bassin aquitain est un bassin sédimentaire situé dans le Sud-Ouest de la France (Figure 6). Il est largement ouvert sur le Golfe de Gascogne et est ceinturé par des reliefs jeunes et anciens. Dans un ordre chronologique, ces reliefs sont le Massif armoricain (Massif central au Nord et Montagne Noire à l'Est) et la chaîne des Pyrénées au Sud.

La disposition des formations sédimentaires résulte du comblement progressif du bassin sur le socle continental depuis plus de 250 millions d'années (Ma). Son évolution géodynamique traduit une histoire polyphasée ayant évoluée globalement d'un stade extensif (du Trias au Crétacé inférieur) à un stade compressif (du Crétacé supérieur au Tertiaire) au travers de 5 stades majeurs. Les affleurements des terrains jurassiques et crétacés, en bordure du Massif Central et du Massif Armoricain, témoignent des deux vastes transgressions marines qui se sont produites au Mésozoïque. Les formations géologiques à dominante calcaire qui en résultent sont le siège de systèmes karstiques à la fois à l'affleurement et sous couverture. L'évolution des mouvements extensifs et compressifs ont induits la formation de flexures et fractures à plus ou moins grande échelle.

Le département de la Dordogne s'intègre au sein de le cadre géologique global (Figure 6) et son histoire géologique est fortement liée à celle du Bassin aquitain. Les cadres géologique et hydrogéologique de la Dordogne présentés ci-après est réalisée à partir des observations de terrain, et des synthèses des travaux de Le Pochat et *al.*, (1980) ; Platel (1989, 1996) ; Marchet, 1991 ; Chigot et Mazurier (1992) ; Blum et *al.* (2002) ; Mauroux et *al.* (2003) ; Winckel et *al.* (2005) ; Platel et *al.* (2010) ; Dandurand (2011) ; Cabaret et *al.* (2012, 2014) ; Corbier (2013) ; Goubier (2013) ; Lorette (2013) ; Stöckle (2014) ; Husson et *al.* (2015, 2017).

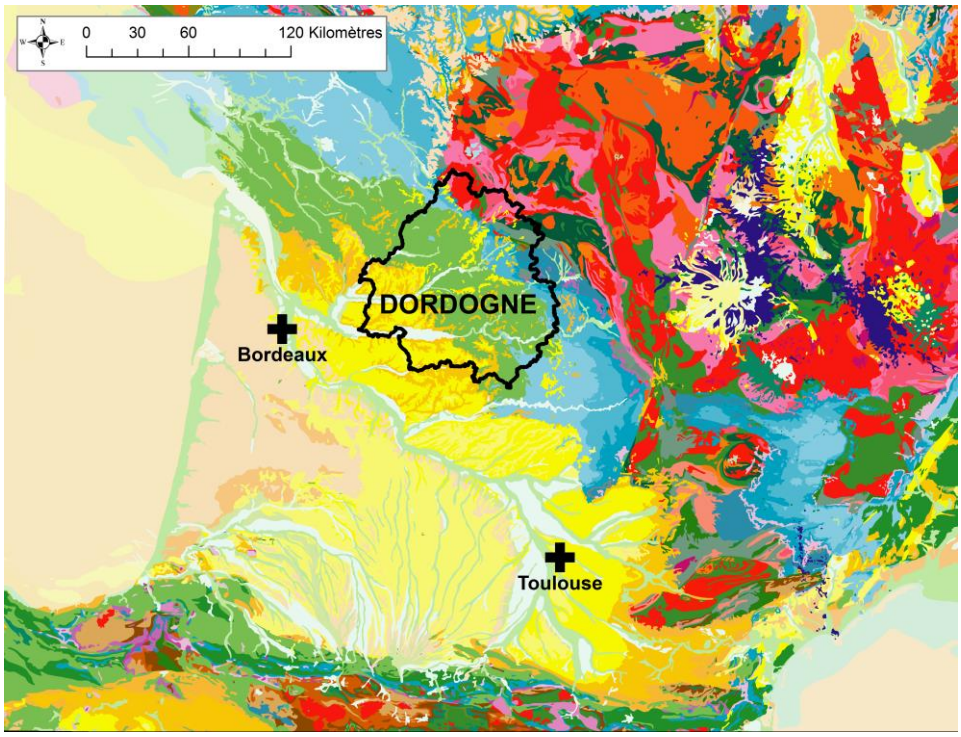


Figure 6 : Localisation de la Dordogne dans le Bassin aquitain.

1.1 Histoire géologique régional

1.1.1 Evolution géodynamique globale de la marge Nord du Bassin aquitain

HERITAGE HERCYNIEN

Le socle cristallin comprend à la fois une série de roches métamorphiques structurées pendant l'orogenèse hercynienne et des roches plutoniques (Bambier et *al.*, 1983 ; Le Pochat et *al.*, 1986). D'âge Dévonien moyen (385-375 Ma), il a subi deux phases plicatives, puis un magmatisme postmétamorphe (Bambier et *al.*, 1983). Il est porté à l'affleurement par érosion des parties hautes de la chaîne hercynienne, pénéplanée dès la fin du Paléozoïque. Le socle est par la suite l'objet d'une tectonique cassante. Structuré en horsts et en grabens, il est affecté par des effondrements qui se sont produits sur la bordure occidentale par un jeu de failles normales au cours de distensions triasiques.

LE JURASSIQUE

L'histoire sédimentaire du Bassin aquitain commence au Trias. **Le Trias** (252-201 Ma) est une phase essentiellement continentale où l'érosion des montagnes anciennes favorisent le remplissage des bassins permiens. L'érosion progressive de ces montagnes facilite les invasions marines.

La série du Mésozoïque, discordante et transgressive, repose donc sur ce socle induré qui se comporte par la suite comme une série de blocs rigides rejouant le long d'anciennes failles. La période post-orogénique se caractérise par une relative stabilité tectonique, favorisant ainsi une sédimentation marine essentiellement carbonatée dans un contexte qui s'est approfondi. La pénéplanation préalable du socle cristallin a conduit aux premiers apports détritiques de faible épaisseur qui se rencontrent à l'interface entre les terrains cristallins et les terrains carbonatés (Bambier et *al.*, 1983).

Sur la Marge Nord du Bassin aquitain, les formations transgressives du **Lias** (201-174 Ma) sont datées du Toarcien et de l'Aalenien, et sont représentées par des argiles et des marnes formant la base imperméable de la série jurassique. Elles traduisent la première transgression marine qui se stabilise jusqu'au Jurassique supérieur.

Au cours du **Dogger** (174-163 Ma) puis du **Malm** (163-145 Ma), l'enfoncement du substratum est homogène sur l'ensemble du Bassin aquitain. L'organisation Est-Ouest des domaines sédimentaires marins apparus au Dogger persiste au Malm. La moitié orientale de la Marge Nord du Bassin aquitaine est un domaine de mer peu profonde, siège d'une sédimenation à dominante carbonatée (Delfaud, 1970 ; Pélissié, 1982 ; Cubaynes et al. 1989 ; Rey et al., 1988, 1995 ; Pélissié & Astruc, 1996).

Un cycle régressif de la mer s'amorce au Jurassique supérieur (Hantzpergue et Maire, 1981). Il s'accentue à la fin du Jurassique supérieur, au **Tithonien** (152-145 Ma) et se traduit au Crétacé inférieur par l'individualisation de petits bassins confinés.

LE CRETACE INFERIEUR

Durant tout le **Crétacé inférieur** (145-100 Ma, soit environ 45 Ma), la plate-forme Nord-aquitaine est en partie émergée (Platel, 1989). Elle connaît alors une grande période continentale pendant laquelle le substratum jurassique est structuré par des phases de plissement et localement par une tectonique cassante (Platel, 1987). Le moteur de cette tectonique en distension est l'ouverture du Golfe de Gascogne (Figure 7) (Debyser et *al.*, 1971 ; Olivet, 1996).

La période de distension engendre une phase de rifting généralisée sur le Bassin aquitain (Dérégnaucourt et Boillot, 1982). Le socle Paléozoïque est affecté d'une tectonique cassante et est structuré en horsts et en grabens. Il est affecté par des effondrements qui se produisent sur la bordure occidentale par un jeu de failles normales de direction NW-SE. Cette période affecte aussi les formations carbonatées jurassiques. Le substratum jurassique est structuré par des phases de plissement et localement par une tectonique cassante. Des compartiments s'affaissent en direction du Sud-Ouest et les couches sédimentaires basculent au fur et à mesure que le socle s'enfonce par subsidence.

En Dordogne, l'érosion des plateaux carbonatés sous un climat chaud fait disparaître plus de 200 mètres de terrains jurassiques. Dans certains domaines cette érosion a pour conséquence de laisser une paléotopographie de type ruiniforme ou « mogetès » d'après Simon-Coinçon et Astruc (1991).

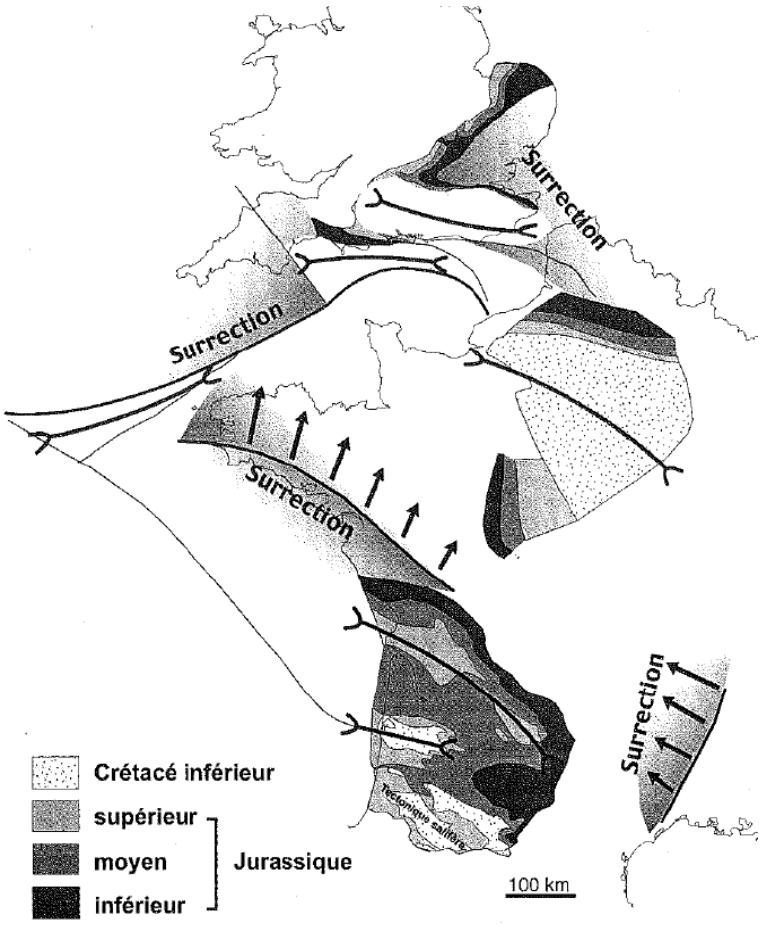


Figure 7 : Contexte géodynamique de la France au Jurassique supérieur et les déformations engendrées par l'ouverture du Golfe de Gascogne (Guillocheau et *al.*, 2003).

LE CRETACE SUPERIEUR

Au Crétacé supérieur, deux grands cycles sédimentaires transgression/régression recouvrent progressivement la plate-forme altérée et érodée (Platel, 1989). Ces grands cycles sont toujours à lier à l'ouverture du Golfe de Gascogne (Figure 7).

La première séquence transgressive s'étend du **Cénomanien** (100-94 Ma) à la fin du **Turonien** (94-90 Ma). Pendant le Cénomanien, le retour progressif de la mer d'Ouest en Est permet le dépôt de sédiments en discordance sur les reliefs ruiniformes hérités de l'érosion des terrains jurassiques pendant le Crétacé inférieur. Dans la région de Périgueux, c'est une mer peu profonde de type vasière qui dépose des sédiments marins et continentaux sur un relief hétérogène. Cela a pour conséquence d'induire des variations de faciès et d'épaisseur importantes des formations du Cénomanien, pouvant être sableux, carbonatés ou marneux. La transgression atteint son paroxysme au Turonien inférieur. Ce premier cycle se clôture par une régression rapide au Turonien moyen à supérieur liée à une chute eustatique et à un soulèvement généralisé de tout le Nord de la plate-forme. Cette discontinuité majeure lors du Turonien terminal témoigne d'une nette phase d'émersion (Platel, 1987, 1996).

Le deuxième grand cycle transgression/régression commence dès le **Coniacien** (90-86 Ma). Il est plus long que le précédent et dure environ 20 Ma. Ce cycle présente une évolution symétrique avec une avancée progressive durant 18 Ma, pendant le **Coniacien**, le **Santonien** (86-84 Ma), jusqu'au Campanien supérieur basal (84-72 Ma). Une lente phase régressive s'ensuit depuis le Campanien terminal jusqu'au **Maastrichtien supérieur** (72-66 Ma).

LE CENOZOÏQUE

A la fin du Crétacé supérieur, la sédimentation marine disparaît. Elle est alors relayée au Cénozoïque par une sédimentation détritique épicontinentale en association avec d'importantes phases de réajustements (phases rhexistatiques), liées elles-mêmes aux mouvements tectoniques de soulèvement du socle du Massif central, et plus tard des Pyrénées (Platel, 1989).

A l'Eocène (56-34 Ma), une phase de compression liée à la phase pyrénéenne de l'orogenèse alpine fait rejouer les failles déjà présentent en Dordogne. Elle affecte l'ensemble des formations géologiques carbonatées du secteur. Elle correspond à la phase paroxysmale de structuration de la marge Nord du Bassin aquitain (Eocène moyen), et se traduit par une compression N0° à N15°.

L'orogenèse pyrénéenne semble avoir favorisé le rajeunissement des reliefs de la plate-forme carbonatée nord-aquitaine. Les mouvements distensifs datés du Mio-Pliocène (23-2.5 Ma) ont permis le rejeu de certaines failles NW-SE.

1.1.2 La géologie structurale de la marge Nord du Bassin aquitain

D'après Platel (1989), les phases tectoniques les plus importantes ont lieu pendant la phase pyrénéenne de l'orogenèse alpine à l'Eocène moyen et supérieur. Mais le début des déformations commence dès la fin du Permien, avec le déplacement des plaques africaine et ibérique induites par le mouvement des dorsales téthysienne et Nord Atlantique qui ont disloqué la Pangée. C'est le déplacement relatif des masses continentales et l'amincissement

crustal au droit des rifts qui, après la phase hercynienne, créent deux grandes périodes dans l'évolution de la plateforme Nord aquitaine :

- une période de distension depuis le Permien jusqu'à la fin du Crétacé ;
- une période de compression pendant le Cénozoïque liée à la phase pyrénéenne de l'orogénèse alpine.

Trois grandes rides anticlinales d'orientation NW-SE (direction armoricaine) structurent la plateforme Nord-aquitaine. Environ 17 anticlinaux d'extension géographique plus ou moins importante structurent la plateforme en Dordogne dont la majorité est d'orientation armoricaine (Figure 8). D'un point de vue tectonique, les différentes phases distensives et compressives permettent la structuration de failles orientées généralement N115° à N165° (Figure 8).

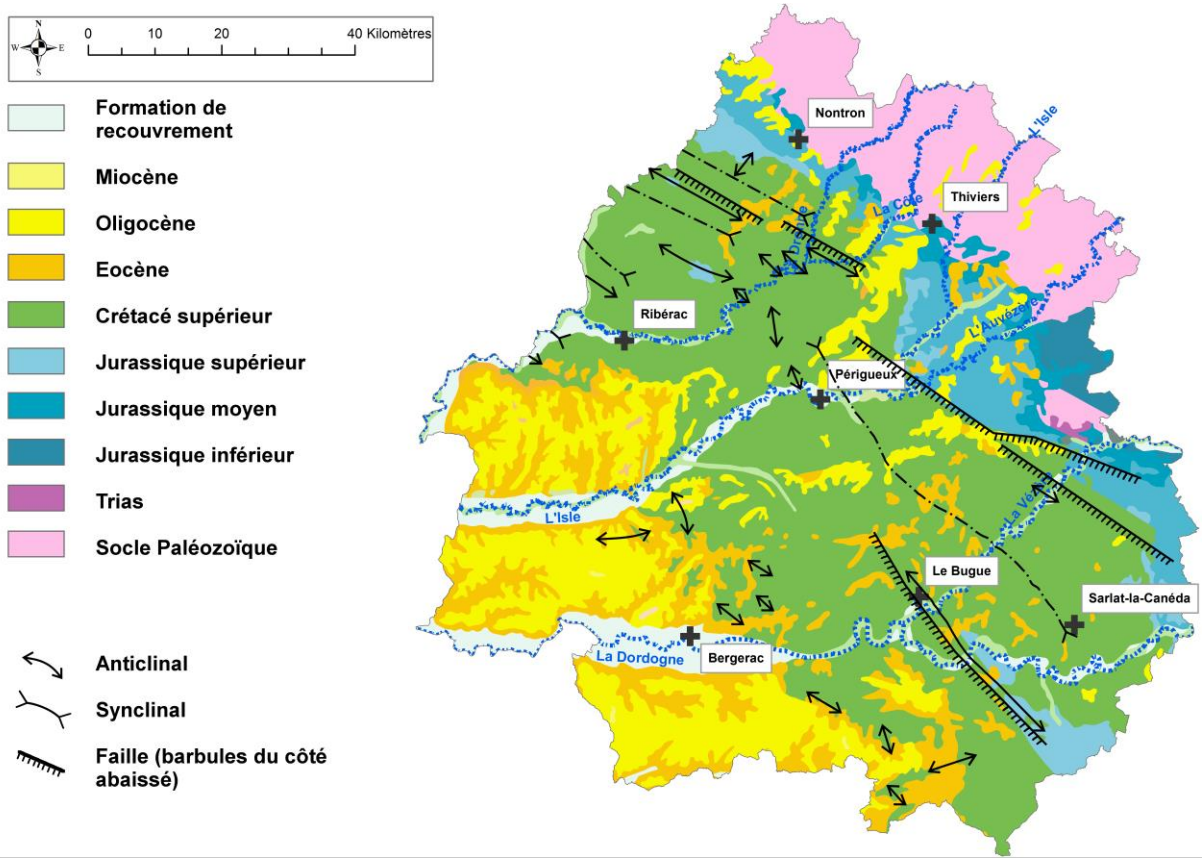


Figure 8 : Schéma structural du Périgord (modifié d'après Platel, 1989).

1.1.3 Périodes favorables à la karstification

La majorité des auteurs semblent s'accorder sur l'existence de trois périodes favorables à la karstification : (i) au Crétacé inférieur, (ii) au Paléocène-Eocène, (iii) du Miocène au Quaternaire. Cette karstification polyphasée est responsable du « Karst Nord Aquitain » complexe connu actuellement.

Une description exhaustive est proposée dans les travaux de Husson et *al.*, 2017. La Figure 9, issue de ces mêmes travaux, synthétise les périodes favorables à la karstification.

LE CRETACE INFERIEUR

A la fin du Jurassique, le retrait de la mer entraîne une émersion généralisée de la marge Nord du Bassin aquitain, cédant la place au domaine continental pendant l'ensemble du Crétacé inférieur pendant environ 40-45 Ma. Associée à cette émersion, une surrection généralisée affecte la marge Nord du Bassin aquitain. Ce couplage émersion-surrection est responsable d'une érosion, altération, et karstification intense des terrains jurassiques.

LA PALEOCENE-EOCENE

Lors du retrait de la mer à la fin du Campanien terminal, une intense période d'altération affecte l'ensemble des dépôts carbonatés du Mésozoïque. (Platel, 1996). La surrection des Pyrénées pendant l'Eocène provoque la chute du niveau de base, permettant la mise en place d'un réseau superficiel et souterrain sous la surface des plateaux.

DU MIOCENE A AUJOURD'HUI

La compression alpine au Miocène terminal provoque un bombement lithosphérique, se traduisant par la surrection du Massif central. Cette surrection créé un gradient hydraulique responsable de l'incision des cours d'eau. Le substratum ainsi décapé devient un facteur prédominant pour la mise en place des écoulements superficiels et souterrains.

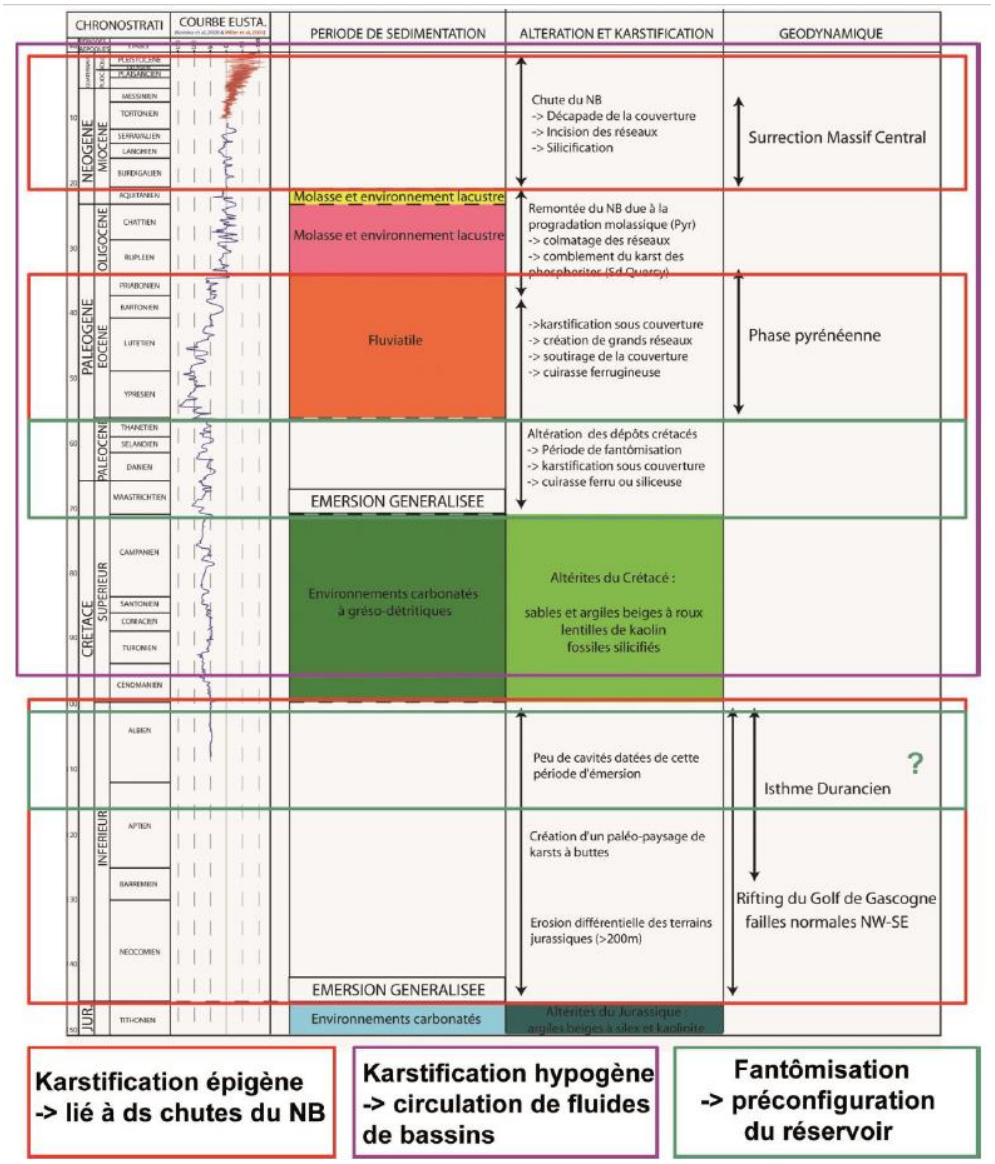


Figure 9 : Périodes favorables à la karstification associées à la charte chrono-karstique de la marge Nord du Bassin aquitain (Husson et *al.*, 2017).

1.2 Nature et géométrie des formations

Cette description est abordée en évoquant les terrains déposés, des plus anciens (Lias) jusqu'aux plus récents (Quarternaire). Elle est réalisée à partir des observations de terrains, d'analyse d'échantillons macroscopiques. En complément, une analyse de coupes lithostratigraphiques des forages du département de la Dordogne a été réalisée, et 33 log géologiques ont été réinterprétés.

A partir de cette description, une carte géologique (Figure 10), une coupe géologique régionale (Figure 11) et un log présentant les formations (Figure 12) sont donnés. Une carte régionale présentant la localisation des ouvrages cités ici est données en.Annexe 1 : Carte de localisation des ouvrages utilisés pour la description lithologique.

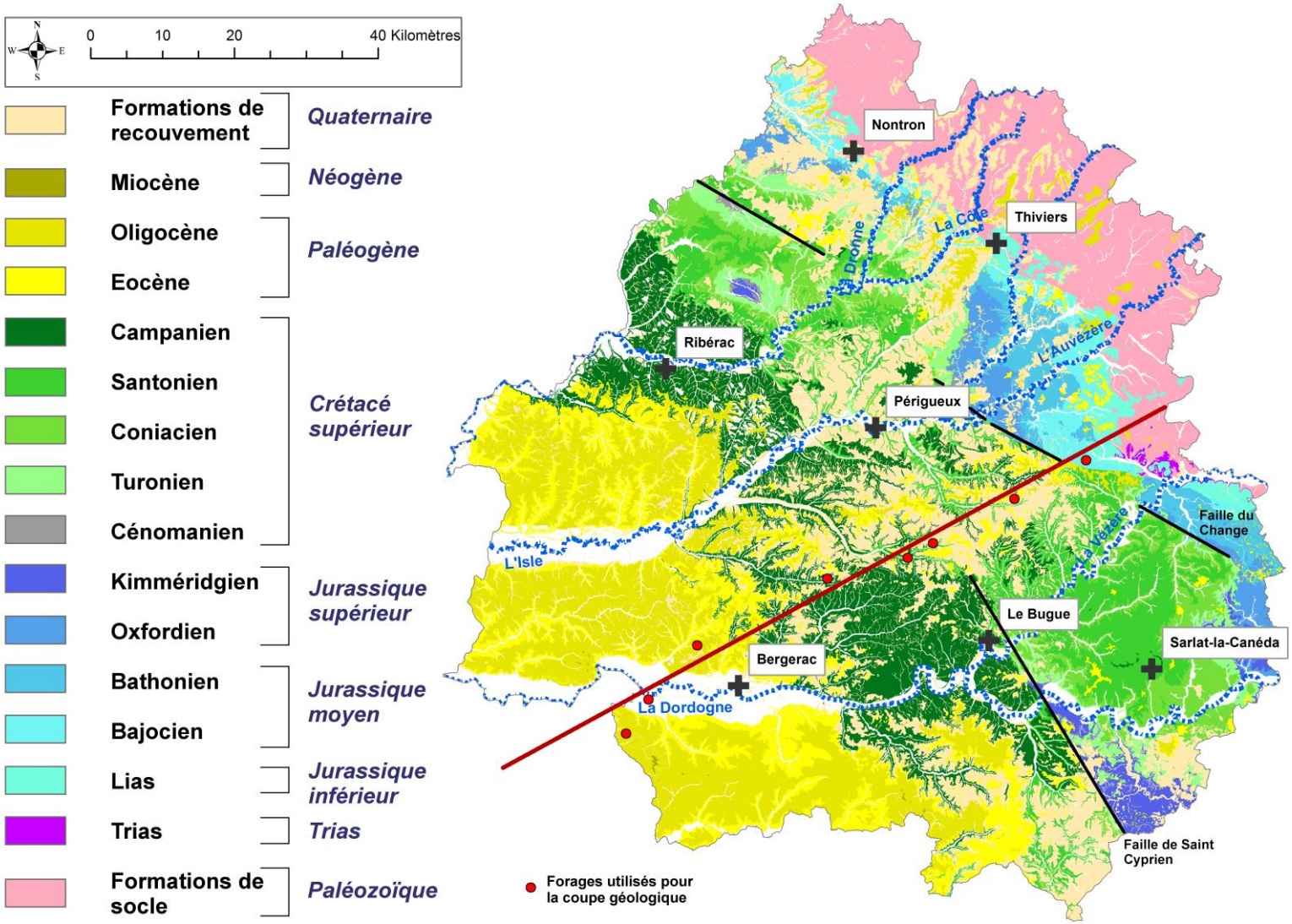


Figure 10 : Carte géologique de la Dordogne (modifiée d'après la carte géologique numérisée, réalisée dans le cadre du projet Karst 24 ; Cabaret et *al.*, 2012).

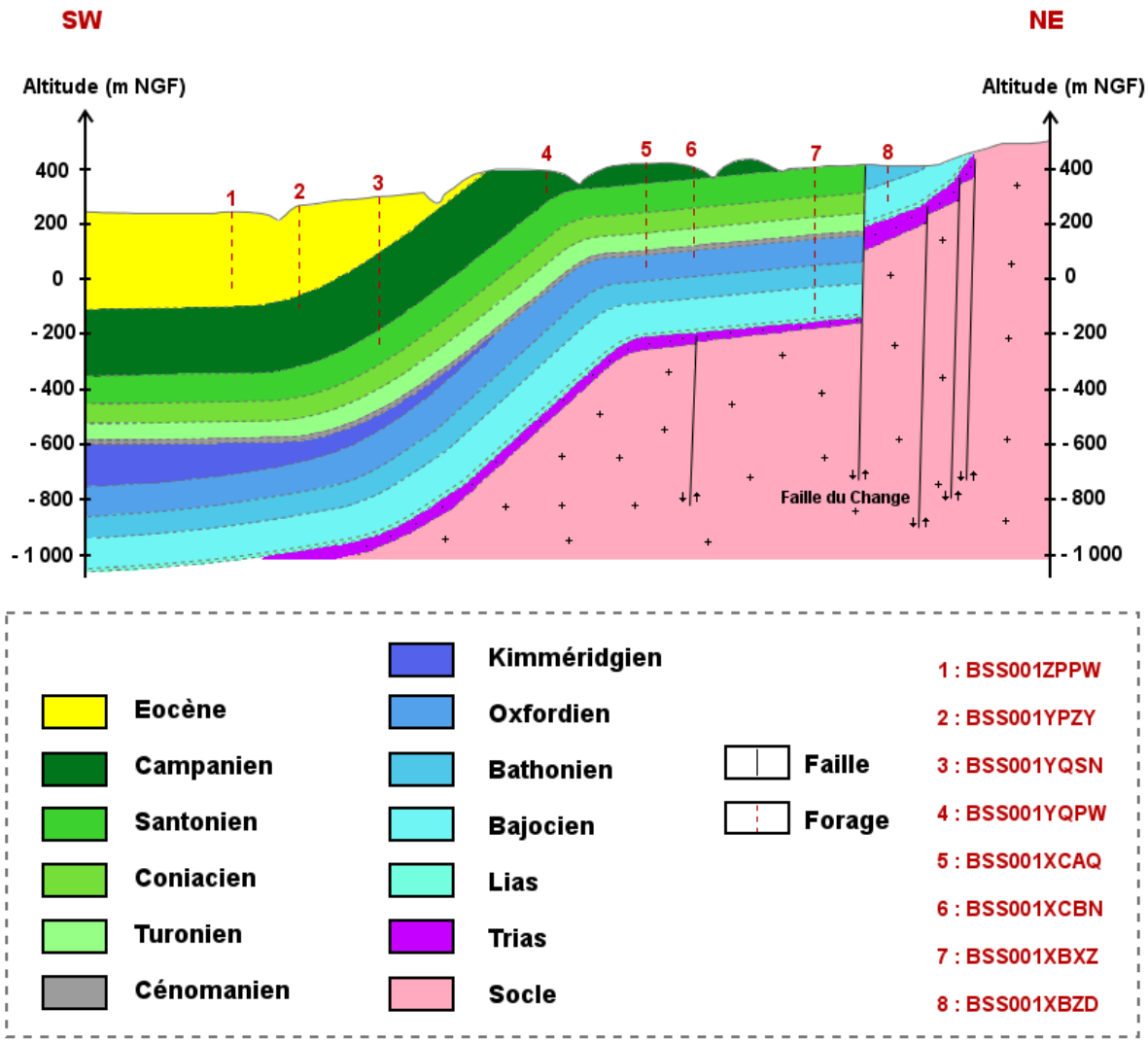


Figure 11 : Coupe géologique NE-SW interprétée du département de la Dordogn

1.2.1 Le Socle Paléozoïque

Le socle Paléozoïque se retrouve à l'affleurement sur toute la bordure septentrionale du département de la Dordogne (Figure 10). Il est caractérisé par des formations plutoniques ou métamorphiques.

1.2.2 Le Trias

Essentiellement continental, les formations du **Trias** affleurent dans le Nord-Est du département, et se retrouvent dans très peu de forage à cause de sa profondeur. Le forage de la Tour Blanche (BSS001WCZR) constitue l'un des seuls forages ayant traversé cette formation. Il se compose principalement de grès et d'argiles à niveaux d'évaporites.

1.2.3 Le Jurassique inférieur (Lias)

Il est composé de formations d'origine chimique déposées dans des conditions de fort ensoleillement et évaporation qui ont généré des évaporites à dominante sulfatée recouvertes par des calcaires dolomitiques, des grès, des argiles puis des calcaires marneux, des marnes noires et de nouveau des grès. Le Lias n'est seulement présent qu'au niveau de certains forages profonds tels que les forages de Château l'Evêque (BSS001WDJB), ou de Sorges (BSS001WDMD). Il est caractérisé par les formations du **Toarcien** décrites comme des marnes bleues à noires d'une épaisseur variant de 3 à 20 mètres.

1.2.4 Le Jurassique moyen (Dogger)

Le Dogger est défini par les formations du Bajocien, et du Bathonien. Ce dernier est présent en affleurement à l'Est de la faille du Change (Figure 10).

Malgré sa profondeur importante dans le sous-sol, le **Bajocien** est retrouvé dans certains forages profonds, comme ceux de Château-l'Evêque, Sorges, ou encore celui de Chancelade (BSS001WDJA). A la base de la série, il est caractérisé par un faciès dolomitique d'une puissance de 75 mètres. Ce faciès évolue vers un calcaire oolithique blanc beige d'une épaisseur de 40 mètres.

Surmontant le Bajocien, le **Bathonien** est découpé en Bathonien inférieur et Bathonien supérieur afin de distinguer les deux faciès. Le premier est décrit au sein des forages de Château l'Evêque et Chancelade comme un calcaire marneux gris à noir parfois bioclastique d'une épaisseur de 25 mètres. La série évolue dans le Bathonien supérieur vers un faciès oolithique à sublithographique dans lequel s'intercalent quelques joints marneux sombres. Au sein des forages de Sorges et des abattoirs de Boulazac (BSS001WDAU), la puissance du Bathonien supérieur est estimée à 65 mètres.

1.2.5 Le Jurassique supérieur (Malm)

Durant l'**Oxfordien**, il apparaît que la sédimentation marine ait été abondante dans tout le secteur d'étude, comme en témoigne sa présence au sein de 6 forages profonds. A la base de la série, l'Oxfordien est décrit comme un calcaire beige plus ou moins dolomitisé d'une épaisseur de 40 mètres, évoluant vers un faciès microolithique au sommet de la série, dans lequel s'intercale des joints marneux noirs. L'épaisseur du calcaire microolithique est de l'ordre de 20 mètres.

Le **Kimméridgien** n'est présent en Dordogne qu'au niveau de certains secteurs géographiques. Il n'est présent à l'affleurement qu'au niveau de l'anticlinal de la Tour Blanche et de la faille de Saint-Cyprien. Du fait du recul de la mer lors du Crétacé inférieur, toute la partie supérieure du Jurassique terminal (Kimméridgien et Tithonien) est généralement supposée érodée. Il est cependant parfois décrit sans certitude stratigraphique au sein de certains forages profonds (Saint Laurent-sur-Manoire BSS001XBWP, Château-l'Evêque) comme un calcaire micritique, dolomitique, ou finement oolithique. L'épaisseur du Kimméridgien n'est pas vraiment certaine, mais peut être estimée entre 30 et 60 mètres.

Le forage réalisé au sein de la source de l'Abîme du Toulon à Périgueux (BSS001WDGH) descend à une profondeur de 72.40 mètres, et d'après les datations de la microfaune le forage atteindrait le Kimméridgien inférieur à partir de 68.30 mètres. Il serait alors décrit comme un calcaire très dur gris à petits Exogyres et pyrite. A noter que le même faciès est retrouvé dans le forage du domaine de Chaulnes (BSS001XBTC).

1.2.6 Le Crétacé supérieur

Au **Cénomanien**, les conditions de dépôt sur un relief ruiniforme engendrent de grandes variations latérales de faciès et d'épaisseur de ces formations. Platel (1989) recense bien les différents faciès rencontrés pendant cette période. Ils peuvent être parfois carbonatés, sableux, ou marneux.

Souvent considéré comme une éponte dans le grand aquifère multicouche de Dordogne, le Cénomanien peut parfois présenter des propriétés transmissives intéressantes lors de la présence de dépôts plus sableux (forage de Sencenac Puy de Fourche BSS001WDCE par exemple). Il peut également accueillir une nappe lorsque son épaisseur et son faciès le permet. Il n'est même pas rare de la voir exploitée (forage de la Borie des Cailloux BSS001WDKW, forage de Pioriol BSS001WDME, forage de Saint Pierre de Côle BSS001VEDQ, forage de Sencenac Puy de Fourche). Le Cénomanien possède des variations latérales de faciès et d'épaisseur. Il est généralement caractérisé par une puissance de l'ordre d'une dizaine de mètre, mais il peut excéder 20 ou 30 mètres localement (généralement à l'Ouest du territoire).

Le **Turonien** est découpé en Turonien inférieur et Turonien moyen / supérieur.

Le Turonien inférieur est décrit dans la quasi-totalité des forages profonds comme un calcaire marneux fin grisâtre d'une puissance de 40 mètres. Le faciès et l'épaisseur sont homogènes suivant la localisation géographique.

Le Turonien moyen et supérieur est caractérisé par un calcaire bioclastique homogène et très fissuré sur l'ensemble du bassin d'alimentation des sources du Toulon. Son épaisseur est de l'ordre de 50 mètres.

Les formations turoniennes sont observables au site du Toulon, mais également le long de la vallée de la Beauronne au niveau de la commune de Chancelade, à l'Ouest de l'agglomération de Périgueux (Figure 10).

Le **Coniacien** (-88.6 Ma à -83.8 Ma) est décrit au niveau des forages de la Borie des Cailloux et de la Luminade comme une série présentant des formations calcaires légèrement marneux à la base d'une épaisseur de 20 mètres, qui évoluent vers un faciès de calcaire bioclastique jaune fissuré d'une puissance de 45 mètres.

Le **Santonien** (-83.8 Ma à -83.5 Ma) est largement visible à l'affleurement sur toute la bande centrale du Périgord. Il est bien décrit par les forages de la Luminade (BSS001XDRH), de Saint Laurent-sur-Manoire et du domaine de Chaulnes comme présentant des calcaires crayeux à exogyres d'une épaisseur de 50 mètres à la base, surmontées par des calcaires gréseux gris, à silex bruns en bancs ou en rognons, d'une puissance de 30 mètres.

Le **Campanien** (-83.5 Ma à -70.6 Ma) désigne la quasi-totalité des sommets des buttes et des plateaux de la partie Nord de la bande centrale du Périgord. Plus au Sud, le plongement des couches géologiques vers le Sud-ouest met en évidence toute la puissance de cette formation. On retiendra la monotonie des faciès caractérisés par des calcaires crayeux blancs à la base, et des faciès plus détritiques, jaunâtres au sommet de la série. La puissance de la série du Campanien peut dépasser 230 mètres comme illustré par le forage de La Vigerie (BSS001YQSN).

1.2.7 Les formations tertiaires

Elles sont d'origine continentale et associées à des transferts en nappe des contreforts du Massif central vers le récepteur océanique à l'ouest. Elles sont composées par les formations de l'Eocène, de l'Oligocène et du Miocène.

L'**Eocène**, uniquement présent dans le Sud-Ouest du département, est caractérisé par des sables et des graviers, à passage argileux. Sa puissance est estimée à environ 250 mètres, comme illustré par le forage de la Sarpap (BSS001YQGY).

L'**Oligocène** (34-23 Ma) et le **Miocène** (23-5 Ma) se présentent sous la forme de petites entités qui coiffent les sommets des reliefs les plus marqués. Ce sont respectivement des argiles sableuses, des formations molassiques, d'une puissance ne dépassant pas une dizaine de mètres.

1.2.8 Les formations de recouvrement

Elles masquent le substratum sur de très larges superficies. Ce sont des dépôts non stratifiés constitués globalement de sables siliceux, limoneux, plus ou moins argileux, de teintes beiges, jaunâtre à rougeâtre.

Ces terrains sont caractérisés par de nombreux rognons de silex ou débris de cuirasses ferrugineuses. Ces formations remaniées masquent à leur base une topographie très complexe du toit des buttes et plateaux calcaires.

L'épaisseur de ces altérites est très variable au-dessus du substratum. On peut évoquer une fourchette de 10 à 25 m.

Elles ne sont pas assorties de ruissellement significatif lorsqu'il pleut ce qui permet d'évoquer leur rôle de relais hydrogéologique per descensum au profit des aquifères carbonatés du Mésozoïque.

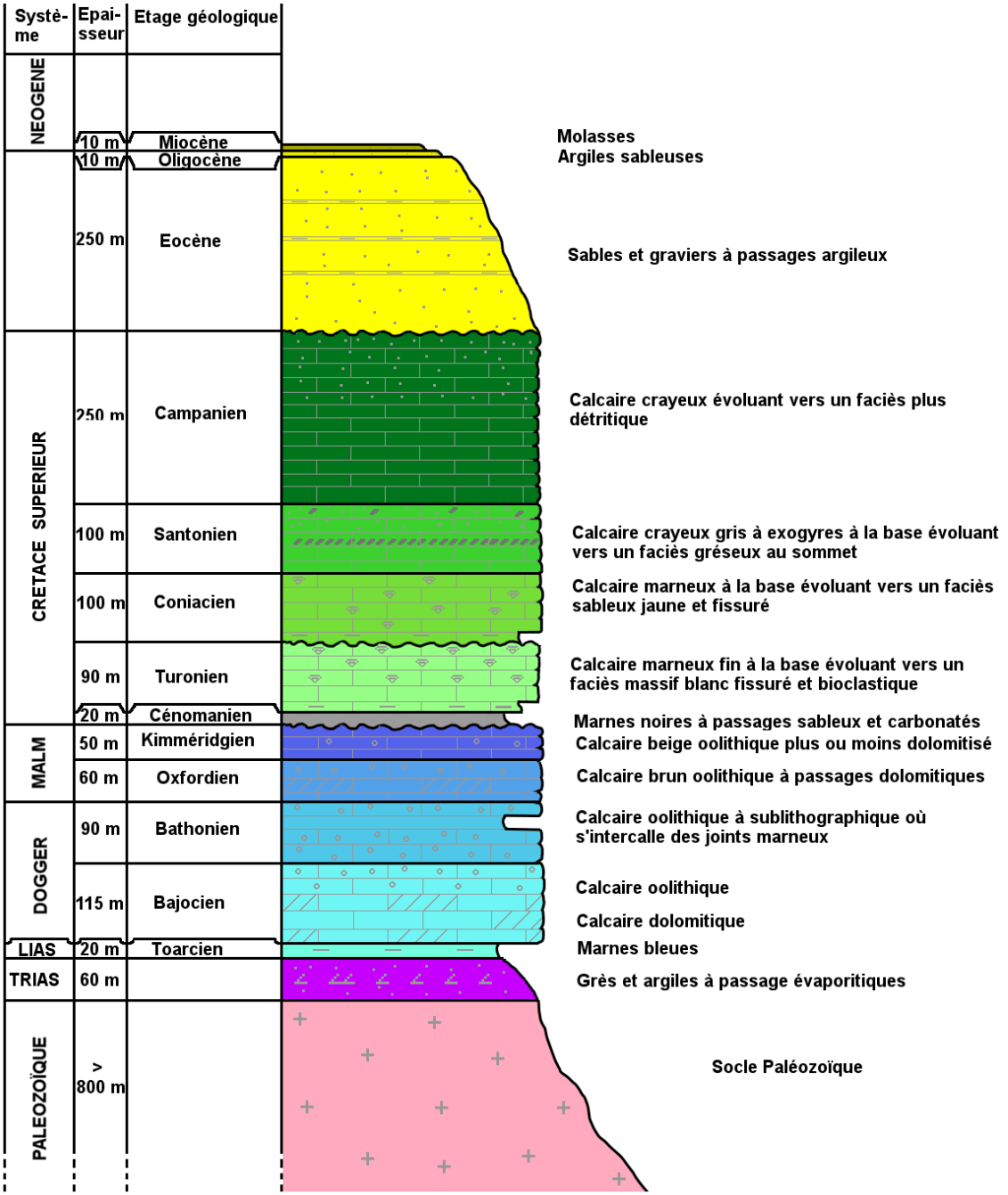


Figure 12 : log géologique des formations rencontrées dans le département de la Dordogne.

1.3 Cadre hydrogéologique régional : un aquifère multicouche carbonaté

1.3.1 L'aquifère multicouche du département de la Dordogne

En Dordogne, l'alimentation en eau potable (AEP) provient de trois ressources :

- **les prises d'eau en rivière**, correspondant à 4 % des volumes exploités pour l'AEP. Ils peuvent être soumis à des problèmes qualitatifs mais sont utilisés comme alimentation pour leur intérêt quantitatif. Localement, ils sont également utilisés comme ressource de substitution pour certains captages d'eaux souterraines ;
- **les nappes superficielles**, généralement associés aux sources et puits peu profonds, correspondent à 13 % des volumes exploités pour l'AEP ;
- **les nappes profondes**, possédant des réserves plus importantes et mieux préservées des pollutions superficielles, correspondent à 83 % des volumes exploités pour l'AEP.

Les formations géologiques du Mésozoïque et du Cénozoïque constituent les principaux réservoirs d'eau du département. L'ensemble du bâti sédimentaire carbonaté permet de distinguer 5 ensembles aquifères séparés par des épontes d'épaisseurs généralement faibles. De cette configuration découle la présence d'un grand multicouche, composés des aquifères :

- du Jurassique moyen ;
- du Jurassique supérieur ;
- du Turonien-Coniacien-Santonien ;
- du Campanien ;
- de l'Eocène.

L'AQUIFERE DU JURASSIQUE MOYEN

L'aquifère du Jurassique moyen est caractérisé par l'aquifère du Bajocien-Bathonien. Dans sa partie libre, il accueille la nappe principale d'une source majeure de Dordogne : la Source de la Glane (BSS001WDNB). Sous couverture, il est souvent à de grande profondeur du fait du plongement progressif des formations géologiques vers le Sud-Ouest. Dans sa partie captive, il est largement utilisé pour l'AEP, comme au niveau de l'agglomération de Périgueux : forage de Trélissac - La Rivière (BSS001WDRA) ; forage de Lesparat (BSS001XBWL), et pour des industries de nettoyage ou alimentaire (forage de l'entreprise RLD, BSS001WDJA ; Forage de l'entreprise FROMARSAC, BSS001WDFH). Les eaux prélevées dans ces réservoirs, sont caractérisées par un faciès magnésien, et un caractère anoxique. Les datations réalisées dans cet aquifère soulignent des eaux à temps de résidence long, de l'ordre de 12 930 ans, comme le montre la datation réalisée au niveau du forage de Lesparat à Boulazac (Chigot et Mazurier, 1992).

Localement, cet aquifère présente des formes de karstification profondes, comme au niveau du forage D6 de Vergt (BSS001WDJB) à –550 m d'altitude. Ces formes endokarstiques profondes semblent traduire d'une karstification hypogène d'après les travaux de Husson et *al.*, (2017).

L'AQUIFERE DU JURASSIQUE SUPERIEUR

Présent à l'affleurement dans la partie septentrionale du Bassin aquitain, l'aquifère du Jurassique supérieur est caractérisé par l'aquifère de l'Oxfordien-Kimméridgien. Sous couverture, il est le siège de nombreuses prospections hydrogéologiques pour l'AEP jusqu'au début des années 2000. Les forages de Lesparat, de Trélissac - La Rivière, de Saint-Laurent-sur-Manoire, du Change (BSS001WDTJ), et de Château l'Evêque ont tous capté initialement l'aquifère du Jurassique supérieur. Des changements de qualité d'eau brute ont été mesurés après les mises en service des captages, avec des apparitions de nitrates, d'éléments bactériologiques de turbidité, et des diminutions de température (Pelissier-Hermitte, 1983 ; S.H.E, 1998, 2001, 2014). L'ensemble de ces constats pose l'hypothèse d'une alimentation par l'aquifère susjacent, provenant du Crétacé supérieur. Ces forages ont tous subi des travaux de réhabilitation et d'approfondissement pour aller capter l'aquifère du Jurassique moyen afin de fournir une eau de meilleure qualité.

L'AQUIFERE DU TURONIEN-CONIACIEN-SANTONIEN

Largement présent à l'affleurement sur toute la moitié centrale, l'aquifère du Turonien-Coniacien-Santonien est l'un des aquifères principaux du département de la Dordogne. Il accueille une large nappe donnant naissance à de nombreuses sources karstiques avec des débits plus ou moins importants. Cet aquifère est utilisé pour l'alimentation en eau potable au niveau des Sources du Toulon à Périgueux ou de la Source de l'Abîme des Moulineaux à Razac sur l'Isle (BSS001XBKW). Il peut également être utilisé pour l'agriculture ou l'industrie. Le faciès géochimique des eaux de cet aquifère est bicarbonaté calcique comme en témoigne les eaux des forages de Leclerc (BSS003RXQW) et de la Roussie (BSS001WDSD) sur le bassin d'alimentation des Sources du Toulon.

De par sa faible productivité (environ 60 $m^3.h^{-1}$), cet aquifère n'est pas priviligié pour les captages d'eau potable départementaux.

L'AQUIFERE DU CAMPANIEN

Dans la partie Nord du département de la Dordogne, le Campanien couvre les buttes ou recouvre les autres formations géologiques du Crétacé supérieur. Son épaisseur ne dépasse généralement pas 40 mètres. De par son faciès crayeux à détritique, il n'est pas un bon aquifère, mais peut posséder un rôle de drainage vertical pour les eaux d'infiltration. Ses capacités aquifères sont surtout reconnues dans la partie Sud-Ouest du département, où son épaisseur de plus de 200 mètres sous couverture tertiaire en fait un réservoir stratégique. Il s'agit d'un aquifère peu karstifié.

La zone d'étude de ces travaux étant principalement localisée dans la partie septentrionale du département, il n'est pas nécessaire de présenter de façon exhaustive cet aquifère.

L'aquifère de l'Eocène est uniquement présent dans la partie Sud-Ouest du département. Son épaisseur importante de plus de 250 m en fait un bon réservoir pour le prélèvement d'eau. Il peut être qualifié de petit multicouche dans le grand multicouche Nord-aquitain avec les nombreux passages marneux dans un ensemble majoritairement sableux. Non présent, sur la zone d'étude de ces travaux, il ne se présentera pas avec plus de détail.

1.3.2 Un fonctionnement hydrogéologique complexe et mal connu

Le contexte géologique de la marge Nord du Bassin aquitain, avec l'enfoncement progressif des couches vers le centre du bassin implique le passage de nappes libres à captive. Cette caractéristique propre aux aquifères de bordures de bassins sédimentaires induit un fonctionnement hydrogéologique particulier.

Les variations latérales de faciès et d'épaisseur de certaines épontes imposent le questionnement sur le caractère imperméable de certaines formations, notamment celle du Cénomanien. Ce questionnement est posé : (i) par la présence de nombreuses sources chaudes qui émergent en surface et qui suppose d'une remontée d'eau d'aquifères profonds à la faveur d'accidents tectoniques ; (ii) par les anomalies répertoriées en forage au niveau de l'aquifère du Jurassique supérieur, et qui supposent des intrusions per descensum du Crétacé supérieur à travers le Cénomanien. De plus, de nombreuses anomalies thermiques positives ou négatives dans plusieurs sources et forages ont été recensées par Lorette (2013), supposant des échanges entre les masses d'eau souterraines.

De ces constats découle un fonctionnement hydrogéologique complexe avec des relations possibles entre aquifères. Ces aquifères karstiques à l'échelle de la marge Nord du Bassin aquitain sont actuellement mal connus, tant du point de vue de leurs géométries complexes, liées à leur formation dans le cadre d'une évolution longue et polyphasée, que de leur fonctionnement hydrogéologique.

1.3.3 Des cartes piézométriques des aquifères du département de la Dordogne

Des mesures piézométriques ponctuelles ont été réalisées en octobre 2016 sur différents forages et piézomètres du département pour initier une réflexion sur les sens d'écoulement de l'eau dans les aquifères. Ces mesures ponctuelles ont été complétées à partir du réseau de suivi mis en place par le Bureau de Recherches Géologiques et Minières (BRGM). Au total, 60 mesures ont été réalisées : 24 sur des forages représentatifs de l'aquifère multicouche du Jurassique supérieur, et 34 sur des forages et piézomètres représentatifs de l'aquifère multicouche du Crétacé supérieur. Les forages captant le Campanien ont été écartés de la campagne de mesure. Ces derniers sont souvent localisés à une faible profondeur, et sont généralement représentatifs d'une nappe plus superficielle. Les forages utilisés pour l'alimentation en eau potable ou l'industrie ont également n'ont également pas été retenus pour l'établissement des cartes piézométriques.

CARTE PIEZOMETRIQUE DE L'AQUIFERE MULTICOUCHE DU JURASSIQUE

L'examen de la carte piézométrique (Figure 13) témoigne de la dualité du caractère libre et captif du système aquifère du Jurassique. En effet, dans la partie Nord et Nord-Est, le réseau hydrographique semble jouer un rôle important dans l'écoulement des eaux souterraines du Jurassique. A l'image de l'Auvézère, de la Côle ou encore de l'Isle, les cours d'eau montrent qu'ils drainent la nappe. A son passage sous le Crétacé supérieur, la nappe du Jurassique semble acquérir un caractère captif. Cette captivité de la nappe est caractérisée tout d'abord par l'artésianisme de certains forages, comme celui de Château l'Evêque.

Pour ce qui est du sens de l'écoulement de l'eau à l'échelle de la zone d'étude, la carte montre une direction d'écoulement globalement orientée Est-Ouest.

Concernant le rôle de l'hydrosystème des Sources du Toulon, il semblerait que la vallée l'Isle ait une influence sur l'écoulement des eaux souterraines. Il semblerait qu'il y ait une relation entre l'aquifère du Jurassique et l'Isle comme en témoigne la présence de sources chaudes dans l'agglomération de Périgueux. Ces sources sont à relier avec la possible existence de l'accident calé sur la charnière du pli anticlinal de Périgueux masquée sous les alluvions de l'Isle. D'autres sorties ponctuelles ou diffuses dans la nappe alluviale de l'Isle sont donc à envisager. Le rôle des Sources du Toulon dans l'organisation des écoulements souterrains de l'aquifère du Jurassique reste encore à déterminer.

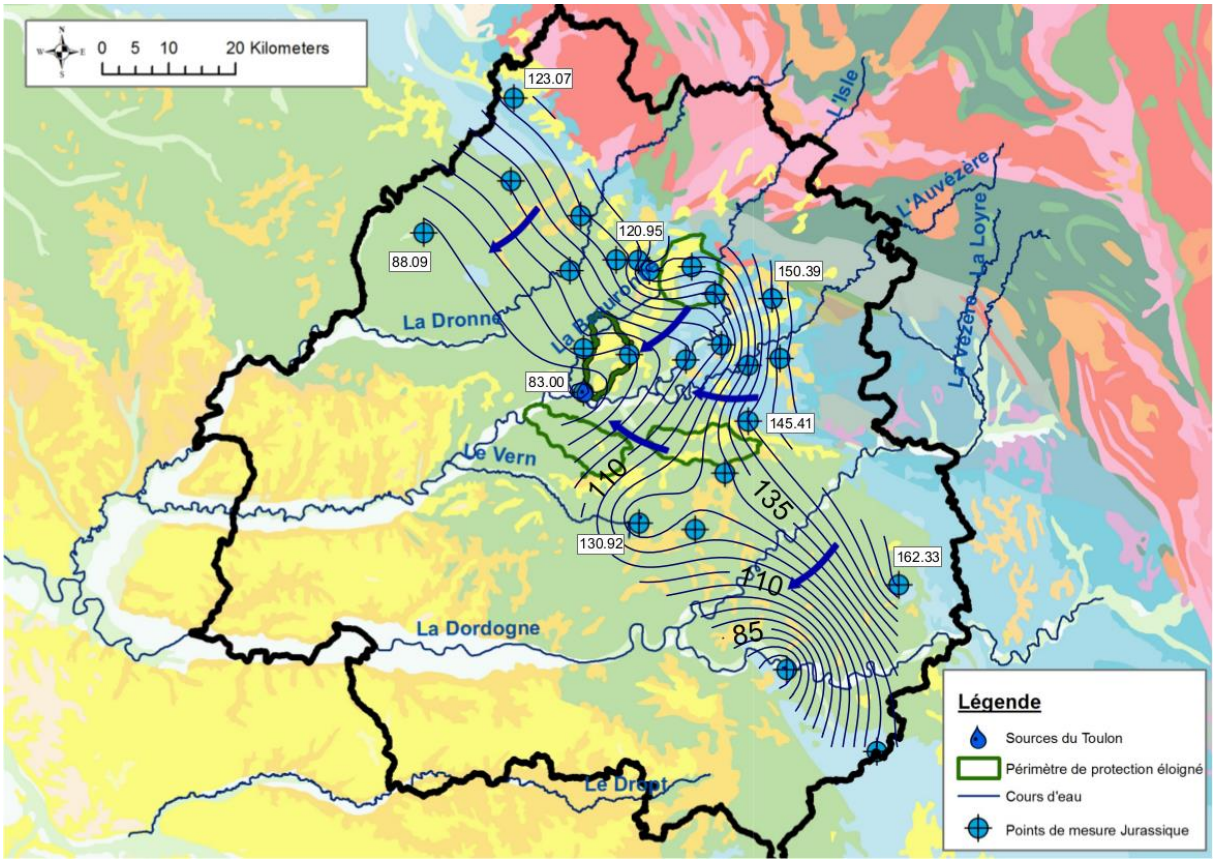


Figure 13 : Carte piézométrique de l'aquifère multicouche du Jurassique réalisé dans des conditions de basses eaux en octobre 2016.

CARTE PIEZOMETRIQUE DE L'AQUIFERE MULTICOUCHE DU CRETACE

L'analyse de la carte piézométrique (Figure 14) montre le caractère libre du système aquifère Turonien-Coniacien-Santonien. Cette carte illustre l'influence du réseau hydrographique dans l'écoulement des eaux souterraines départementales avec des cours d'eau qui drainent les nappes. C'est notamment le cas de la Dronne et de la Pude dans le Nord-Ouest du département, mais également du Côle, de l'Isle, du Manoire dans la partie centrale, ou de la Dordogne dans la partie Sud du département.

Concernant le sens d'écoulement de la nappe, la carte piézométrique montre que la direction générale des écoulements est NE-SO au Nord de Périgueux. Le secteur de la Chapelle-Montabourlet (Nord-Ouest du département) correspond à un point haut de la topographie (+196 mNGF). Cette zone est caractérisée par la présence d'un dôme piézométrique (+162.37 m NGF). Cet élément indique que ce secteur est une des zones de recharge de l'aquifère. Au Sud de la rivière Isle, la faible densité de point ne permet pas une interprétation complète. Cependant, l'idée d'un système aquifère multicouche drainé partiellement par la source des Moulineaux à Razac-sur-l'Isle semble cohérent.

Pour ce qui est du rôle des Sources du Toulon, la carte piézométrique montre le développement d'un axe de drainage majeur centré sur le tracé de l'Isle aux alentours de Périgueux.

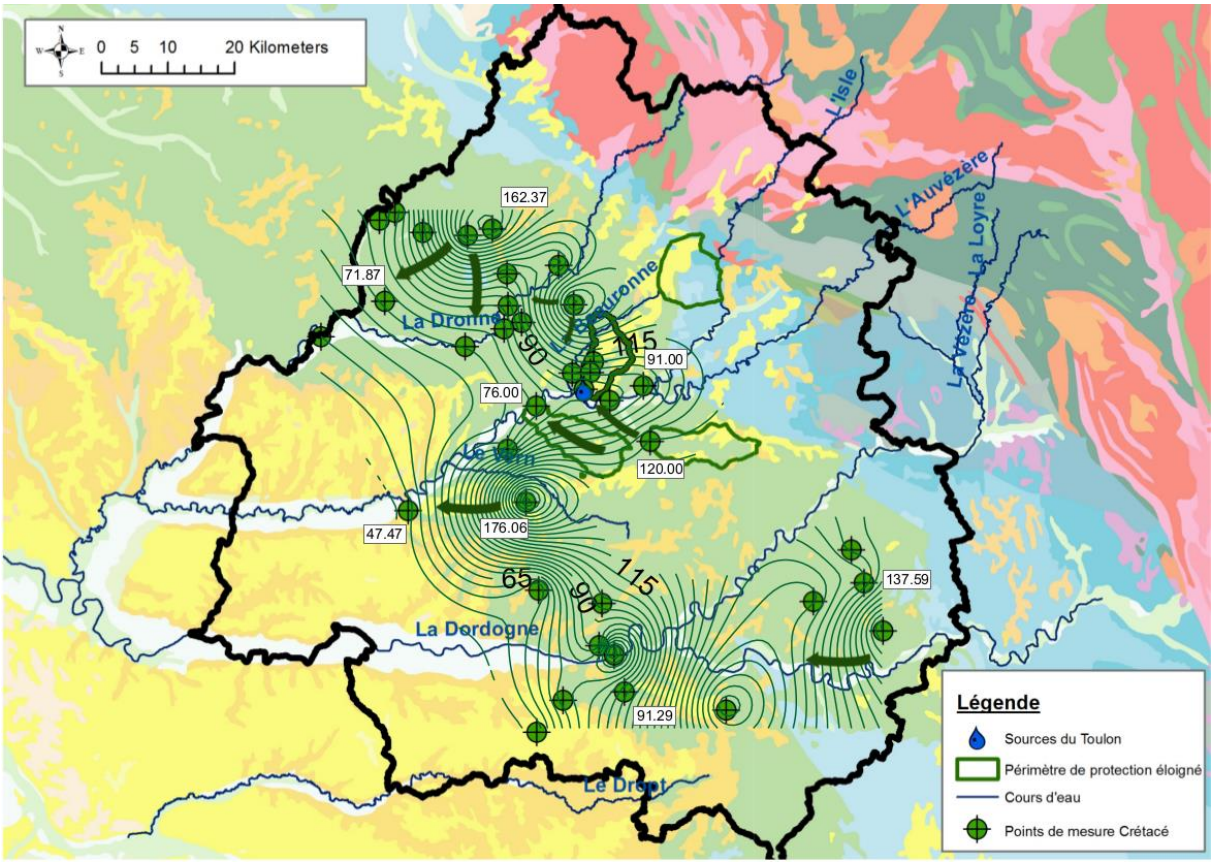


Figure 14 : Carte piézométrique de l'aquifère multicouche du Crétacé supérieur réalisé dans des conditions de basses eaux en octobre 2016.

Les cartes piézométriques décrites précédemment sont représentatives des grandes directions d'écoulement départementales. Les données restent difficiles à interpréter à une échelle plus locale, du fait de la faible densité de piézomètres disponibles pour la mesure.

Sur l'hydrosystème des Sources du Toulon, le manque d'information sur les cotes d'eau dans les forages captant les aquifères du Jurassique et du Crétacé freine les connaissances des relations entre les deux aquifères.

La présence de forages dans la vallée de l'Isle est importante, mais la majorité est utilisée pour l'alimentation en eau potable ou industrielle, et ne permet pas de mesures représentatives d'un régime permanent de la nappe. Ces points de mesures concernent des forages captant l'aquifère du Jurassique :

- Le forage de Saint Laurent sur Manoire ;
- Le forage de Lesparat ;
- Le forage de la Rivière à Trélissac ;
- Le forage de la Cave ;
- Le forage du Change ;
- Le forage de Chancelade.

Un inventaire des niveaux statiques lors de la création des forages a été réalisé. Initialement, tous ces forages possédaient un niveau de charge positif par rapport au niveau du sol. Concernant les forages ou piézomètres captant le Crétacé, des phénomènes d'artésianisme ont également été recensés. C'est notamment le cas pour les piézomètres localisés sur le site du Toulon. Ces périodes ne sont pas permanentes, mais sont cependant observées en période de très hautes eaux.

Les pompages actuels causent une diminution de plusieurs mètres à plusieurs dizaines de mètres de la cote de la nappe du Jurassique par rapport aux niveaux statiques reportés sur les coupes de forage lors de leur création. La conséquence d'un tel rabbatement sur le fonctionnement hydrogéologique est à prendre en considération.

2. Présentation de l'hydrosystème multicouche des Sources du Toulon

2.1 Le site du Toulon

2.1.1 Localisation et historique

Les Sources du Toulon correspondent aux deux principales sources d'alimentation en eau potable de la ville de Périgueux et de son agglomération. Elles portent le nom de Toulon de par la localisation des émergences au sein du quartier « le Toulon » situé à l'Ouest de Périgueux (Figure 2).

Les Sources du Toulon sont composées de deux émergences principales : l'Abîme et le Cluzeau. L'Abîme correspond à une grande vasque de 605 m² au fond de laquelle l'eau sort de griffons orientés suivant la direction NW-SE (Figure 15) (Schoeller, 1972). L'autre source, située à 160 mètres au Nord-Est de l'Abîme, se nomme « le Cluzeau ». Le nom provient probablement de la grotte à proximité servant autrefois de cluzeau (abri sous roche) dans laquelle l'eau sortait autrefois (Von Stempel, 1972). La source du Cluzeau se situe au pied d'un escarpement calcaire du Turonien. Cette émergence peut être liée à une faille verticale ouverte orientée N60°, visible à l'Est de la source au niveau de l'abri sous roche en place.

La source de l'Abîme, qui émerge dans une vasque, donne naissance à un ruisseau. Un déversoir cimenté (à la cote +83.29 mNGF) régit le niveau du plan d'eau quand ce dernier n'est pas déprimé par pompage.

La première installation de captage est réalisée en 1835. Aujourd'hui, la ressource est exploitée et distribuée par l'entreprise SUEZ qui exploite les deux sources avec une capacité maximale de pompage de 2 000 $m^3.h^{-1}$ (1 750 $m^3.h^{-1}$ sur la source de l'Abîme, 250 $m^3.h^{-1}$ sur la source du Cluzeau), pendant une durée pouvant atteindre jusqu'à 20 heures par jour selon la demande. Leur productivité varie ainsi entre 14 000 $m^3.j^{-1}$ et 20 000 $m^3.j^{-1}$ (Sourisseau, 1984 ; Leroux, 2007). L'eau brute ne présentant pas de risque sanitaire majeur, le process de traitement mis en place en aval du pompage est relativement simple, avec : (i) floculation-décantation, (ii) filtration, (ii) désinfection.

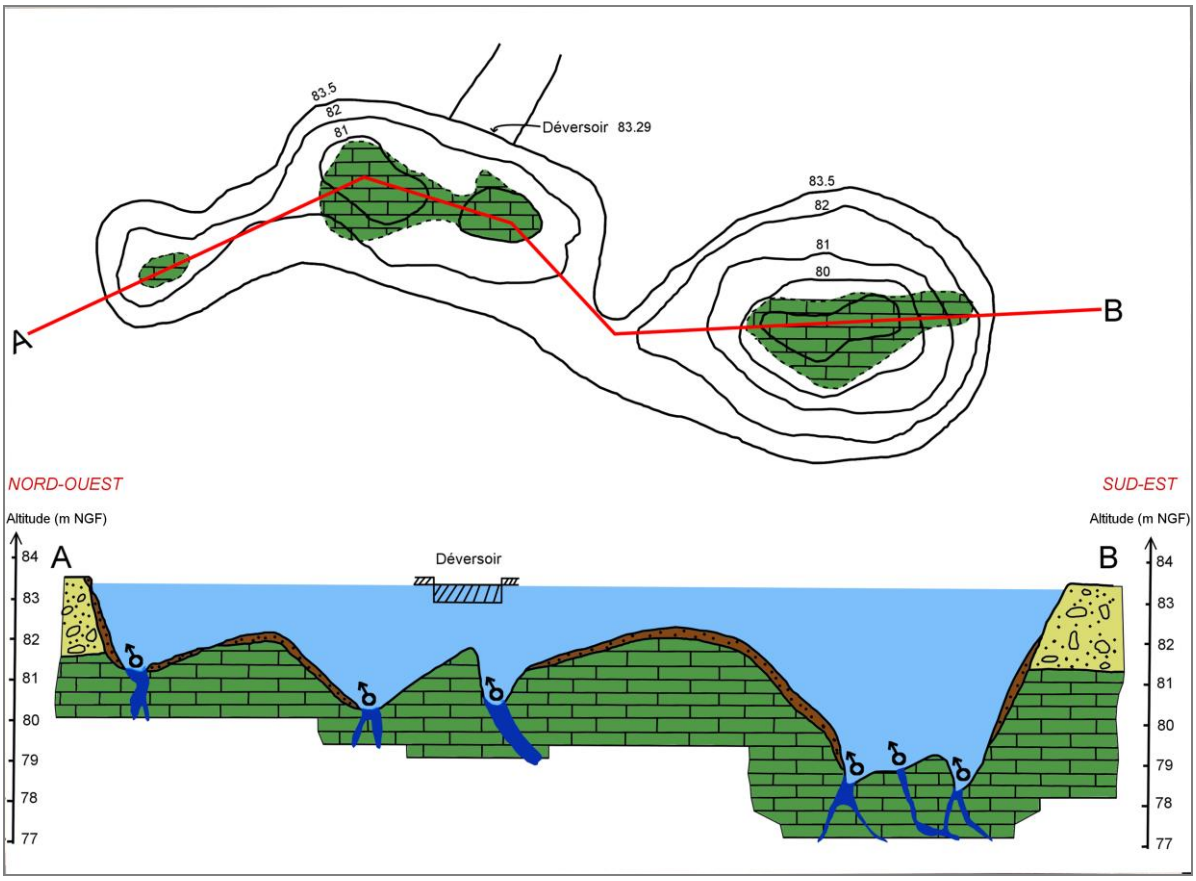


Figure 15 : Topographie de la vasque de la source de l'Abîme (modifié d'après Von Stempel, 1972).

2.1.2 Surveillance et installations mises en place

Afin de surveiller le niveau piézométrique des nappes, 7 piézomètres sont installés. Les piézomètres P1, P2, P3 ne sont profonds que de quelques mètres et permettent la surveillance du niveau de la nappe superficielle (4 m à 5.2 m). Les piézomètres P4, P5, P1P, P3P sont profonds de plusieurs dizaines de mètres (37 m et 72.40 m) et permettent la surveillance de la nappe du Turonien qui alimente les Sources du Toulon.

La figure suivante (Figure 16) présente l'organisation du site du Toulon ainsi que l'emplacement de chaque ouvrage.

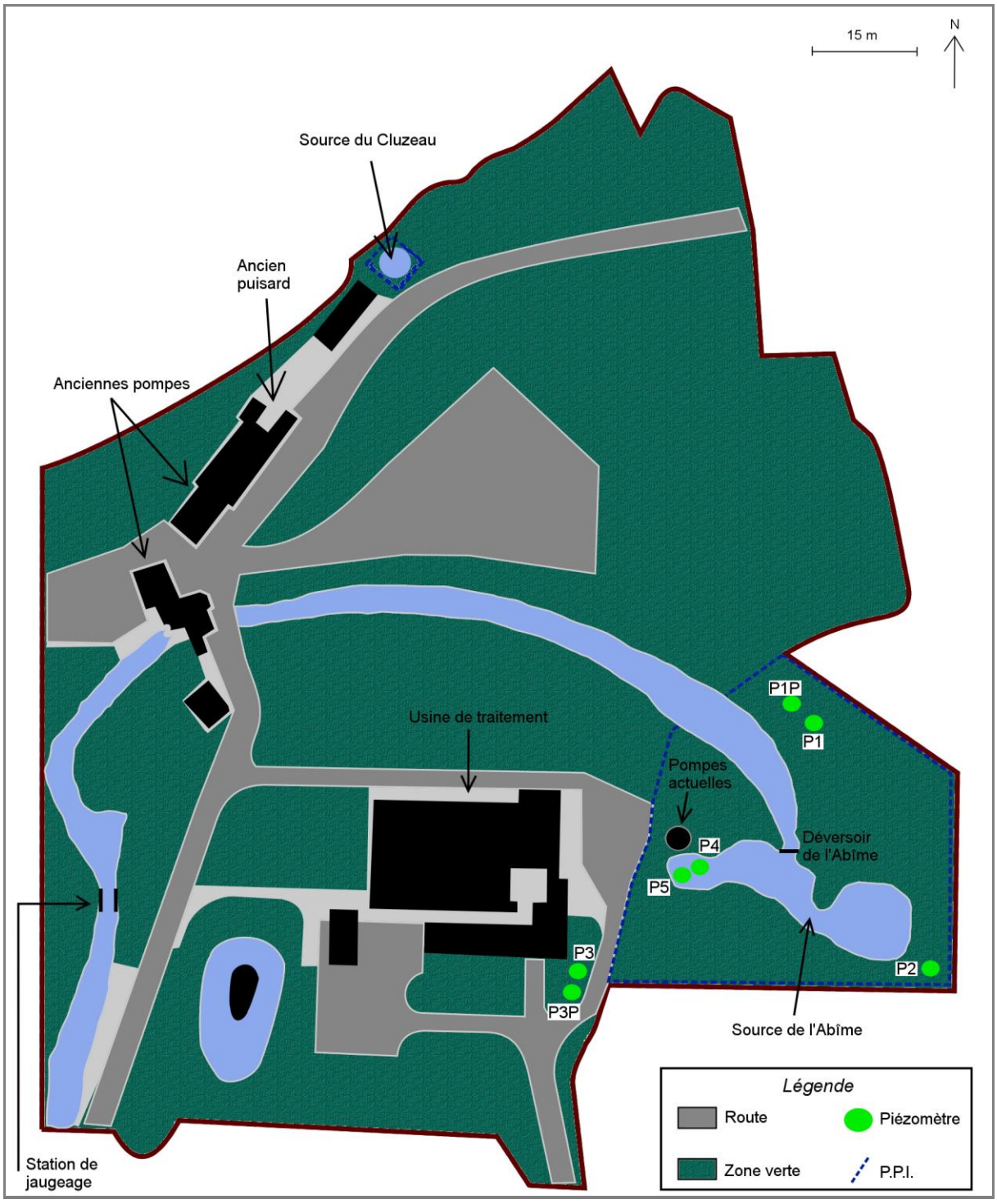


Figure 16 : Présentation du site du Toulon.

Actuellement, le débit cumulé des deux sources est mesuré au niveau de la station de jaugeage créée pour cela (Figure 16). Cette station est de forme rectangulaire, et le niveau de la pelle est situé à une hauteur de 0.405 mètres par rapport au fond du canal d'amenée. Le débit est suivi par SUEZ. La mesure du débit s'effectue l'aide d'un capteur à ultrason de marque MILTRONICS et de type HYDRORANGER PLUS. Ce capteur à ultrason est installé à 1.68 m du fond du déversoir. Les données sont enregistrées et des calculs de volumes journaliers, corrigés des volumes prélevés pour l'AEP, sont réalisés pour obtenir les débits des Sources du Toulon.

2.2 Caractérisation du contexte climatique

Le Périgord présente un climat de type océanique tempéré, influencé par le courant océanique du Gulf-Stream, dont les eaux tièdes viennent réchauffer toute la façade atlantique de l'Europe. Les hivers sont généralement froids avec des températures pouvant être négatives en certaines périodes. Les températures les plus chaudes sont mesurées en été et peuvent dépasser 30 °C.

2.2.1 Le dispositif de suivi climatique de l'agglomération de Périgueux

Historiquement, les caractéristiques climatiques du site d'étude sont prises en compte à travers le réseau de station de mesure de différents organismes (Figure 17) tels que la chambre d'Agriculture (CA_24), le Service de Prévision des Crues (SPC), le Grand Périgueux, et l'entreprise SUEZ. Ce réseau compte 10 stations de mesures. Des données pluviométriques sont disponibles depuis 1995, et des données de températures sont disponibles depuis 2007. Une synthèse exhaustive de ce réseau est fournie dans les travaux de Lorette (2014).

Depuis le 21 janvier 2016, une station météorologique (ADCON A753) est mise en place par l'Université de Bordeaux dans le cadre de ces travaux pour compléter le suivi climatique de la zone d'étude (Figure 17). Elle est installée au niveau du lieu-dit Le Lyonnet sur la commune d'Agonac et permet d'enregistrer au pas de temps de 15 min : le rayonnement direct et indirect (± 20 $W.m^{-2}$), la pression atmosphérique (± 0.1 % de la mesure), l'humidité relative (± 5 %), la température de l'air (± 0.1 °C), la vitesse du vent (± 0.1 $m.s^{-1}$) , la direction du vent (± 2 °), et la pluviométrie (± 0.2 mm). Deux pluviomètres de contrôle ADCON installés en même temps dans les bourgs d'Agonac et de Champcevinel (Figure 17) permettent d'observer la variabilité potentielle de la pluviométrie sur la zone d'étude.

En complément du suivi quantitatif des précipitations, un préleveur de pluie (préleveur automatique de précipitations Eigenbrodt NSA 181) est installé au niveau des ateliers de Champcevinel. Un capteur de précipitation permet l'ouverture du couvercle du collecteur au début de chaque évènement 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 en polyéthylène sont contenues dans le collecteur de pluie. Le système est programmé pour changer de bouteille tous les jours. Ces bouteilles sont conservées dans le préleveur à une température de 4 °C jusqu'à la récupération par un opérateur.

La Figure 17 synthétise le réseau de suivi climatique de la zone d'étude.

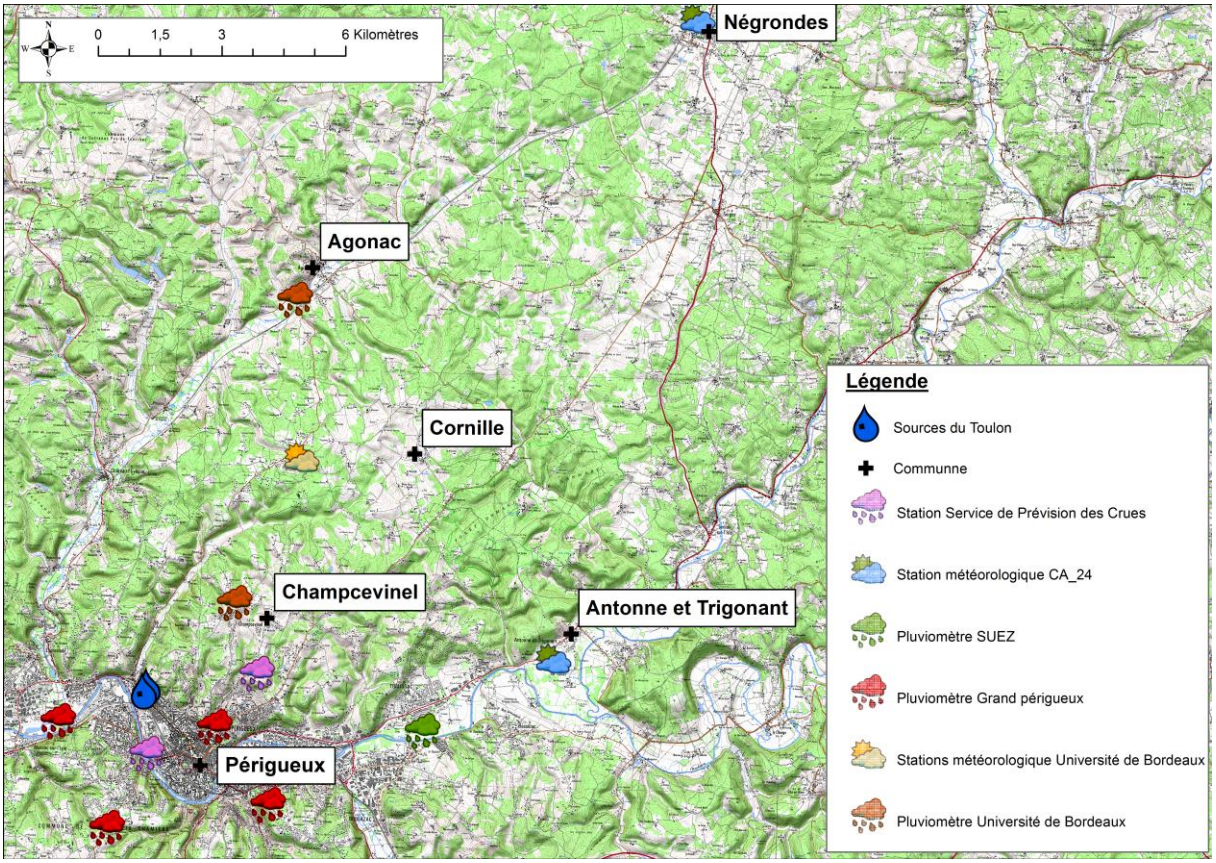


Figure 17 : Localisation du réseau de suivi climatique sur la zone d'étude.

2.2.2 Les conditions climatiques de février 2014 à septembre 2018

Les travaux proposés dans ce manuscrit se répartissent sur plus de 4 ans et demi, entre février 2014 et septembre 2018. Pendant cette période, les conditions climatiques sont contrastées avec des années plus ou moins sèches, chaudes, ou humides.

Les données de température sont issues de la station d'Antonne-et-Trigonant, appartenant au CA_24, pour la période comprise entre 2007 et janvier 2016. Ensuite, les données présentées sont celles de la station météorologique de l'Université de Bordeaux. Les données pluviométriques sont issues du pluviomètre de Périgueux, appartenant au SPC, pour la période comprise entre mai 1995 et janvier 2016. Ensuite, les données présentées sont celles de la station du météorologique de l'Université de Bordeaux.

Les températures extérieures et la pluviométrie, mesurée par le CA_24 et le SPC sur la zone d'étude, nous permettent de comparer les années étudiées respectivement aux 11 et 23 années précédentes (Tableau 2, Figure 18). Il en ressort une température moyenne annuelle de 12.52 °C (entre 1995 et 2018) et une pluviométrie moyenne annuelle de 793.4 mm (entre 2007 et 2018).

En 2014 (Figure 18), les températures moyennes mensuelles sont majoritairement supérieures à la normale, traduisant une année plutôt chaude. La température moyenne annuelle est en accord avec ce constat, avec une température moyenne annuelle de 12.71 °C. Concernant les précipitations, 2014 peut être définie comme une année excédentaire, à l'image des précipitations hivernales, printanières et automnales (janvier – février – avril –

novembre) qui sont largement supérieures aux moyennes mensuelles. La hauteur totale de pluie mesurée en 2014 est en accord avec ce constat, avec une hauteur totale annuelle de 921.1 mm.

En 2015 (Figure 18), les températures moyennes mensuelles sont largement supérieures à la normale, traduisant une année chaude. La température moyenne annuelle est plus chaude que celle de 2014, avec une température moyenne annuelle de 12.78 °C. Concernant les précipitations, 2015 peut être définie comme une année très déficitaire, à l'image des précipitations mensuelles qui sont, à l'exception du mois d'août, toujours très inférieures aux moyennes mensuelles. La hauteur totale de pluie mesurée en 2015 est en accord avec ce constat, avec une hauteur totale annuelle de 476.2 mm.

En 2016 (Figure 18), la température moyenne annuelle est de 12.50 °C, ce qui traduit une année thermiquement dans la moyenne. Concernant les précipitations, 2016 peut être définie comme une année très excédentaire, avec un hiver et un printemps très pluvieux, où les précipitations mensuelles sont toujours au-dessus de la moyenne. Un été et automne très secs a permis de ne pas mesurer une année très excédentaire en terme de précipitation, avec une hauteur totale de 756.8 mm.

En 2017 (Figure 18), les températures moyennes hivernales sont supérieures à la normale, traduisant un hiver doux, mais la température moyenne annuelle (12.45 °C) ne la classe pas en année chaude par rapport à la température moyenne depuis 2007 (12.52 °C). Concernant les précipitations, 2017 est caractérisée par un hiver et un printemps secs. La hauteur totale de pluie mesurée en 2017 est en accord avec ce constat, avec une hauteur totale annuelle de 740.2 mm.

En 2018 (Figure 18), les températures moyennes mensuelles sont largement supérieures à la normale, traduisant une année chaude. Concernant les précipitations, 2018 est caractérisée par un hiver et un printemps très humide (de janvier à mai). La hauteur totale de pluie mesurée du 1er janvier au 1er septembre 2018 est de 726.2 mm. Les précipitations de septembre à décembre devraient permettre de classer cette année comme une année humide.

En résumé, les années 2014 à 2018 peuvent se caractériser d'un point de vue climatique de la façon suivante :

- **2014** : chaude et excédentaire en pluie ;
- **2015** : chaude et déficitaire en pluie ;
- **2016** : normale et excédentaire en pluie ;
- **2017** : normale et déficitaire en pluie ;
- **2018** : chaude et excédentaire en pluie.

Tableau 2 : a) Température et pluie annuelle pour chaque année de 1995 à 2018. b) Température moyenne annuelle de 2017 à 2018, et précipitation moyenne annuelle de 1995 à 2018.

a)

Paramètre	1995 (à partir du 01/05/1995)	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006
Température extérieure annuelle (°C)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Pluie annuelle (mm)	87	540.6	934	822.2	1134.4	1167.5	959.8	458.4	871.6	790.2	483.2	1011.7

Paramètre	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016	2017	2018 (au 30/09/2018)
Température extérieure annuelle (°C)	12.21	12.68	12.64	12.19	12.94	12.3	12.68	12.71	12.78	12.5	12.45	13.4
Pluie annuelle (mm)	998.6	886.9	569.8	720.4	517.1	710.1	950.5	921.1	476.2	756.8	740.2	726.2

b)

Précipitation moyenne 1995-2018 (mm)	Précipitation moyenne 2014-2018 (mm)	Température moyenne 2007-2018 (°C)	Température moyenne 2014-2018 (°C)
793.4	723	12.52	12.61

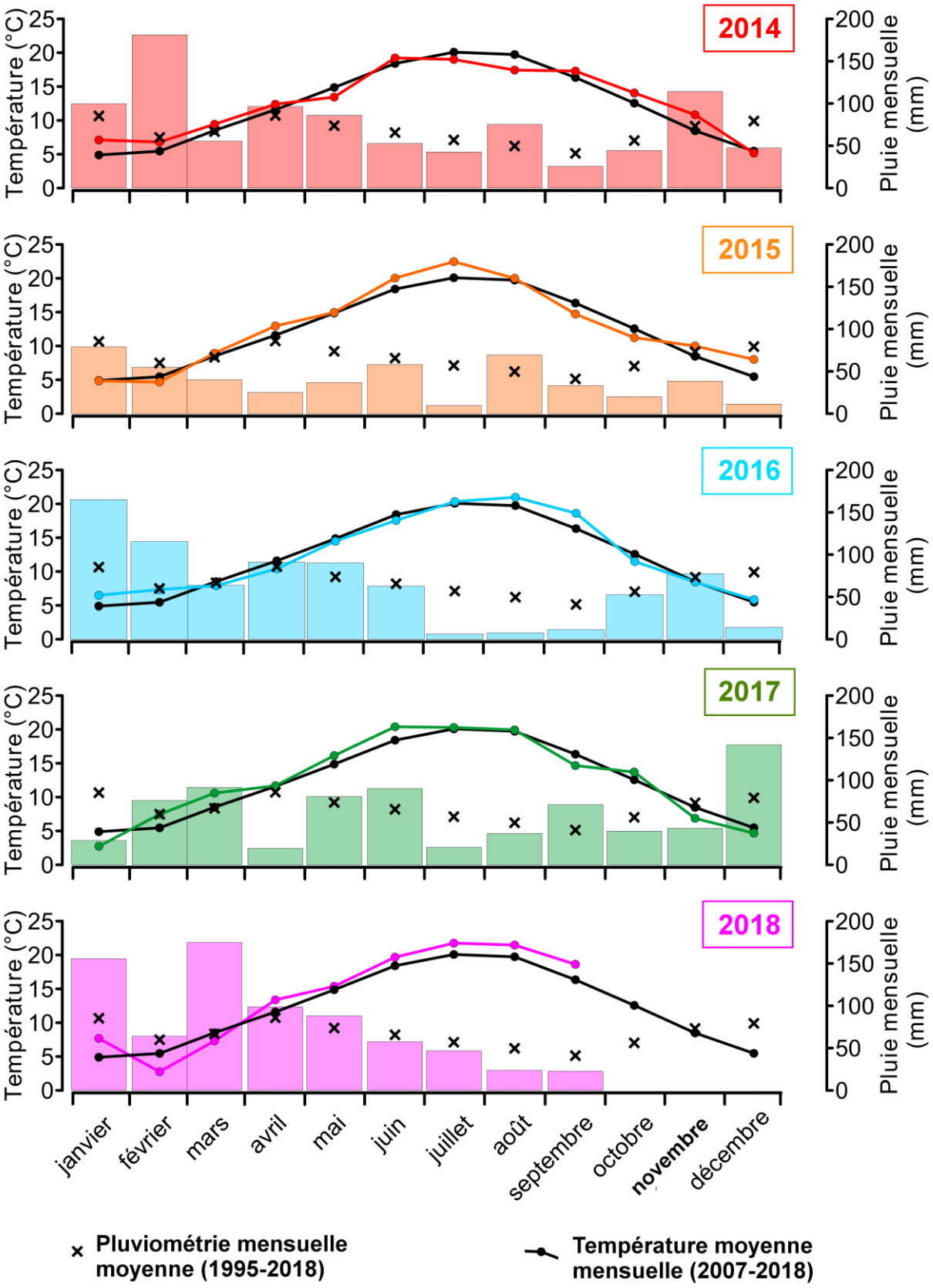


Figure 18 : Comparaison inter-anuelle des données de températrure et de précipitation avec les moyennes mensuelles de température (2007-2018) et de précipitations (1995-2018). En couleur, les données de l'année considérée, en noir les moyennes mensuelles.

2.3 Contexte hydrologique

D'un point de vue hydrologique, la zone d'étude est traversée par deux rivières principales et un cours d'eau (Figure 19).

Tout d'abord l'**Isle** (Figure 19), qui est le principal affluent de la Dordogne. Elle prend sa source dans le Limousin à 375 m d'altitude et sa longueur est estimée à 255.8 km. Elle borde la ville de Périgueux par le Sud et constitue le niveau de base régional pour un grand nombre de systèmes karstiques.

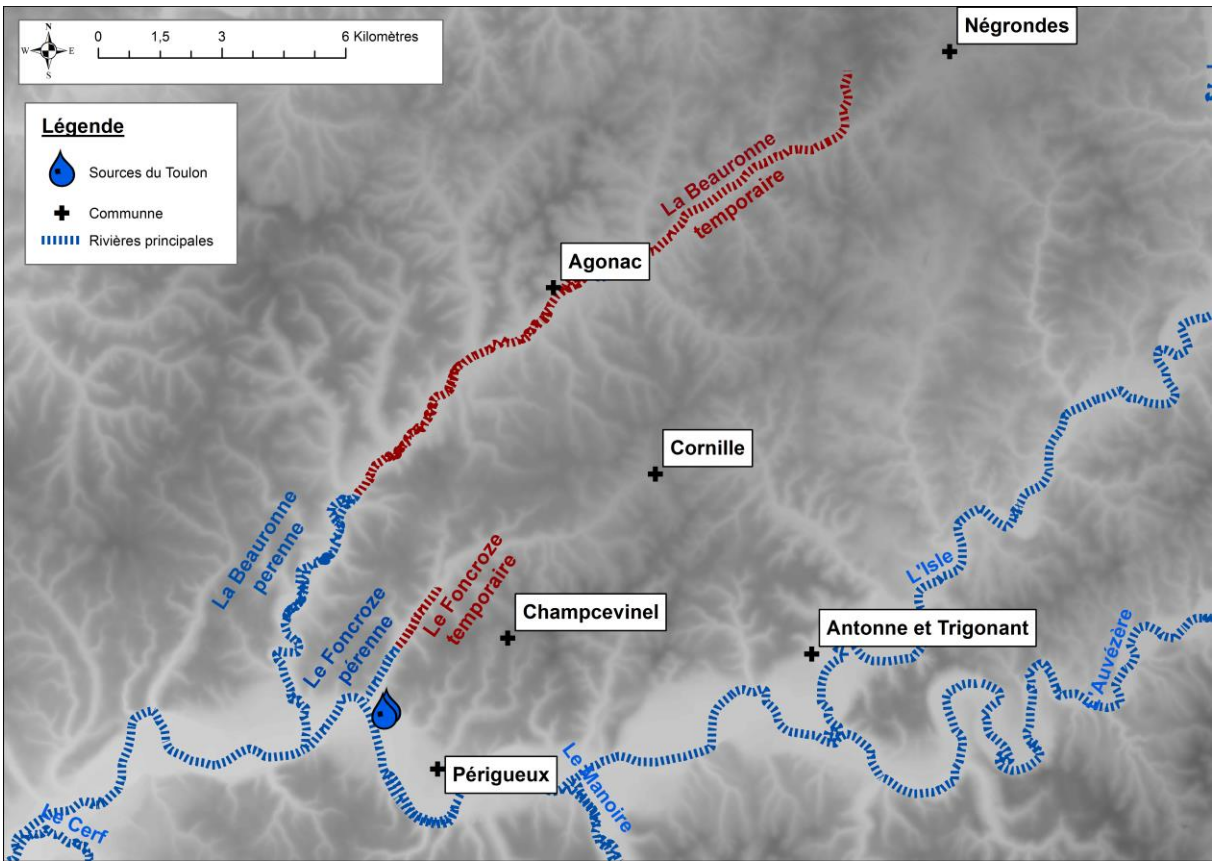


Figure 19 : Principales rivières et cours d'eau de la zone d'étude.

La **Beauronne** est la deuxième rivière à prendre en compte. Elle se situe à l'Ouest de notre zone d'étude et traverse les villes de Chancelade, Château-l'Evêque et Agonac. Elle prend sa source sur la commune de Négrondes au niveau du lieu-dit La Patourie, et est alimentée tout le long de son lit par des sources de faible débit. La partie aval de la rivière est pérenne alors que la partie en amont de Château l'Evêque est temporaire (Figure 19).

Historiquement, la Beauronne a souvent été considérée comme la limite Ouest du bassin d'alimentation des Sources du Toulon, mais cette limite a été remise en question par les travaux de Von Stempel (1972). L'auteur explique que la vallée de la Beauronne jouerait un rôle dans les écoulements souterrains, avec une alimentation possible des Sources du Toulon au-delà de cette vallée, provenant du Nord-Ouest selon une direction parallèle à l'axe de l'anticlinal de Périgueux. La partie aval de la rivière est alimentée par de nombreuses sources karstiques, alors que la partie amont n'est alimentée que par quelques sources de débit trop faible pour engendrer un écoulement pérenne. Les variations de débits peuvent être importantes dans la partie aval avec des variations entre 100 $L.s^{-1}$ et environ 2 $m^3.s^{-1}$.

Cette rivière restera au cœur des interrogations dans cette étude, en lien avec le questionnement sur le fonctionnement et l'alimentation hydrogéologique des Sources du Toulon

Le **Foncroze** (Figure 19), est un cours d'eau important dans la zone d'étude, et se situe à proximité des Sources du Toulon. Il prend sa source sur la commune de Champcevinel au Nord du vallon appelé « Vallon de Foncroze ». Il s'agit d'une vallée généralement sèche, mais lors d'évènements pluvieux suffisamment intenses, la mise en charge de trop-pleins de l'aquifère permet un écoulement d'eau en surface. En fonction de l'activation de ces trop-pleins, le débit du ruisseau Foncroze peut évoluer entre environ 2 $L.s^{-1}$ et environ 50 $L.s^{-1}$ d'après des mesures effectuées pendant ces travaux. De nos jours, aucune chronique de débit n'est disponible sur le ruisseau Foncroze.

2.4 Occupation du territoire et géomorphologie

En surface, la zone d'étude est typique du paysage périgourdin et se caractérise par sa géomorphologie karstique (Figure 20). De nombreuses formes superficielles, comme des dolines, des pertes ou encore des vallées sèches, relatives au karst, sont visibles au niveau de la zone d'étude ; et ce sont ces formes, et plus particulièrement, leur l'agencement qui en détermine sa morphologie. Les dolines sont généralement concentrées sur les plateaux. La plupart des pertes sont temporaires, et ne s'activent que lorsque les conditions climatiques deviennent suffisamment intenses où qu'un ruissellement de surface entraîne une entrée d'eau ponctuelle directement dans le compartiment souterrain. Quelques vallées sèches se distinguent également dans le paysage. Ces vallées sont creusées de façon plus ou moins importantes jusqu'à la rivière l'Isle. Le rôle de ces vallées sèches dans le fonctionnement hydrogéologique de la zone d'étude est encore à définir, et sera précisé dans ces travaux.

La zone d'étude, localisée au Nord de l'agglomération de Périgueux, est considérée comme rurale. L'occupation du sol (Figure 20) est majoritairement forestière (50 %) et agricole (40 %). L'urbanisation du bassin d'alimentation représente moins de 10 % du territoire. Les pratiques agricoles en amont des Sources du Toulon sont intenses. Les cultures de blé, maïs, tournesol, et colza, représentent plus de 90 % des pratiques agricoles. Quelques élevages, de vaches ou canards sont présents, mais sont considérés comme négligeables pour impacter la ressource en eau souterraine.

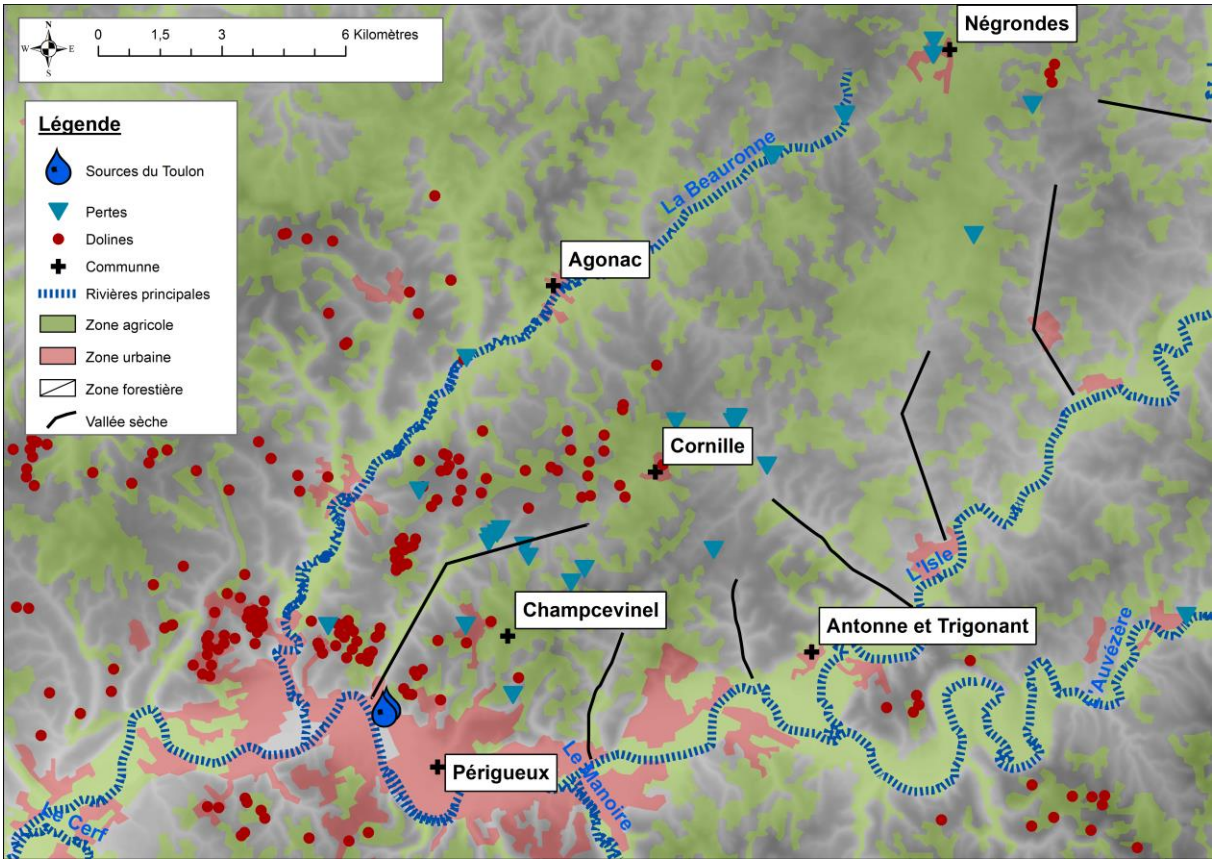


Figure 20 : Contexte géomorphologique et occupation du territoire en amont des Sources du Toulon.

Le caractère karstique de la zone d'étude, couplé à l'occupation du territoire en surface engendre une augmentation des concentrations en nitrates dans les eaux de surface et les eaux souterraines. Depuis les années 1960, les concentrations en nitrates aux Sources du Toulon ne cessent d'augmenter (de 2 $mg.L^{-1}$ à 20 $mg.L^{-1}$).

Le chapitre 6 est consacré à la détermination des origines et du devenir de ces contaminations.

2.5 Intégration au sein du cadre hydrogéologique régional

2.5.1 Cadre géologique local

Le cadre géologique de la région de Périgueux est globalement bien connu comme le montre les travaux de Bourguet (1966), Schoeller (1970, 1971a, 1972), Von Stempel, (1972), Le Pochat et *al.*, (1980), Platel (1989, 1996, 2013), Angeli (1996), Ogoula-Arondo (2008) ; Platel et *al.* (2010), Cabaret et *al.* (2012, 2014), Goubier (2013), et Lorette (2013, 2014, 2015). La carte géologique locale est proposée en Figure 21.

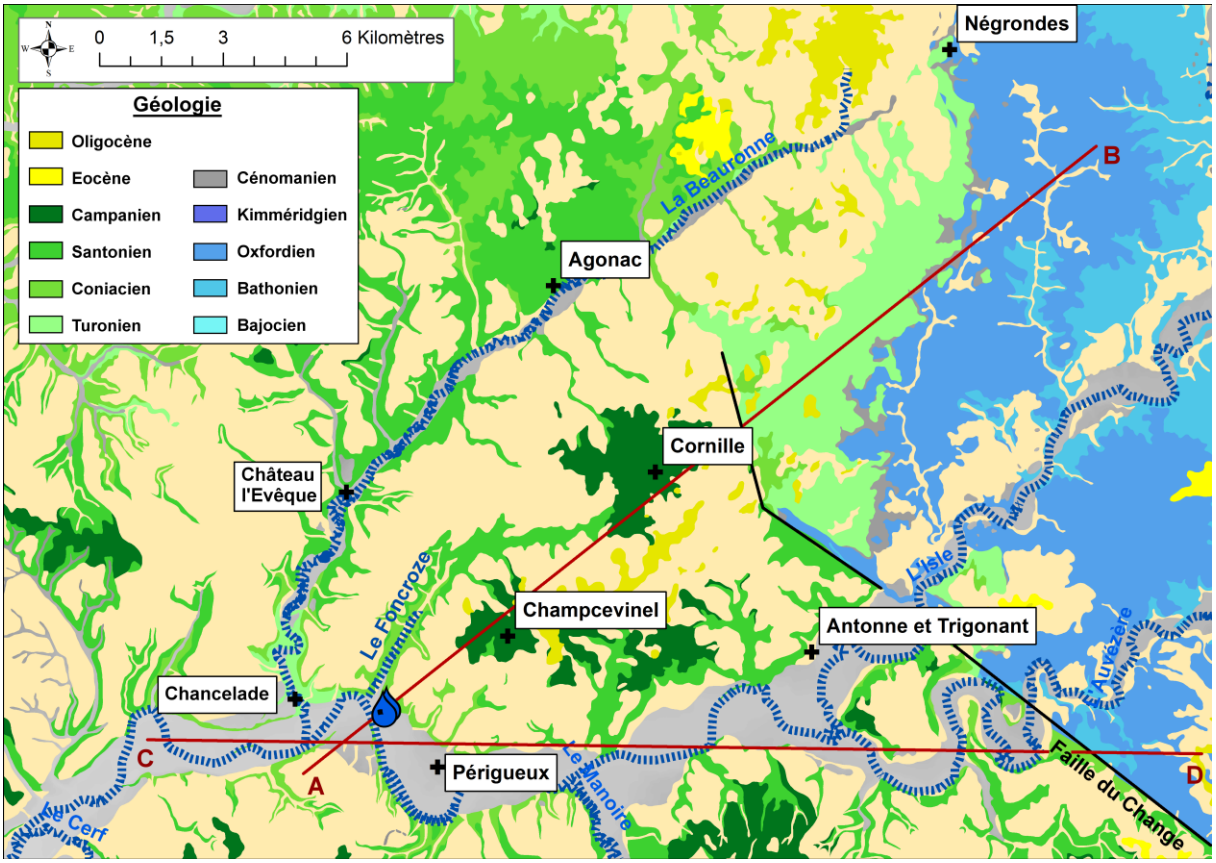


Figure 21 : Contexte géologique de l'hydrosystème karstique des Sources du Toulon.

D'un point de vue géologique, la zone d'étude se caractérise par la présence à l'affleurement de formations carbonatées du Jurassique moyen, du Jurassique supérieur et du Crétacé supérieur. A la base, les formations du Jurassique moyen (Bajocien, Bathonien) sont constituées de calcaires dolomitique et oolithique d'une épaisseur d'environ 200 m. Plus haut dans la série, les formations du Jurassique supérieur (Oxfordien, Kimméridgien) sont constituées de calcaires dolomitiques d'épaisseur variant entre 100 et 150 mètres. Au sommet, les formations du Crétacé supérieur (Turonien, Coniacien, Santonien) correspondent à des calcaires d'épaisseur variant entre 200 et 250 mètres.

D'un point de vue structural, le système karstique du Toulon est caractérisé par l'existence de plis et fractures ayant pour direction principale NW-SE. A l'Est de la zone d'étude, **la faille du Change** assure une limite franche entre les affleurements du Jurassique supérieur au Nord-Est et ceux du Crétacé supérieur au Sud-Est. Cet accident, est orienté N145° et possède un rejet de l'ordre de 150 m. Le rôle de cet accident dans le fonctionnement hydrogéologique de l'hydrosystème des Sources du Toulon est encore à définir : est-elle une barrière hydraulique aux écoulements souterrains ? Permet-elle la mise en relation des aquifères Jurassique et Crétacé ? La zone d'étude est caractérisée par deux flexures principales : (i) l'anticlinal de Périgueux, (ii) le synclinal de Cornille. **L'anticlinal de Périgueux**, orienté N110 °, est de faible extension géographique. Il a dû rejouer à plusieurs reprises jusqu'au paroxysme éocène associé à la compression du bâtiment sédimentaire provoqué par la surrection de la chaîne pyrénéenne. La charnière au cœur de cet anticlinal est située entre Chancelade et l'Ouest de la ville de Périgueux. Des accidents localisés sur l'extrados de l'anticlinal permet probablement la remontée d'eau profonde en provenance de l'aquifère du Jurassique. Associé à l'anticlinal de Périgueux, **le synclinal de Cornille**

déforme également les formations sédimentaires situées au Nord de Périgueux, sur le plateau de Champcevinel.

Les coupes géologiques réalisées permettent d'apprécier la géométrie des formations. La coupe AB (Figure 22), orientée SW-NE, intègre les structures anticlinale et synclinale. Cette coupe est contrôlée par 3 forages : le forage de l'Abîme du Toulon, le forage de la Roussie et le forage de la Luminade. Elle montre une diminution de la profondeur du Jurassique en approche de l'anticlinal de Périgueux. Le coupe CD (Figure 23), orientée Ouest-Est, montre l'agencement des formations géologiques longitudinalement à l'Isle, et la position des Sources du Toulon par rapport à la structure.

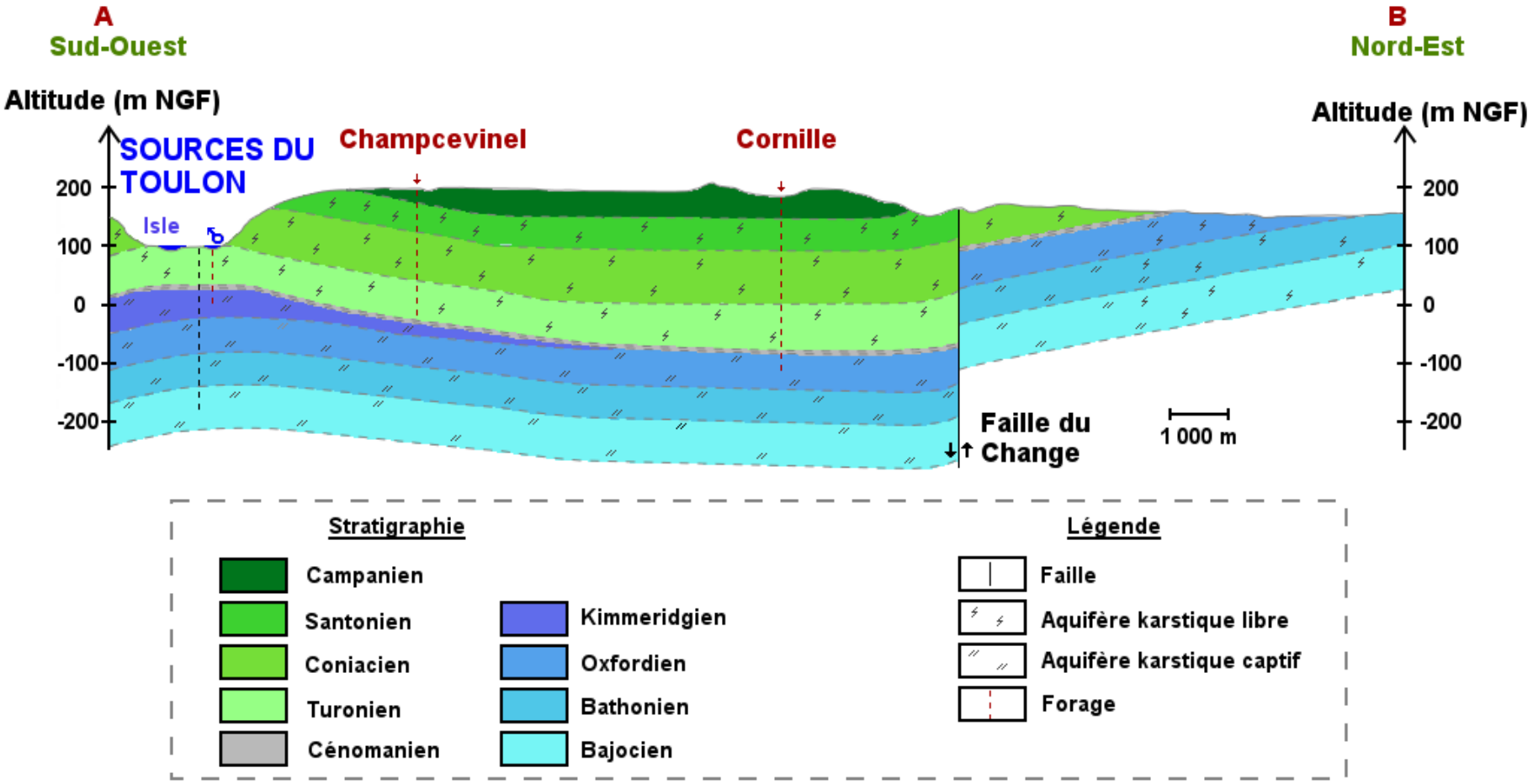


Figure 22 : Coupe géologique Sud-Ouest - Nord-Est interprétative d'après la carte géologique et les forages de la zone d'étude. Se reporter à la Figure 21 pour le positionnement de la coupe AB.

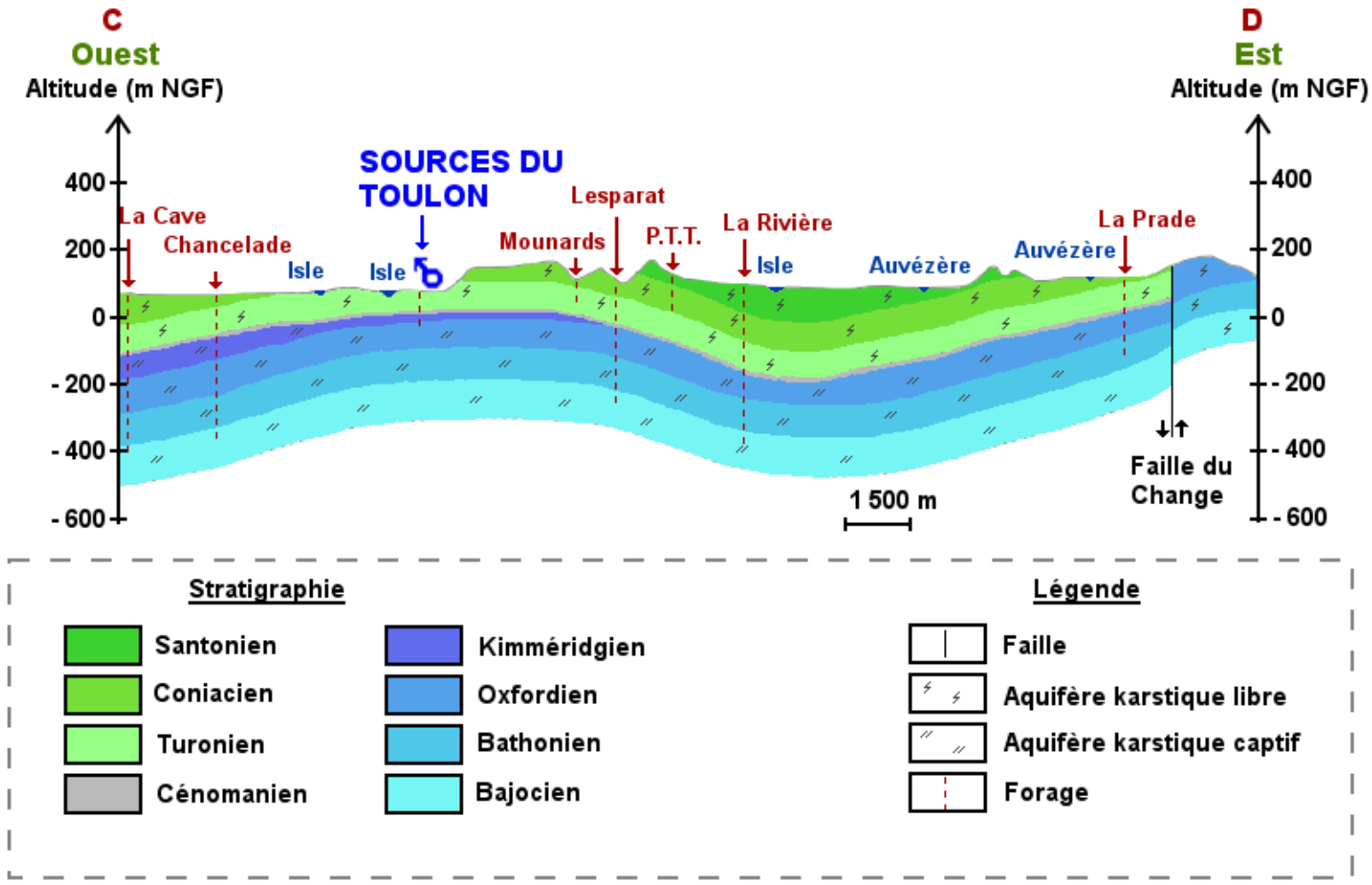


Figure 23 : Coupe géologique Est – Ouest interprétative d'après la carte géologique et les forages de la zone d'étude. Se reporter à la Figure 21 pour le positionnement de la coupe CD.

2.5.2 Cadre hydrogéologique local

Le cadre hydrogéologique local est représentatif du cadre hydrogéologique régional avec la présence de deux aquifères karstiques multicouches : (i) le multicouche du Crétacé supérieur, composé des aquifères du Turonien, Coniacien et Santonien ; (ii) le multicouche du Jurassique supérieur, composé des aquifères de l'Oxfordien et du Kimméridgien. Ces deux unités sont séparées par les marnes du Cénomanien, considérées comme imperméables. Même localement, les variations latérales de faciès (marnes à sables) et d'épaisseur (4 à 20 mètres) de cette formation engendrent des interrogations sur son rôle d'imperméable qu'on lui attribue de longue date. Des remontées d'eaux profondes issues de l'aquifère captif du Jurassique sont répertoriées proches des Sources du Toulon, et des infiltrations d'eau de surface dans plusieurs forages profonds posent des questions sur le rôle de cette éponte.

LES PRINCIPAUX EXUTOIRES

Plus d'une centaine de sources karstiques ont été recensées sur l'ensemble de la zone d'étude. N'étant pas pertinent de les présenter en intégralité, il ne sera présenté que les principaux exutoires de ces systèmes karstiques. 4 émergences principales sont recensées sur la zone d'étude au Nord de l'agglomération périgourdine (Figure 24) :

- les Sources du Toulon (BSS001WDGM) ;
- la source de la Clavelie (BSS001WDSZ) ;
- la source des Bories (BSS001WDSK) ;
- la source de la Glane (BSS001WDNB).

La source de la Glane est l'exutoire régional principal des aquifères du Jurassique moyen et supérieur. Le débit de cette source est important, avec des variations entre 80 $L.s^{-1}$ et 3 700 $L.s^{-1}$ (Von Stempel, 1972).

La Source de la Clavelie est une émergence significative de l'aquifère du Crétacé supérieur de la zone d'étude. Elle a fait l'objet d'un suivi bi-mensuel pendant ces travaux et est présentée plus en détail dans le chapitre suivant. Aucune mesure de débit n'étant disponible actuellement, il n'est pas possible actuellement de calculer les volumes d'eau passant à l'exutoire de son hydrosystème.

Les Sources du Toulon sont identifiées dans la littérature comme l'exutoire principal du Crétacé supérieur. Cependant, Lastennet et *al.*, (2004) envisagent une alimentation plus profonde en provenance du Jurassique captif et profond.

La source des Bories est caractérisée d'après les travaux d'Angéli (2002) comme un mélange entre l'aquifère du Crétacé supérieur et un aquifère plus profond en provenance du Jurassique. Aucune chronique de débit n'est actuellement disponible, mais des mesures réalisées dans le cadre des travaux présentés ici montrent des variations entre 60 $L.s^{-1}$ et 220 $L.s^{-1}$.

En complément de ces émergences majeures, des **sources chaudes** (~20 °C) sont répertoriées au niveau de la vallée de l'Isle, dont l'origine s'explique par des remontées d'eaux profondes en provenance de l'aquifère captif du Jurassique.

L'Annexe 2 : Photographies et descriptions des principales sources karstiques en périphérie de Périgueux de ce manuscrit donne des photographies et une brève description de ces sources permettant au lecteur de se familiariser avec elles.

La compréhension de l'alimentation des Sources du Toulon est rendue plus difficile par le caractère multicouche de l'hydrosystème, avec des relations possibles entre les aquifères, et des limites d'alimentation en surface mal connues. La délimitation de la zone d'alimentation des Sources du Toulon passe par l'amélioration des connaissances de l'impluvium des autres exutoires de la zone d'étude.

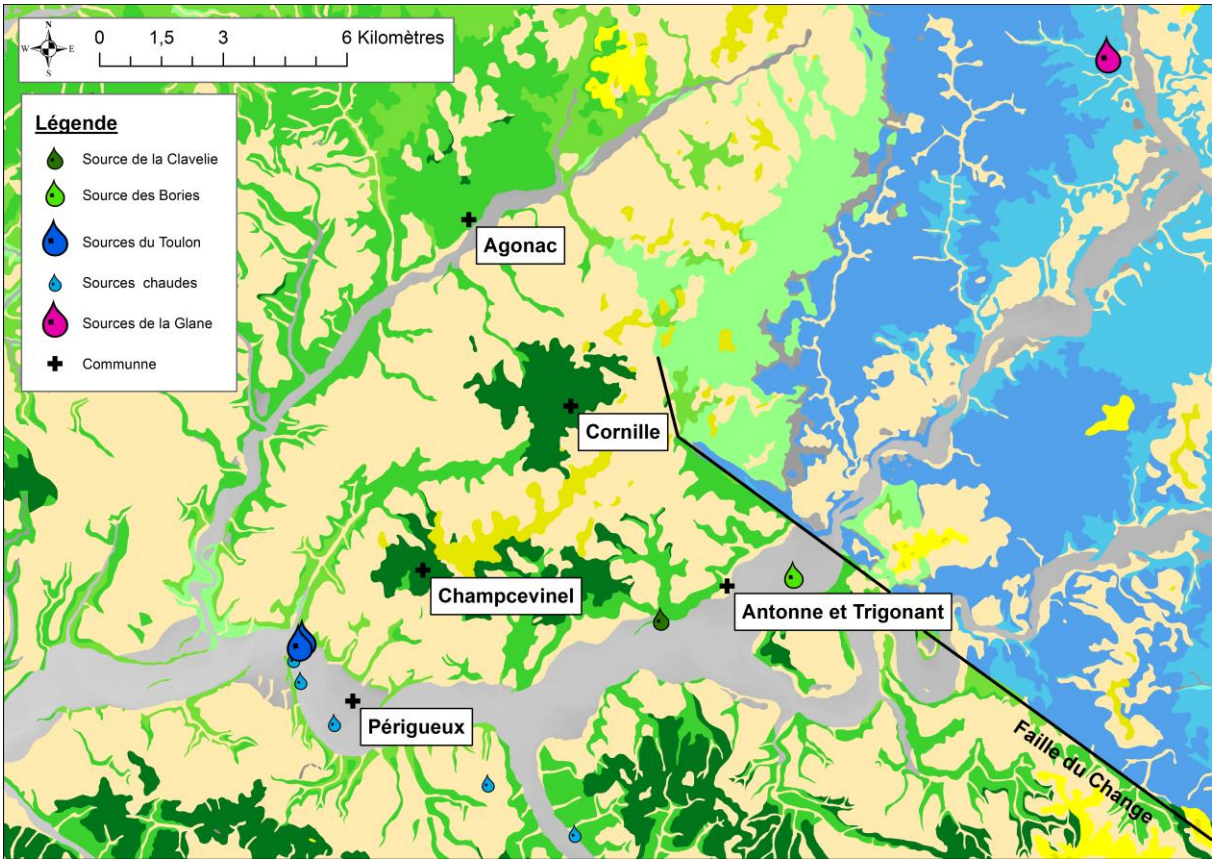


Figure 24 : Localisation des principaux exutoires de la zone d'étude. La légende de la carte géologique est similaire à celle de la Figure 21. La taille des gouttes est proportionnelle au débit des émergences.

EVOLUTION DES REFLEXIONS SUR LE BASSIN D'ALIMENTATION DES SOURCES DU TOULON

Dans l'optique de la protection de la ressource, les périmètres de protection des sources du Toulon ont longtemps essayé d'être délimités par différents auteurs comme, Glangeaud (1935), Lecointre (1958), Bourguet (1966), Karpoff (1970), Schoeller (1971b), Von Stempel (1972), et plus récemment par Sourisseau (1984), Angéli (1996) et Vouvé (1997). Une dernière révision du périmètre de protection éloigné (PPE) est réalisée en 2004. Il servira de base pour les travaux présentés dans ce manuscrit.

En domaine karstique, le périmètre de protection éloigné est souvent équivalent à la zone d'alimentation d'un captage d'eau potable. Entre 1935 et 2004, plusieurs PPE (Figure 25) sont proposés par les différents auteurs, entre 27 km² (Glangeaud, 1935) et 149 km² (Von Stempel, 1972).

Aujourd'hui le PPE est estimé à 54 km². Il a été proposé à la suite des campagnes de traçages qui se sont produits dans les années 1990 et des réflexions hydrogéologiques faites par de nombreux auteurs cités précédemment.

Historiquement, les Sources du Toulon ont fait l'objet de plusieurs campagnes de traçage. Sur les 40 dernières années, 8 traçages ont été effectués en amont des Sources du Toulon (Tableau 3, Figure 25). 5 traçages ont eu des restitutions positives aux Sources du Toulon, permettant d'alimenter la réflexion d'hydrogéologues quant à la détermination du périmètre de protection éloigné. Au Sud, il est délimité par la rivière l'Isle, qui correspond au niveau de base régional. Il est délimité à l'Est et Sud-Ouest par le bassin versant topographique du vallon de Foncroze. Au Nord, le périmètre de protection éloigné s'étend au-delà de la rivière Beauronne, même si aucune relation hydraulique n'a été prouvée à ce jour entre cette rivière et les Sources du Toulon.

Tableau 3 : Synthèse des traçages artificiels réalisés en amont des Sources du Toulon depuis 1992.

Point d'injection	Date Injection	Masse injectée (kg)	Distance Toulon (km)	Temps d'arrivée au Toulon	Vitesse de l'onde colorée (m/h)
Doline Valadon	15/07/1992	1.7	0.68	Eau non ressortie au Toulon	Eau non ressortie au Toulon
Puits de Chaumezie	26/08/1992	4	2.5	14 jours	7.5
Puits Frugier (Rue combes des Dames)	15/10/1992	2.5	1.8	12 jours	6.4
Puits Foncroze	09/02/1993	4	2.7	3 jours	35
Doline Lyonnet	31/03/1995	5	7	10 jours	30
Rue Combes des Dames	01/06/1995	4	1.7	Eau non ressortie au Toulon	Eau non ressortie au Toulon
La Combe	15/08/1995	4	2.6	9 jours	17
Doline de Peyssard	17/01/2005	2	6.1	Eau non ressortie au Toulon	Eau non ressortie au Toulon

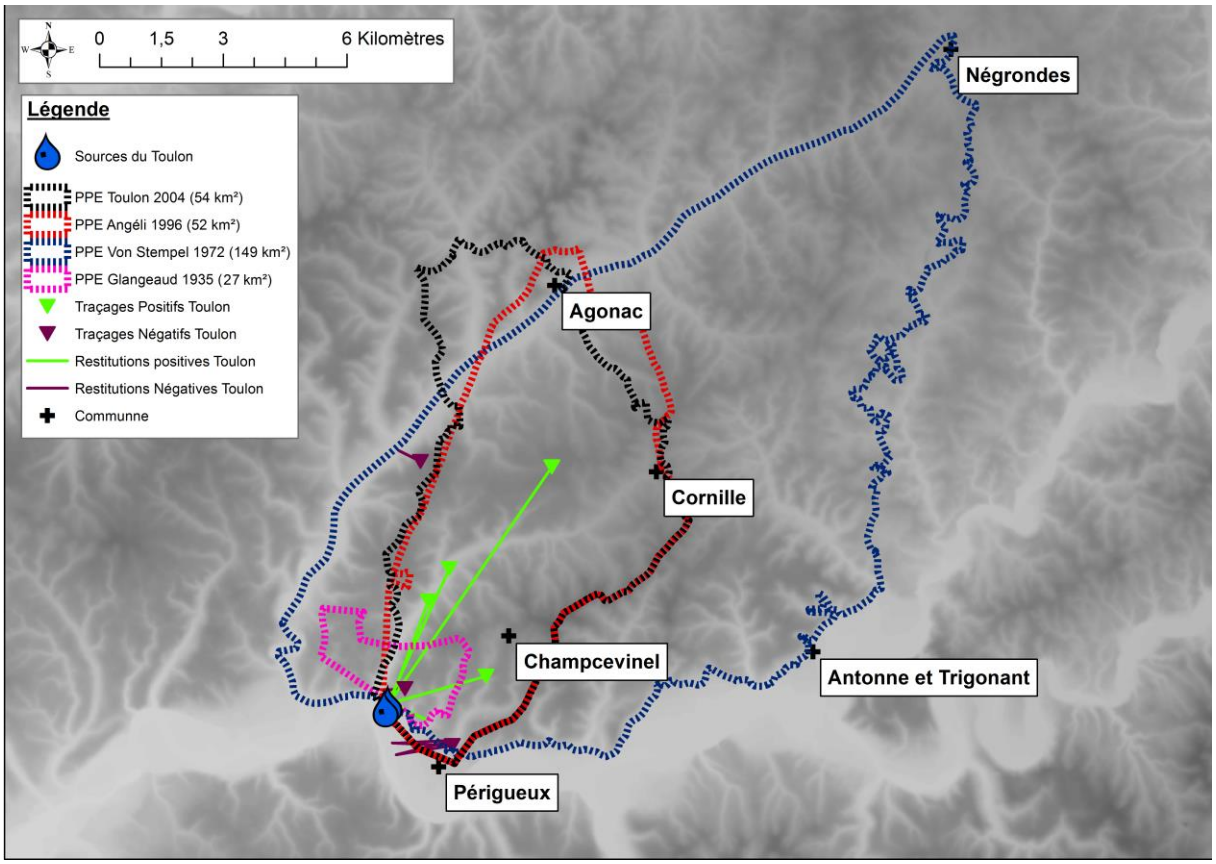


Figure 25 : Evolution des périmètres de protections éloignés (PPE) de 1935 à 2004, en lien avec les traçages hydrogéologiques réalisés entre 1980 et 2002.

Les travaux présentés dans ce manuscrit ont en partie pour objectif d'apporter des précisions sur la délimitation du bassin d'alimentation des Sources du Toulon. Cette réflexion se basera sur des nouvelles campagnes de traçage et sur la prise en compte des différents exutoires présentés dans le paragraphe précédent (0 de ce chapitre).

2.6 Résumé des principales caractéristiques hydrogéologiques de l'hydrosystème multicouche des Sources du Toulon

De ces caractéristiques géologiques, hydrogéologiques, et géomorphologiques, il est possible de résumer les Sources du Toulon par :

- **deux sources AEP d'intérêt majeur** possédant un débit moyen de 450 $L.s^{-1}$, avec des débits minimum et maximum respectivement de 230 $L.s^{-1}$ et 940 $L.s^{-1}$;
- **le grand aquifère multicouche mésozoïque Nord-Aquitain** composé des aquifères du Jurassique moyen, du Jurassique supérieur et du Crétacé supérieur ;
- **des relations hydrogéologiques complexes** possibles entre les aquifères (drainance ascendante et descendante), à l'image de certaines anomalies recensées au niveau de forages AEP de la zone d'étude ;
- **plusieurs exutoires majeurs** permettant le drainage d'une surface encore mal connue en surface ;
- **une géomorphologie typiquement karstique**, associée à une occupation du territoire rurale permettant des apports importants et variés d'azote en surface qui se marquent par une augmentation des concentrations en nitrate dans les eaux souterraines depuis les années 1960.

Les particularités régionales et locales incitent ces travaux à se pencher sur plusieurs questions majeurs d'intérêt local :

- quel(s) aquifère(s) participe(nt) à l'alimentation des Sources du Toulon ?
- quel est le rôle du Cénomanien dans le grand multicouche mésozoïque Nord aquitain ?
- pouvons-nous préciser les modalités de recharge de l'aquifère captif du jurassique supérieur ?
- pouvons-nous préciser l'impluvium des Sources du Toulon et des autres émergences de la zone d'étude ?
- quelles sont les origines des nitrates mesurés dans l'aquifère karstique du Toulon, et dans les émergences et rivières de la zone d'étude ?
- quel est le devenir de ces nitrates dans l'aquifère ?

3.Stratégie d'échantillonnage et analyses

L'objectif de ce travail est de tester une approche multi-traceurs et un suivi haute-résolution pour déterminer le fonctionnement hydrogéologique d'un hydrosystème karstique multicouche à fort enjeu local. Pour se faire, une stratégie d'étude a été mise en place sur la zone d'étude entre février 2014 et septembre 2018 (Figure 26). D'un point de vue spatial, la stratégie consiste à caractériser les masses d'eau régionales et celles plus locales. D'un point de vue temporel, la stratégie consiste au suivi des masses d'eau sur plusieurs cycles hydrologiques.

Afin de répondre à la problématique de la protection de la ressource en eau, la stratégie d'échantillonnage mise en place consiste en :

- prélever de façon récurrente les précipitations permettant la recharge de l'aquifère, pour caractériser le signal d'entrée ;
- prélever les eaux des Sources du Toulon dans différentes conditions hydrologiques (crue, décrue, étiage) pour identifier les différentes masses d'eau ;
- prélever de façon récurrente plusieurs exutoires de la zone d'étude pour identifier les différents faciès géochimiques rencontrés dans les différentes aquifères ;
- mettre en place un suivi haute résolution sur la source de l'Abîme du Toulon, pour identifier les processus de transfert dans le système karstique ;
- réaliser des campagnes de prélèvements sur l'ensemble des sources, rivières et forages de la zone d'étude, pour évaluer la qualité de l'eau dans les compartiments de surface et souterrains ;
- réaliser des campagnes de traçage multi-traceurs pour préciser le bassin d'alimentation hydrogéologique des sources du Toulon.

Le nombre de points échantillonnés ainsi que la fréquence de prélèvement ont été adaptés au cours de l'avancée des recherches et en réponse aux questions soulevées. Le Tableau 4 synthétise l'ensemble des points échantillonnés et les paramètres mesurés sur chaque point d'échantillonnage. La Figure 27 fournit leur localisation.

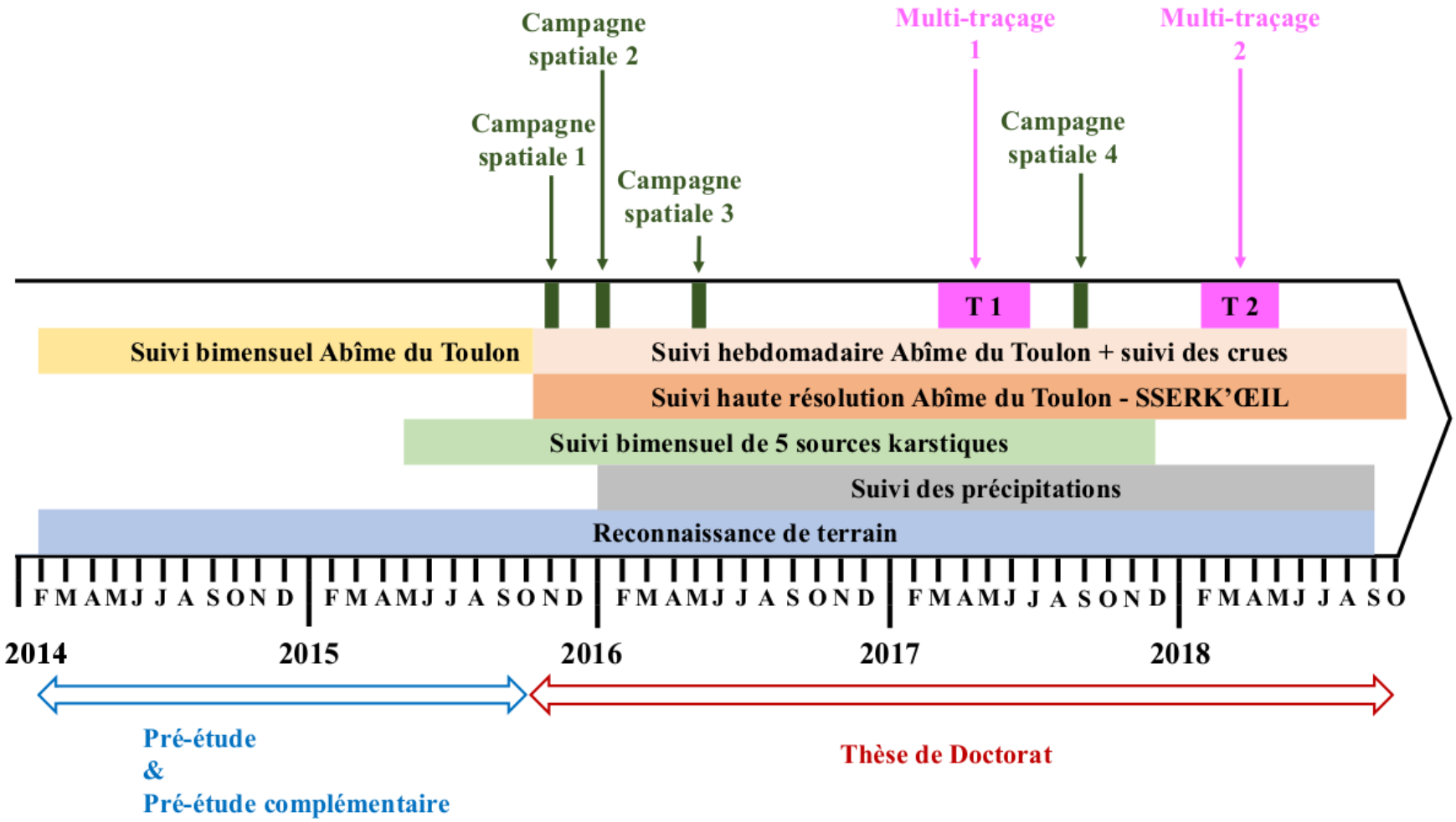


Figure 26 : Chronologie de la stratégie d'étude réalisée sur les Sources du Toulon de février 2014 à octobre 2018.

Tableau 4 : Synthèse des prélèvements réalisés dans ces travaux depuis février 2014.

Fréquence du prélèvement	Nom du point de prélèvement	Identifiant National	Type de ressource	Nombre de prélèvement effectué	X_ L93 (m)	Y_L93 (m)	Z (m NGF)	Ions majeurs	Isotopes stables	Carbone 13	Isotopes nitrate	Turbidité	Datation
	Station pluviométrique	-	Pluie	69	521 618	6 460 225	200	X	X		X		
	Source de l'Abîme du Toulon	BSS001WDGM	Source	250	519 434	6 458 099	83	X	X	X	X	X	X
	Source de Lavaure	BSS001WDGJ	Source	55	517 216	6 460 010	100	X	X	X	X	X	
Prélèvement	Fontaine du Godet	BSS001WDKN	Source	62	518 878	6 463 314	110	X	X	X	X	X	
récurrents	Source de Monzie	BSS001WDKM	Source	52	519 383	6 458 636	87	X	X	X	X	X	
	Source de la Clavelie	BSS001WDSZ	Source	61	528 395	6 458 698	98	X	X	X	X	X	
	Source du Stade COPO	BSS001WDGP	Source	20	519 267	6 457 732	86	X	X	X	X	X	
Prélèvement	Source de l'Abbaye de Chancelade	BSS001WDJP	Source	23	516 751	6 459 114	95	X			X	X	
occasionnel	Fontaine de la Roche	BSS001WDLZ	Source	15	530 364	6 472 399	177	X			X		
	Source des Bories	BSS001WDSP	Source	15	531 404	6 459 770	97	X			X		
	Fontaine de Marsaneix	BSS003RDZU	Source	1	530 059	6 460 736	110	X					
	Source du Stade CAP	BSS001WDKF	Source		519 450	6 457 219	84	X		X	X	X	
	Abîme des Piles	BSS001WDTA	Source	1	528 771	6 463 711	115	X					
	Ecoulement Cave 3	-	Source	1	516 871	6 460 057	?	X					
	Ecoulement Sanitaine 12	-	Source	1	516 905	6 460 013	?	X					
	Fontaine de Loubet	BSS001WDKQ	Source	2	520 376	6 465 033	110	X			X		
	Fontaine des Malades	BSS001XBWS	Source	5	521 325	6 455 728	90	X			X	X	
	Fontaine du Bourg d'Antonne	BSS001WDTB	Source	4	529 793	6 459 507	105	X			X		
Prélèvement	Source Bernon	-	Source	1	521 321	6 466 569	114	X					
ponctuel	Source de Fongou	BSS001WDMV	Source	5	531 756	6 472 726	175	X			X	X	
	Source de Fontamiel	BSS001WDLY	Source	4	529 356	6 471 449	165	X			X		
	Source de la Bayolle	BSS001WDKP	Source	4	520 354	6 465 016	110	X			X		
	Source de la grosse flaque	-	Source	1	524 798	6 458 493	118	X					
	Source de la Patourie	BSS001WDMA	Source	4	530 652	6 473 652	195	X			X		
	Source de la petite Sibérie	BSS001WDKR	Source	4	520 528	6 460 907	104	X				X	
	Source de la Roche Pontissac	BSS001WDLX	Source	4	525 688	6 469 294	130	X			X	X	
	Source de Lage	BSS001WDLW	Source	3	526 458	6 467 660	150	X			X		
	Source de Lasfons	BSS001VEDM	Source	1	524 688	6 476 735	121	X					
	Source de Pisse Chèvre	BSS001WDKV	Source	2	523 600	6 468 264	123	X					
	Source de Rouchou	BSS003REBY	Source	4	518 176	6 463 180	102	X			X		
	Source du Bost	-	Source	1	522 976	6 460 475	205	X					
	Source du Cluzeau du Toulon	BSS001WDGL	Source	4	519 468	6 458 247	83	X					
	Source du Lavoir de Bezan	BSS001WDKU	Source	5	523 954	6 468 675	125	X			X		
	Source privée du Toulon	-	Source	1	519 717	6 458 089	90	X					

Fréquence du prélèvement	Nom du point de prélèvement	Identifiant National	Type de ressource	Nombre de prélèvement effectué	X_ L93 (m)	Y_L93 (m)	Z (m NGF)	Ions majeurs	Isotopes stables	Carbone 13	Isotopes nitrate	Turbidité	Datation
Prélèvement ponctuel	Beauronne - Amont	-	Rivière	1	526 658	6 470 002	138	X					
	Beauronne - Agonac	-	Rivière	3	523 367	6 467 826	120	X			X		
	Beauronne - Bories des Cailloux	-	Rivière	2	521 969	6 466 892	114	X			X		
	Beauronne - Barrière	-	Rivière	1	521 386	6 466 606	113	X			X		
	Beauronne - Preyssac	-	Rivière	3	520 042	6 464 865	106	X			X	X	
	Beauronne - Château l'Evêque	-	Rivière	3	518 541	6 463 242	100	X			X		
	Beauronne - Le Cros	-	Rivière	2	518 108	6 461 939	98	X			X		
	Beauronne - Beauronne	-	Rivière	1	517 393	6 461 105	95	X			X		
	Beauronne - Reymondens	-	Rivière	1	517 240	6 459 813	89	X			X		
	Foncroze - Monzie	-	Rivière	3	519 296	6 458 588	84	X			X	X	
	Forage de Borie des Cailloux	BSS001WDKW	Forage	1	521 547	6 466 783	114	X					
	Forage de la Borie des Mounards	BSS001WDQQ	Forage	1	523 361	6 456 482	90	X					
	Forage de la Luminade	BSS001WDRH	Forage	4	526 173	6 463 391	175	X		X	X		
	Forage de la Roussie	BSS001WDSD	Forage	2	520 928	6 462 291	135	X		X	X		
	Forage de Pioriol	BSS001WDME	Forage	1	529 707	6 473 639	185	X		X			
	Forage de Trélissac - La rivière	BSS001WDRA	Forage	1	526 881	6 457 791	91	X		X			
	Forage de Leclerc - Le Toulon	BSS003RXQW	Forage	1	519 048	6 458 363	83	X		X			
	Forage Unibéton - Marsac	BSS001WDHP	Forage	1	516 832	6 457 667	80	X		X			
	Piézomètre P3P - Le Toulon	BSS001WDJD	Forage	3	519 376	6 458 123	64	X		X	X		
	Piézomètre P1P - Le Toulon	BSS001WDJC	Forage	4	519 408	6 580 970	84	X		X	X		
	Piézomètre P4 - Le Toulon	BSS001WDHY	Forage	8	519 423	6 458 113	?	X		X			
	Piézomètre P5 - Le Toulon	BSS001WDGH	Forage	3	519 422	6 458 112	?	X		X			
	Perte de Sept font	-	Perte	1	523 948	6 461 231	175	X				X	
	Perte des Maynot	-	Perte	1	527 980	6 465 198	150	X				X	

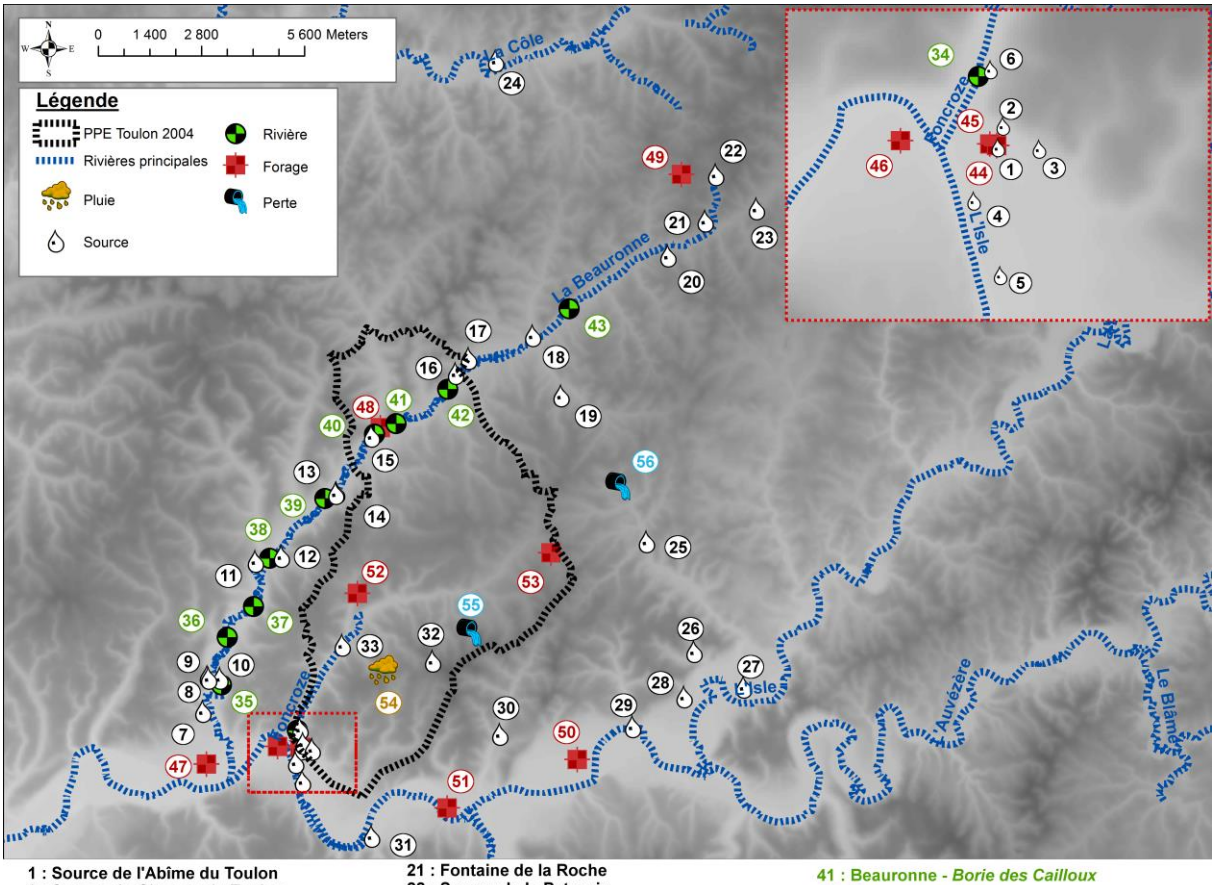


Figure 27 : Localisation de tous les points prélevés pendant l'étude sur les Sources du Toulon depuis février 2014.

3.1 Les campagnes de prélèvements

3.1.1 Caractérisation du signal d'entrée

La caractérisation quantitative du signal d'entrée est assurée par le dispositif préexistant et celui mis en place dans le cadre de cette étude (Figure 17). Le suivi qualitatif est assuré par le préleveur de pluie installé dans le bourg de Champcevinel. Les précipitations sont prélevées à un pas de temps hebdomadaire du 1er janvier 2016 au 06 septembre 2018. Un cumul des précipitations hebdomadaires est réalisé pour obtenir un signal d'entrée moyen sur la semaine. Lors de certains évènements intenses, le préleveur a permis de récolter la pluie

concernant l'évènement en particulier. De janvier 2016 à septembre 2018, 70 échantillons de pluie ont été récoltés.

Les paramètres mesurés sont les ions majeurs et les isotopes stables de la molécule d'eau ($\delta^{18}O_{-H2O}$, $\delta^{2}H_{-H2O}$). Un prélèvement a été utilisé pour mesurer les isotopes des nitrates ($\delta^{15}N_{-NO3}^{-}$, $\delta^{18}O_{-NO3}^{-}$).

3.1.2 Prélèvement sur la source de l'Abîme du Toulon et suivi haute résolution

Du 21 février 2014 au 17 septembre 2018, des prélèvements sont réalisés sur la source de l'Abîme du Toulon. Ces échantillons sont représentatifs des eaux qui transitent à l'exutoire du système karstique du Toulon dans différentes conditions hydrologiques (Figure 28). La majorité des prélèvements a été réalisée par l'Université de Bordeaux. Pendant certains évènements exceptionnels, de l'aide par les agents de SUEZ a été fournie pour le prélèvement de la source de l'Abîme du Toulon. Durant la totalité des travaux, un total de 250 échantillons a été recueilli.

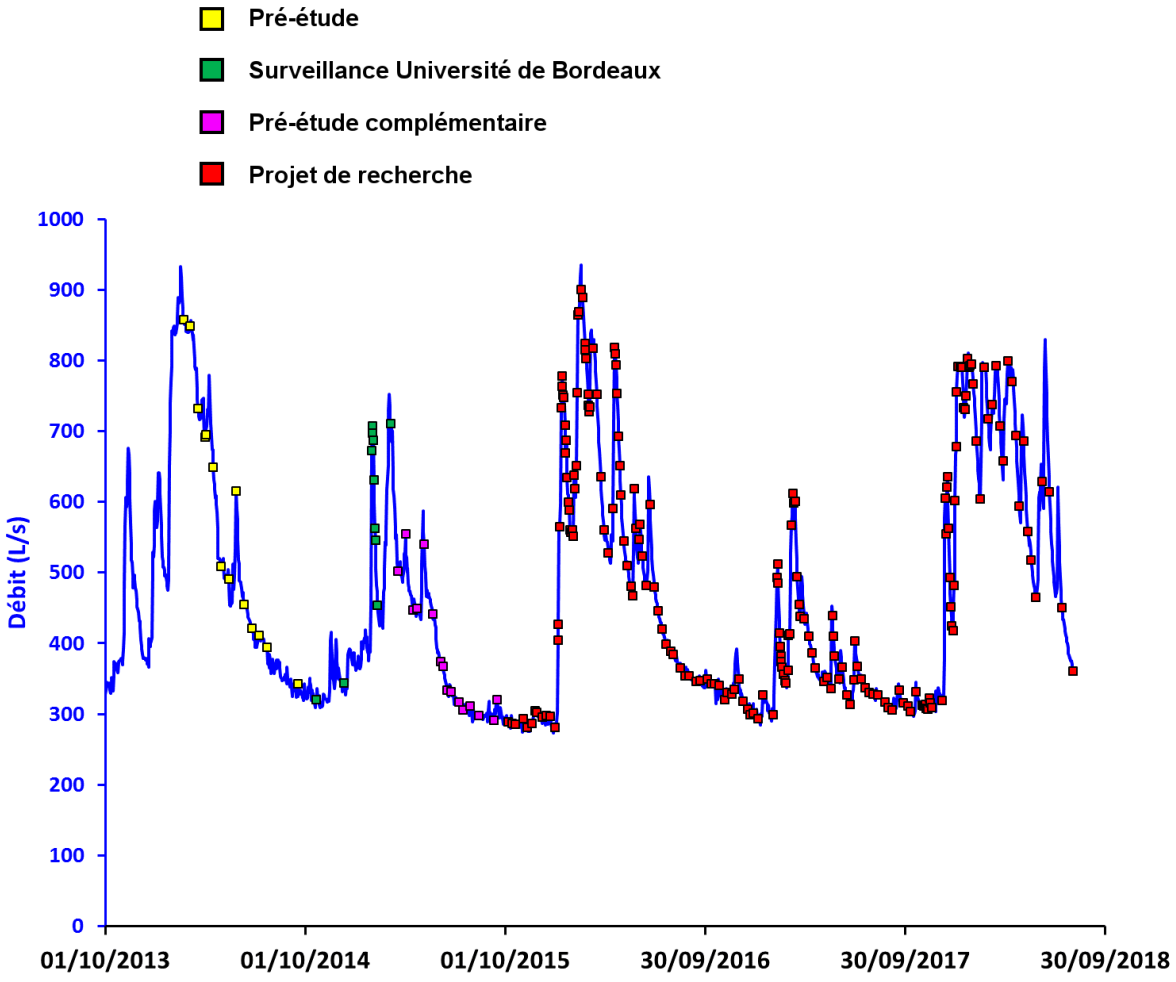


Figure 28 : Synthèse des prélèvements effectués sur la source de l'Abîme du Toulon dans les différentes conditions d'écoulement, du 1er octobre 2013 au 1er octobre 2018.

En complément des prélèvements un système de mesure en continu est installé à partir du 06/10/2015 sur la source de l'Abîme du Toulon pour le suivi haute résolution des paramètres physico-chimiques et de certains paramètres chimiques au pas de temps de 10 minutes.

3.1.3 Prélèvement bimensuel de 5 sources karstiques

Du 19 mars 2015 au 06 décembre 2017, des prélèvements bimensuels sont réalisés sur 5 sources karstiques. Ces points d'échantillonnages sont choisis selon leur contexte géologique et les masses d'eau qu'ils caractérisent. Les prélèvements sont réalisés pour obtenir une chimie complète des eaux prélevées.

La source du stade COPO (5 sur la Figure 27) est caractéristique des sources chaudes qui émergent à proximité des Sources du Toulon. La température élevée mesurée (20.1 °C) et la stabilité des paramètres géochimiques mesurés témoignent de la profondeur et du confinement de l'aquifère qui l'alimente. Elle est caractéristique des eaux provenant de l'aquifère profond du Jurassique. Aucune mesure de débit n'est possible actuellement. Un total de 20 échantillons a été prélevé sur la source du stade COPO.

La source de Lavaure (10 sur la Figure 27) est une source épikarstique qui émerge dans les calcaires du Turonien supérieur. Le débit de cette source peut varier entre 0.5 $L.s^{-1}$ à plus de 30 $L.s^{-1}$. Son bassin d'alimentation est composé principalement de karst affleurement (lapiaz) et de forêt. Elle est caractéristique d'une nappe épikarstique largement ouvert sur l'atmosphère. Un total de 55 échantillons a été prélevé sur la source de Lavaure.

La source de Monzie (6 sur la Figure 27) est une source épikarstique qui émerge dans les calcaires du Coniacien. Le débit de cette source peut varier entre 0.1 $L.s^{-1}$ à plus de 10 $L.s^{-1}$ lors de forts évènements pluvieux. Son bassin d'alimentation est composé principalement de forêts denses. Elle est caractéristique d'une nappe épikarstique peu ouvert sur l'atmosphère. Un total de 52 échantillons a été prélevé sur la source de Monzie.

La Fontaine du Godet (12 sur la Figure 27) est une source qui émerge dans les calcaires du Santonien supérieur. Les variations hydrodynamiques de cette source peuvent être très violentes passant de 0.1 $L.s^{-1}$ à plus de 50 $L.s^{-1}$ en quelques heures. La présence d'eau constamment sous-saturée à cet exutoire en fait un point d'intérêt majeur pour l'étude des équilibres calco-carboniques dans les environnements karstiques. Un total de 62 échantillons a été prélevé sur la Fontaine du Godet.

La source de la Clavelie (29 sur la Figure 27) émerge dans les calcaires du Santonien supérieur, mais est caractéristique des eaux transitant dans l'aquifère multicouche du Crétacé supérieur (Turonien, Coniacien, Santonien). Aucune mesure de débit n'est possible actuellement, mais les débits d'étiage et de crue peuvent être estimés respectivement à 20 $L.s^{-1}$ et environ 300 $L.s^{-1}$. Un total de 61 échantillons a été prélevé sur la source de la Clavelie.

3.1.4 Les campagnes spatiales de prélèvement

4 campagnes spatiales de prélèvements sont réalisées pour : (i) identifier les faciès des masses d'eau régionales et locales, (ii) caractériser la qualité des eaux des compartiments de surface et souterrain. Les prélèvements ont porté principalement sur les sources karstiques, les rivières et les forages de la zone d'étude (Tableau 4). Des prélèvements sont réalisés sur un total de 55 points de prélèvement (Figure 27), dont :

- 33 sources karstiques ;
- 10 forages ;
- 2 pertes karstiques ;
- 10 points en rivières (9 sur la rivière Beauronne, 1 sur la rivière Foncroze).

Dans le cadre de la caractérisation des origines des nitrates, des prélèvements complémentaires ont été réalisés sur des sols, des rejets d'eaux usées et des fertilisants. Les détails portant sur cette spécificité sont fournis dans le Chapitre 5.

3.1.5 Les campagnes de traçage hydrogéologique

Deux campagnes de traçage hydrogéologique ont été effectuées pendant ces travaux. La première a été réalisée de mars à juillet 2017 (période sèche) et a permis l'injection de colorant dans 3 points d'injection. La deuxième campagne a été réalisée de février à mai 2018 (période humide) et a permis l'injection de colorant dans 3 points supplémentaires. Les colorants utilisés sont des traceurs fluorescents : (i) la fluorescéine sodique, (ii) la sulforhodamine B.

Les résultats de ces campagnes sont détaillés dans le Chapitre 3.

3.2 Les prélèvements et protocole analytique

3.2.1 Les prélèvements

Tous les échantillons sont prélevés et conditionnés suivant le même protocole de façon à minimiser les erreurs dues au prélèvement. Différentes sortes d'échantillons, de composition et de volume différents sont utilisés afin de : (i) optimiser le temps de prélèvement sur le terrain, (ii) conserver la qualité de l'échantillon lors du conditionnement. Un protocole détaillé du prélèvement et des mesures physico-chimique est fourni en Annexe 3 : Mode opératoire pour les prélèvements des eaux sur le terrain.

3.2.2 Les mesures *in situ*

Sur le terrain, la température, le pH, la conductivité électrique et l'oxygène dissous sont mesurés à l'aide d'un multiparamètre WTW 3430 et ses capteurs associés.

Le pH de l'eau est mesuré avec une sonde sentix 940. Le capteur est étalonné en 3 points étalons (4.01, 7.00, 10.00) le matin avant chaque mission à une température de 25°C. La précision de la mesure est estimée à ± 0.05.

La conductivité électrique est mesurée avec une sonde tetracon 950. Le capteur subi un contrôle de la qualité de la mesure avant chaque mission. Il est calibré avec une solution étalon à 1 413 µS.cm^{-1} si nécessaire. La précision est estimée à ± 1 µS.cm^{-1}.

La température est toujours mesurée avec la sonde de conductivité pour des soucis de répétitivité des valeurs. Aucun étalonnage n'est nécessaire pour ce paramètre. La précision est estimée à ± 0.1 °C.

La concentration en oxygène dissous est mesurée avec une sonde FDO 925. Le capteur subi un contrôle de la qualité de la mesure avant chaque mission. Il est calibré si nécessaire en saturant le capteur en oxygène. La précision est estimée à ± 0.1 mg.L^{-1}.

3.2.3 Les analyses sur les éléments dissous

Les cations (Ca^{2+}, Mg^{2+}, Na^{+}, K^{+}) sont mesurés au laboratoire I2M de l'Université de Bordeaux par chromatographie ionique avec un Dionex ICS 1 100. La précision est estimée à environ 2 % à partir des tests de répétitivité réalisés sur les échantillons de la source de l'Abîme du Toulon au début de nos travaux.

Les anions (Cl^{-}, F^{-}, SO_4^{2-}) sont mesurés au laboratoire I2M de l'Université de Bordeaux par chromatographie ionique avec un Dionex ICS 1 500. La précision est estimée à environ 2 % à partir des tests de répétitivité réalisés sur les échantillons de la source de l'Abîme du Toulon au début de nos travaux.

La silice dissoute (SiO_2) est mesurée par colorimétrie au laboratoire I2M de l'Université de Bordeaux à l'aide d'un spetrophotomètre UV-visible (Orion AquaMate 8000, Thermo Scientific). Le protocole utilisé est celui de Strickland et Parsons (1972) par réaction avec l'heptamolybdate d'ammonium.

Les nitrites (NO_2^{-}) sont déterminés par colorimétrie au laboratoire I2M de l'Université de Bordeaux à l'aide d'un spetrophotomètre UV-visible. Le protocole utilisé est celui de Strickland et Parsons (1972) par réaction avec la sulfanilamide en milieu acide.

La mesure de l'**ion nitrate** (NO_3^{-}) est indirecte : le NO_3^{-} est concerti en NO_2^{-} grâce à la présence de chlorure de vanadium dans le réactif, puis la somme de NO2- (celui présent initialement dans l'échantillon et celui formé par réduction des NO_3^{-}) par réaction colorimétrique avec le sulfanilamide (Schnetger et Lehners, 2014). C'est donc la somme NO_3^{-}+ NO_2^{-} qui est mesurée. La quantité de nitrate est ensuite obtenue en soustrayant la quantité de NO_3^{-} + NO_2^{-} à celle de NO_2^{-}. Le pourcentage d'erreur est également inférieur à 5 %.

L'ammonium (NH_4^{+}) est mesuré par colorimétrie au laboratoire I2M de l'Université de Bordeaux à l'aide d'un spectrophotomètre à balayage UV-visible. Le protocole utilisé est celui de Koroleff (1970) par réaction avec l'acide dichlorocyanurique, le phénol et le nitroprussiate. Le pourcentage d'erreur est estimé à 8 %.

Le carbone organique dissous (COD) est mesuré au laboratoire EPOC de l'Université de Bordeaux à l'aide d'un analyseur Shimadzu TOC 5000A. La méthode utilisée est celle de l'oxydation thermique à 680 °C. La totalité du COD présent dans l'échantillon est « brulé ». Les résidus de combustion et de dégradation sont transformés en CO_2. Ce CO_2 est quantifié par détection infrarouge.

Le carbone 14 (^{14}C) est mesuré au laboratoire Beta Analytic par spectrométrie de masse par accélérateur. La spectrométrie de masse par accélérateur compte le nombre d'atomes de carbone 14 présents dans l'échantillon. Les échantillons sont préalablement convertis en graphite avant la datation.

La composition isotopique des isotopes des nitrates ($\delta^{15}N_{-NO3-}$, $\delta^{18}O_{-NO3-}$) est analysée au laboratoire Bioemco de Sorbonne Université selon la méthode « azide » de dénitrification chimique modifié de McAlvin et Altabet (2005) sur un spectromètre de masse de rapport isotopique (DeltaVplus, Thermo Scientific) couplé à un gaz bench (thermofinnigan Gas bench II). La précision de la mesure est de 0.5 ‰ pour le $\delta^{15}N$ et de 1 ‰ pour le $\delta^{18}O$.

3.2.4 Les analyses des éléments particulaires

La concentration en matière en suspension (MES) est mesurée au laboratoire I2M de l'Université de Bordeaux. Afin de déterminer la concentration en MES, un volume connu d'échantillon (entre 1 et 20 litres) est filtré. Le filtre utilisé est un filtre GF/F de 47 mm de diamètre et de porosité 0.70 µm. Le filtre est pesé à sec avant et après filtration. La différence de poids correspond à la quantité de particules récupérée sur le filtre. Le séchage du filtre est réalisé pendant 1h à 60 °C à l'étuve, comme préconisé par la norme française NF EN 872. Le pourcentage d'erreur de cette méthode est estimé à 5 %.

La distribution de taille des particules (PSD) est mesurée au laboratoire M2C de l'Université de Rouen à l'aide d'un granulomètre laser Beckman Coulter LS 13 320. Environ 200 mL d'échantillon est agité par ultrason et passe dans une lentille située dans le granulomètre. Deux rayons lasers sont utilisés, et leur diffraction est mesurée par des capteurs. L'intensité du rayonnement diffracté et l'angle de diffraction sont fonction de la taille des particules. Plus la particule est petite plus l'angle de diffraction est grand. Trois mesures consécutives sont réalisées pour plus de précision sur l'analyse. Le logiciel compile les données et fournit des fichiers sur chaque analyse, ainsi qu'un fichier correspondant à la moyenne des mesures. L'appareil mesure par défaut en pourcentage de volume total de particules.

L'observation et la minéralogie des particules sont réalisés au microscope électronique à balayage au laboratoire M2C de l'Université de Rouen.

3.2.5 Les analyses des éléments bactériens

Les analyses de bactériologie ont été menées au Laboratoire Départemental et de Recherche de la Dordogne (LDAR24).

La mesure des quantités en Escherichia coli (E. Coli) est réalisée à partir de la méthode NF EN ISO 9308-1. Les valeurs sont fournies en UCF/100 mL.

La mesure des quantités en Coliformes totaux est réalisée à partir de la méthode NF EN ISO 9308-1. Les valeurs sont fournies en UCF/100 mL.

La mesure des quantités en Entérocoques est réalisée à partir de la méthode NF EN ISO 7899-2. Les valeurs sont fournies en UCF/100 mL.

CHAPITRE 3
LE FONCTIONNEMENT HYDROGEOLOGIQUE DES SOURCES DU TOULON PAR APPROCHE HYDRODYNAMIQUE ET HYDROCHIMIQUE

Depuis plusieurs décennies, l'analyse du fonctionnement des systèmes karstiques est généralement menée en utilisant plusieurs approches : chimie classique, chimie isotopique, hydrodynamique, géologie structurale et géomorphologie. Les réponses hydrochimiques et hydrodynamiques mesurées à l'exutoire des systèmes karstiques dépendent des conditions d'écoulement dans l'aquifère. L'utilisation jointe des méthodes hydrodynamiques et hydrochimiques dans le cadre d'une approche multidisciplinaire fournit une caractérisation fiable du fonctionnement hydrogéologique des aquifères karstiques (Lastennet et Mudry, 1997 ; Grasso et *al.*, 2003 ; Perrin et *al.*, 2003a ; Birk et *al.*, 2004 ; Bicalho et *al.*, 2012 ; Minvielle et *al.*, 2015 ; Brkić et *al.*, 2018 ; Filippini et *al.*, 2018).

Des études précédentes (Lastennet, 1994 ; Lastennet and Mudry, 1997, Raeisi and Karami, 1997 ; Emblanch et *al.*, 1998, 2003 ; Batiot et *al.*, 2003a., 2003b ; Doctor et *al.*, 2000 ; Mudarra et Andreo, 2011 ; Nicolini et *al.*, 2016) se sont focalisées sur l'utilisation de traceurs en particulier, tels que le carbone organique dissous (COD), l'ion nitrate (NO_3^-), ou le magnésium (Mg^{2+}), pour améliorer les connaissances sur le fonctionnement hydrogéologique des systèmes karstiques.

L'histoire géologique en bordure dans les bassins sédimentaires peut mener à la formation d'aquifères multicouches. L'enfoncement progressif des couches géologiques vers le centre du bassin subsident engendre le passage d'écoulements libres à captif pour certaines nappes. La succession des cycles transgression-régression implique plusieurs phases de karstification, engendrant dans certains cas des relations hydrogéologiques complexes entre les nappes libres et captives. Dans certains cas, une source karstique peut servir d'exutoire à ces nappes superposées, causant des réponses hydrodynamiques et hydrogéologiques complexes et une difficulté de délimitation du bassin d'alimentation du système karstique. Peu de travaux étudient le fonctionnement hydrogéologique de sources karstiques alimentées par plusieurs aquifères (Bicalho et *al.*, 2012 ; Mahler et Bourgeais, 2013).

Les Sources du Toulon offrent l'opportunité de faire progresser les connaissances sur le fonctionnement hydrogéologique des aquifères karstiques multiréservoirs à partir de l'acquisition des paramètres hydrodynamiques et hydrochimiques. Les travaux précédents de Von Stempel (1972) et Lastennet et *al.*, (2004) ont servi de base aux travaux présentés dans ce manuscrit mais ont laissé plusieurs interrogations sur le fonctionnement hydrogéologique et les origines des eaux du système karstique du Toulon.

Ce chapitre est dédié à la proposition d'une réflexion innovante pour la caractérisation du fonctionnement hydrogéologique des sources karstiques alimentés par plusieurs aquifères superposés. Il reprend en partie les résultats de l'article publié dans *Journal of Hydrology* (Lorette et *al.*, 2018a), et intitulé « Groundwater-flow characterization of a multilayered karst aquifer on the edge of a sedimentary basin in western France ».

Les objectifs de ce chapitre sont de : (i) caractériser le signal d'entrée dans l'aquifère d'un point de vue quantitatif et qualitatif, et de le comparer avec le signal de sortie du système ; (ii) identifier les différents aquifères participant à l'alimentation des Sources du Toulon ; (ii) proposer une réflexion novatrice pour la délimitation du bassin d'alimentation des sources karstiques à alimentation multiréservoirs.

Dans un premier temps, un focus sera réalisé sur le signal d'entrée (quantitatif et qualitatif) en lien avec le signal de sortie pour estimer un premier bilan hydrologique. Par la suite, le suivi géochimique des Sources du Toulon et des autres émergences du secteur d'étude permettra de les replacer dans un cadre régional afin d'identifier les aquifères participant à leur alimentation. Un schéma conceptuel de fonctionnement hydrogéologique sera proposé. Enfin, la dernière partie de ce chapitre proposera une réflexion sur la notion de bassin d'alimentation, et de leur délimitation dans un contexte d'aquifères multicouche.

1.Caractérisation quantitative et qualitative du signal d'entrée dans l'aquifère

Le Chapitre 2 de ce manuscrit a présenté les conditions météorologiques des années étudiées pendant ces travaux. La première partie de ce Chapitre vise à caractériser de façon quantitative et qualitative le signal d'entrée dans l'aquifère. Pour cela, après une brève présentation des données utilisées, une estimation des hauteurs d'eau infiltrées dans l'aquifère sera proposée. Ces hauteurs d'eau serviront à alimenter un bilan hydrologique pour une première estimation de la superficie potentielle du bassin d'alimentation des Sources du Toulon.

1.1 Evaluation du signal d'entrée

1.1.1 Présentation des données utilisées

Les données utilisées pour caractériser le signal d'entrée couvrent des données quantitatives et qualitatives. Depuis 2007, les données quantitatives (pluie et température de l'air) sont celles de la station météorologique d'Antonne appartenant à la Chambre d'Agriculture de la Dordogne (CA_24). A partir de janvier 2016, et l'installation d'une station météorologique complète, les données utilisées proviennent de la station du Lyonnet (Figure 17 du Chapitre 2).

Les données qualitatives des précipitations ont été récoltées par un préleveur automatique de pluies localisé au niveau des ateliers de Champcevinel (Figure 17 du Chapitre 2).

1.1.2 Estimation de l'infiltration de 2007 à 2018

ESTIMATION DE L'EVAPOTRANSPIRATION POTENTIELLE ET DE L'INFILTRATION EFFICACE

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 : (i) l'évaporation de l'eau du sol d'une part, (ii) la transpiration des végétaux d'autre part (Allen *et al.*, 1998). Ce phénomène se traduit par la transformation de l'eau liquide en vapeur d'eau et joue un rôle majeur dans le cycle de l'eau, à l'échelle de la planète comme à celle des bassins versants (62 % des eaux précipitées sont en moyenne évaporées en Europe d'après Musy et Higy, 2004). La quantité d'eau disponible pour la recharge des nappes peut être largement réduite par le phénomène d'évapotranspiration, donnant une importance essentielle à l'estimation la plus précise 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. Cependant, la détermination de sa valeur réelle, appelée évapotranspiration réelle (ETR), demeure complexe tant le nombre de variables relatives à la demande biologique en eau, au stade de croissance végétatif, au climat, à la teneur en eau du sol est important. Pour pallier cet inconvénient, la notion d'évapotranspiration potentielle

(ETP) a été introduite par Thornthwaite (1948). Elle correspond à la quantité d'eau qui pourrait être évapotranspirée pour une quantité et une disponibilité illimitée de l'eau dans le sol.

De nombreuses méthodes d'estimation de l'ETP sont données dans la bibliographie. La difficulté majeure de nos données est que nous ne possédons que des données de température pour les années 2007-2016. Les équations classiques comme Penman-Monteith ne peuvent pas s'appliquer. Pour pallier à ce problème, l'équation proposée par Oudin et *al.*, (2005) est choisie. Cette équation possède l'avantage majeur de pouvoir estimer l'ETP uniquement avec les données de température de l'air. Ces auteurs ont constaté que la température était l'une des seules variables mesurées *in situ* à avoir un poids significatif dans les équations de calcul de l'ETP. Ils ont ainsi pris le parti d'exprimer l'ETP qu'à partir de cette variable (Equation 1).

$$ETP = \frac{R_e.(T_a+K_2)}{\lambda\rho.K_1)}, \quad \text{si } T_a + K_2 > 0$$

(Equation 1)

$$ETP = 0, \quad \text{sinon}$$

Avec R_e le rayonnement extraterrestre ($MJ.m^{-2}.j^{-1}$) ne dépendant que de la latitude et du jour Julien, λ le flux de chaleur latente ($MJ.kg^{-1}$), ρ la masse volumique de l'eau ($kg.L^{-1}$), T_a la température moyenne journalière de l'air (°C), et K_1 et K_2 des facteurs à calibrer pour chaque site.

Les paramètres K_1 et K_2 sont calibrés sur les années 2016 et 2018, en utilisant comme référence l'ETP determinée par la formule de Penman-Monteith. La chronique d'ETP de 2007 à 2018 au pas de temps journalier, selon la formule de Oudin et *al.*, (2005), est fournie en Figure 29A. Le comparatif avec les données d'ETP selon la formule de Penman-Monteith, pour la période 2016-2018, est fourni en Figure 29B. Les plus fortes valeurs d'ETP sont estimées pendant l'été et les valeurs les plus faibles sont estimées en hiver.

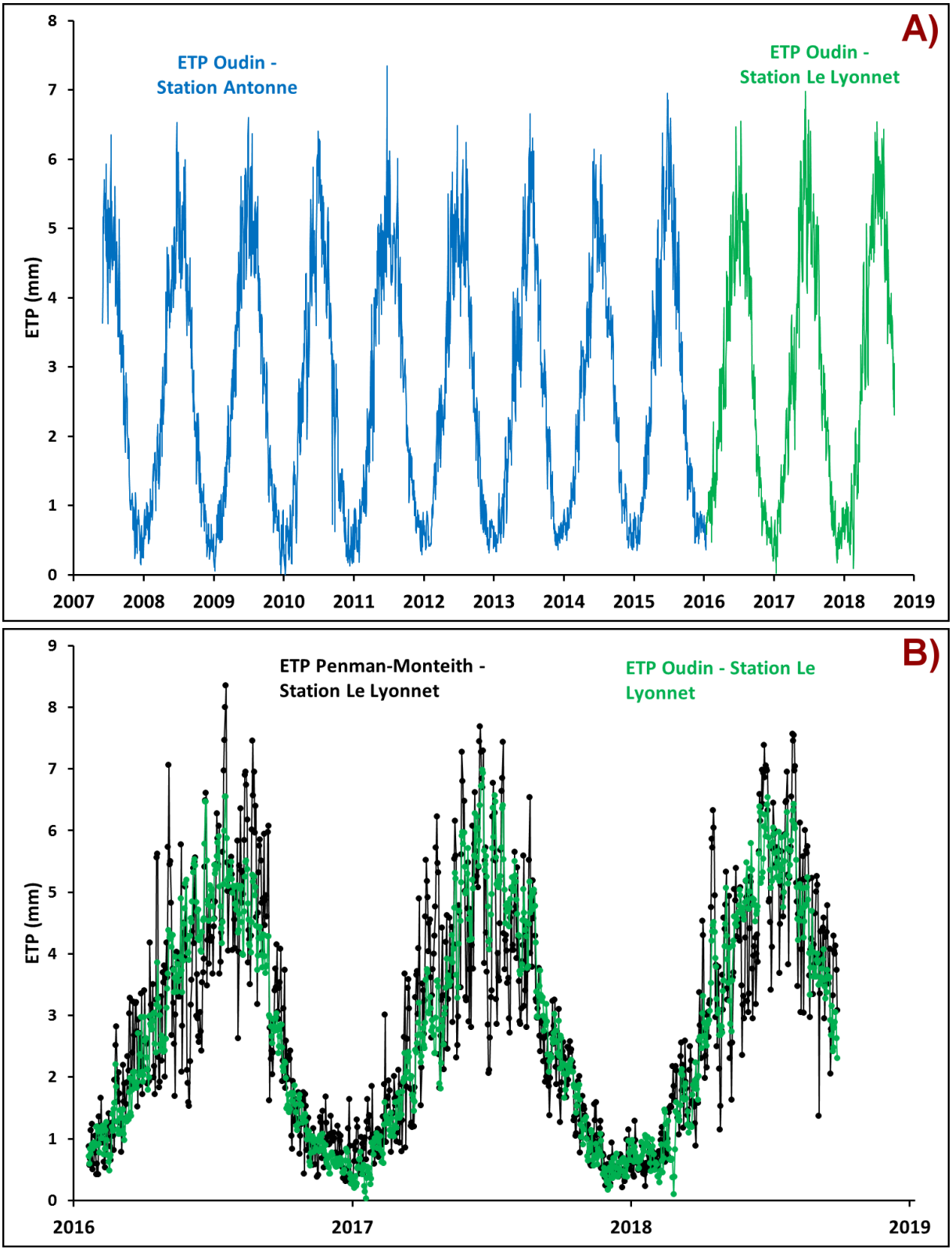


Figure 29 : A) Chronique d'évapotranspiration potentielle estimée entre 2007 et 2018 à partir de la formule de Oudin et *al.*, (2005) appliquée sur les données des stations météorologiques d'Antone-et-Trigonant et du Lyonnet. B) Comparaison des valeurs d'ETP estimée du 21/01/2016 au 30/09/2018 à partir des formules de Penman-Monteith et d'Oudin et *al.*, (2005) appliquée sur les données de la station météorologique du Lyonnet.

L'infiltration efficace, est la part d'eau précipitée qui sera disponible pour participer à la recharge des nappes. Une quantification potentielle de cette infiltration efficace est essentielle pour évaluer la recharge des nappes.

Cette quantification peut passer par l'utilisation d'un modèle de bilan hydrique du sol, appelé « Soil Water Balance » (SWB), prenant en compte les hauteurs de pluie (P, en mm), l'évapotranspiration potentielle (ETP, en mm), ainsi que la hauteur d'eau retenue dans le sol (H_{sol_max}, en mm). Ce modèle est similaire à ceux utilisés dans les fonctions de production des modèles réservoirs (Fleury et *al.*, 2007). Ce réservoir permettant l'estimation de l'infiltration efficace, est un réservoir de débordement : en dessous d'un certain seuil (H_{sol_max}, en mm), les eaux infiltrées ne participent pas à la recharge de la nappe. La quantité d'eau dans le sol va cependant varier en raison de l'ETP. Au-dessus d'un certain seuil (H_{sol_max}, en mm), les quantités d'eau « débordant » de ce réservoir participent à la recharge. H_{sol_max} correspond dans ce modèle à la réserve facilement utilisable (RFU) maximale.

Les équations mises en jeu sont les suivantes (Equations 2 et 3):

$$H_sol\ (t)=\max\ [0;H_{sol\ (t-1)}+P_{(t-1)}-ETP_{(t-1)}-R_{(t-1)}$$ Equation 2

Avec :

$$R(t)=\max[0;H_{sol(t)}-Hs_{ol_max}]$$ Equation 3

Avec R (en mm) l'eau s'écoulant du réservoir sol pour participer à la recharge et le temps généralement exprimé en jour.

Les équations 2 et 3 sont appliquées sur l'ensemble des données disponibles sur une période s'étalant du 01/10/2007 au 30/09/2018. Ces équations permettent d'estimer une hauteur d'eau participant à la recharge sur chaque cycle hydrologique (Tableau 5). Une hauteur maximale de 90 mm a été retenue afin de prendre en compte la faible épaisseur des sols sur les formations calcaires et les formations moins perméables présentes sur le bassin. Cette valeur a été choisie en accord avec les résultats de Minvielle (2015) qui, lors de ses tests de modélisation réservoirs sur l'émergence du site de Lascaux, a retenu cette valeur de hauteur maximale pour être représentative du contexte hydrogéologique. Le recouvrement superficiel du site de Lascaux est considéré comme représentatif des formations de recouvrement du département de la Dordogne, avec des parties superficielles ou sub-profondes altérées, surmontées de formation de recouvrement de type altérite, parfois d'argiles à chailles (silex), et de sols boisés.

L'application des équations mises en jeu conduit à des hauteurs de recharge constrastées suivant les cycles hydrologiques. Ces hauteurs varient entre 71.42 mm pour le cycle 2016-2017 et 360.55 mm pour le cycle 2013-2014. L'estimation de la recharge annuelle permet de calculer le pourcentage de pluie brute qui participe à la recharge. En fonction des cycles hydrologiques plus ou moins pluvieux, c'est entre 10.82 % et 37.10 % de la pluie brute qui peut participer à la recharge du système karstique du Toulon.

Tableau 5 : A) Synthèse des paramètres climatiques permettant l'estimation de la recharge du système karstique du Toulon à partir d'une approche de bilan hydrique du sol. B) Statistique descriptive des paramètres mesurés (Pluie annuelle) et estimés (ETP annuelle, recharge annuelle, part de recharge) à partir d'une approche de bilan hydrique.

A)

Cycle hydrologique	Pluie annuelle (mm)	ETP annuelle (mm)	Recharge annuelle (mm)	Part recharge (%)
2007-2008	813.20	924.18	156.82	19.28
2008-2009	824.20	950.61	174.29	21.15
2009-2010	764.30	933.48	255.37	33.41
2010-2011	497.10	963.81	84.01	16.90
2011-2012	716.80	949.81	159.43	22.24
2012-2013	923.20	923.28	240.48	26.05
2013-2014	971.90	950.82	360.55	37.10
2014-2015	612.20	990.68	134.57	21.98
2015-2016	682.60	968.24	197.72	28.97
2016-2017	659.80	975.38	71.42	10.82
2017-2018	892.20	997.23	329.07	36.88

B)

Cycle hydrologique	Pluie annuelle (mm)	ETP annuelle (mm)	Recharge annuelle (mm)	Part recharge (%)
moyenne	759.77	957.05	196.70	24.98
ecart type	143.12	24.82	92.45	8.40
coeff variation (%)	18.84	2.59	47.00	33.63

CARACTERISATION QUALITATIVE DU SIGNAL D'ENTREE PAR LA CHIMIE CLASSIQUE ET LA CHIMIE ISOTOPIQUE

Depuis janvier 2016, les pluies sont prélevées sur le site des ateliers municipaux par un préleveur automatique de pluie. Un cumul des précipitations hebdomadaires est réalisé pour obtenir un signal d'entrée moyen sur la semaine. Les pluies de faible hauteur (H < 2 mm) ont été éliminées de l'analyse, afin de ne pas prendre en compte les échantillons ayant subi une reconcentration liée à l'évaporation pouvant se produire entre l'évènement de précipitation et le moment de l'échantillonnage.

Les résultats des analyses des ions majeurs sont présentés en Figure 30. Les statistiques décrivant ces différents éléments chimiques sont présentés dans le Tableau 6.

Les eaux recueillies présentent des concentrations moyennes en éléments majeurs faibles montrant un faible impact de pollutions atmosphériques d'origine anthropique. Les teneurs en éléments majeurs peuvent néanmoins montrer des valeurs importantes sur certains épisodes pluvieux.

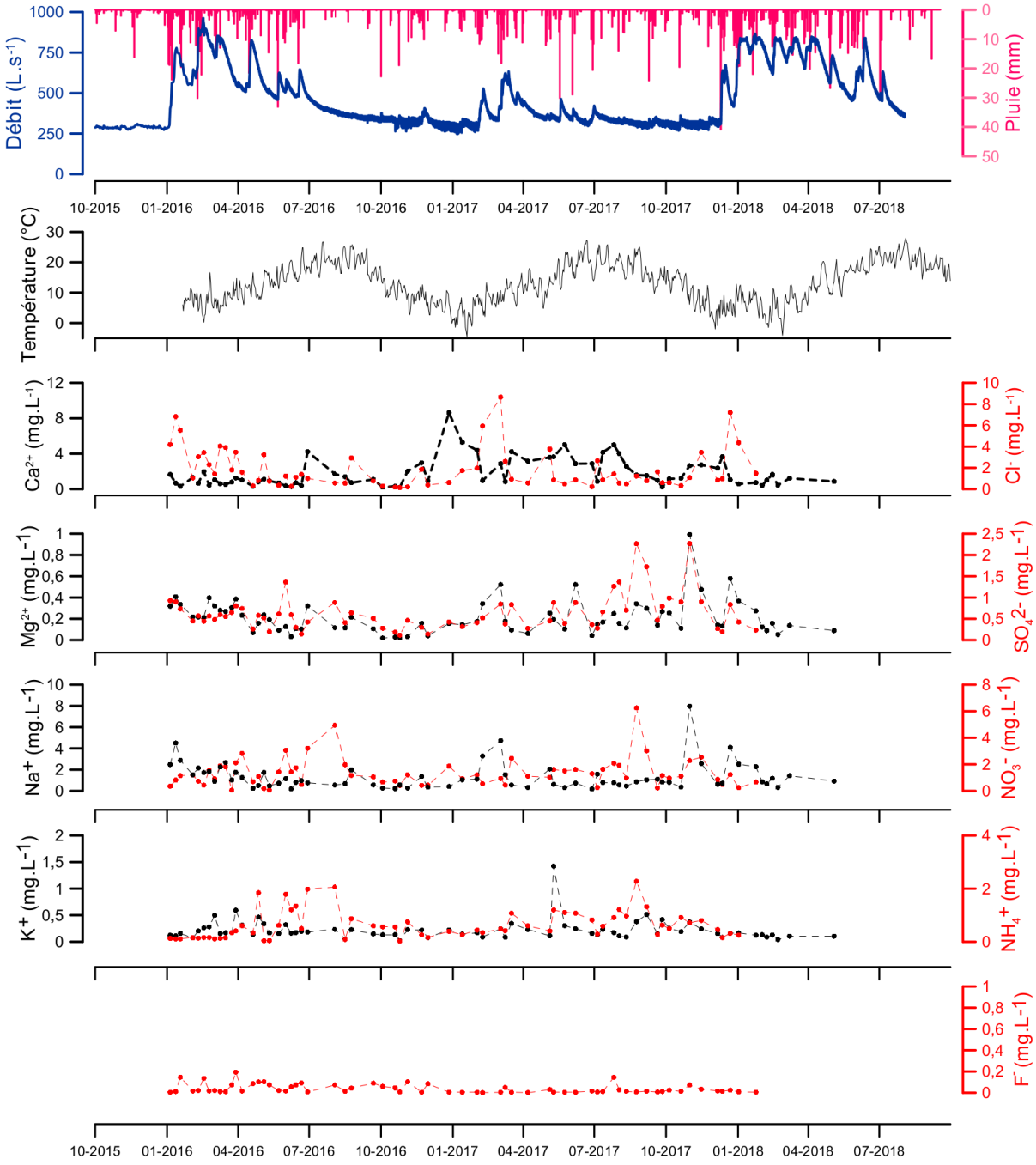


Figure 30 : Evolution des éléments majeurs mesurés dans les retombés humides prélevées sur le site des ateliers municipaux de Champcevinel de janvier 2016 à septembre 2018. Les évolutions des pluies, du débit des Sources du Toulon, et des températures de l'air sont aussi présentées.

Tableau 6 : Statistique descriptive des éléments majeurs mesurés dans les retombées humides prélevées sur le site des ateliers municipaux de Champcevinel de janvier 2016 à septembre 2018. n correspond au nombre de valeur. La moyenne calculée est la moyenne pondérée par le cumul de précipitation échantillonné.

		Ca^{2+} ($mg.L^{-1}$)	Mg^{2+} ($mg.L^{-1}$)	Na^{+} ($mg.L^{-1}$)	K^{+} ($mg.L^{-1}$)	F^{-} ($mg.L^{-1}$)	Cl^{-} ($mg.L^{-1}$)	SO_4^{2-} ($mg.L^{-1}$)	NO_3^{-} ($mg.L^{-1}$)	NH_4^{+} ($mg.L^{-1}$)
Pluie Champcevinel	n	58	58	58	58	52	52	52	52	52
	Moyenne pond.	1.12	0.16	1.25	0.12	0.02	1.64	0.31	0.52	0.22
	Min	0.21	0.02	0.18	0.02	0.00	0.14	0.12	0.06	0.02
	Max	8.62	0.99	7.98	1.42	0.19	8.66	2.27	6.25	2.28
	σ	1.61	0.16	1.29	0.19	0.04	1.88	0.44	1.09	0.54
	CV (%)	142.89	97.20	102.75	153.53	221.86	114.62	139.94	207.33	243.14

Parallèlement, les isotopes stables de la molécule d'eau ($\delta^{18}O_{-H2O}$, $\delta^{2}H_{-H2O}$) sont analysés. L'évolution des compositions isotopiques ainsi que celle de l'excès en deutérium sont présentées en Figure 31. Les statistiques descriptives de ces paramètres sont fournies dans le Tableau 7.

L'excès en deutérium marque l'origine locale des pluies par évaporation des eaux lors d'un excès en deutérium supérieur à 10. Ce paramètre est calculé à partir de l'équation 4.

$$Excès\ ^{2}H\ (‰) = \delta^{2}H - 8.\delta^{18}O \qquad \text{Equation 4}$$

.

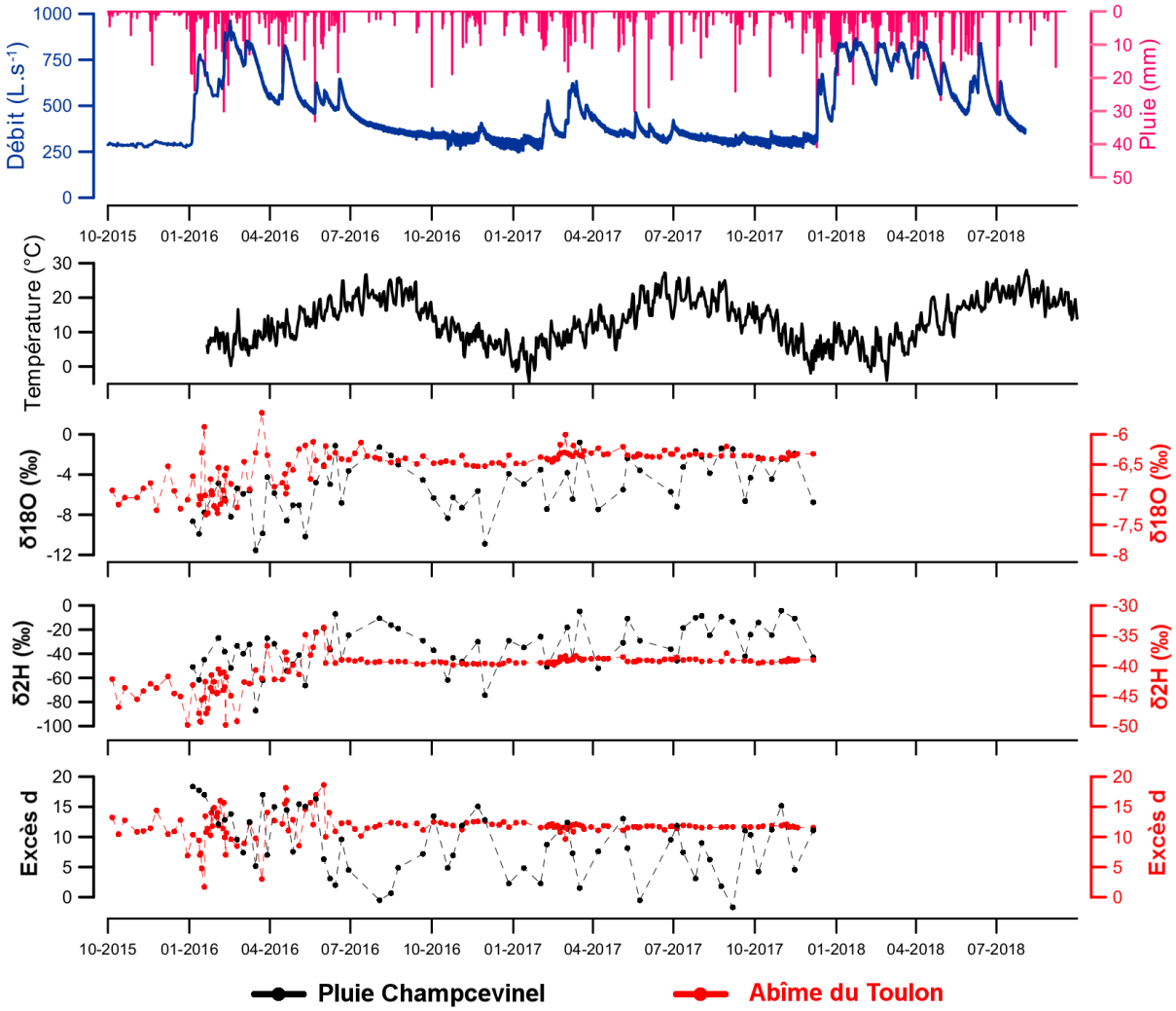


Figure 31 : Evolution des isotopes stables de la molécule d'eau et de l'excès en deutérieum mesurés dans les retombés humides prélevées sur le site des ateliers municipaux de Champcevinel de janvier 2016 à Septembre 2018. L'évolution des pluies, du débit des Sources du Toulon, et des températures de l'air est aussi présentée.

Les valeurs de $\delta^{18}O_{\text{-H2OvsSMOW}}$ des eaux de pluie montrent une composition isotopique moyenne pondérée de -6.53 ‰, et des compositions minimales et maximales de -11.54 ‰ et -3.82 ‰, respectivement. Les valeurs de $\delta^{2}H_{\text{-H2OvsSMOW}}$ des précipitations montrent une composition isotopique moyenne de -41.00 ‰, et des compositions minimales et maximales de -87.17 ‰ et -18.16 ‰, respectivement. Les valeurs d'excès en deutérium des précipitations, calculés avec une pente de 8 montrent une composition isotopique moyenne pondérée de +12.15, et des compositions minimales et maximales de +2.17 et +18.35, respectivement.

Ces résultats sont en accord avec celles de Petelet-Giraud et *al.*, (2005) ; Bertrand, 2009 ; Jirakova et *al.*, (2009, 2011) ; Peyraube, 2011 ; Millot et *al.*, 2011 ; Jaunat et *al.*, (2013) ; Houillon, 2016.

Aux Sources du Toulon, les variations de ces mêmes paramètres, sur une période sétalant entre octobre 2015 et décembre 2017, sont beaucoup moins importantes, avec des valeurs moyennes de $\delta^{18}O_{\text{-H2OvsSMOW}}$, de $\delta^{2}H_{\text{-H2OvsSMOW}}$ et d'excès en deutérium respectivement de -6.56 ‰, -40.82 ‰, et +11.60.

Tableau 7 : Statistique descriptive des isotopes stables de la molécule d'eau vsSMOW et de l'excès en deutérieum mesurés dans les précipitations prélevées sur le site des ateliers municipaux de Champcevinel de janvier 2016 à septembre 2018. n correspond au nombre de valeur.

		$\delta^{18}O_{-H2O}$ ‰	$\delta^{2}H_{H2O}$ ‰	Exès ^{2}H
Pluie Champcevinel	n	52	52	52
	Moyenne pond.	-6.53	-41.00	12.15
	Min	-11.54	-87.17	2.27
	Max	-3.82	-18.16	18.35
	σ	1.95	14.79	4.15
	CV (%)	29.78	36.06	34.11
Abîme du Toulon	n	145	145	145
	Moyenne pond.	-6.56	-40.82	11.60
	Min	-7.33	-49.80	1.69
	Max	-5.64	-33.64	18.61
	σ	0.32	2.93	2.13
	CV (%)	4.93	7.28	18.18

Les valeurs de $\delta^{18}O_{-H2OvsSMOW}$ et $\delta^{2}H_{-H2OvsSMOW}$ sont introduites dans le repère $\delta^{2}H=f(\delta^{18}O)$ en Figure 32. La droite météorique locale (DML) est déterminée et comparée avec la droite météorique mondiale (DMM), appelée droite de Craig (1961).

La droite météorique mondiale, largement présentée dans la littérature par l'équation 5, est une moyenne mondiale de nombreuses droites météoriques locales. Chacune de ces droites est contrôlée par divers facteurs climatiques locaux (température de l'air, humidité de l'air, vitesse du vent, origine et trajectoire des masses d'air, …). De ce fait, la pente et l'ordonnée à l'origine des DML peuvent varier d'un site à l'autre (Rozanski et *al.*, 1993 ; Gonfiantini, 1996, Jaunat et *al.*, 2013 ; Mance et *al.*, 2014 et dépendent des contextes climatiques et topographiques locaux (El-Asrag et *al.*, 2003).

$$\delta^{2}H\ (‰) = 8.\delta^{18}O + 10 \qquad \text{Equation 5}$$

Sur le bassin d'alimentation des Sources du Toulon, la détermination de la droite météorique locale (DML) se base sur 52 échantillons hebdomadaires de précipitations durant la période janvier 2016 – juin 2018. La DML, exprimée par l'équation 6 et illustrée en Figure 32. Elle présente une pente et une ordonnée à l'origine légèrement différente de la DMM.

$$\delta^{2}H\ (‰) = 7.23\delta^{18}O + 5.77 \qquad \text{Equation 6}$$

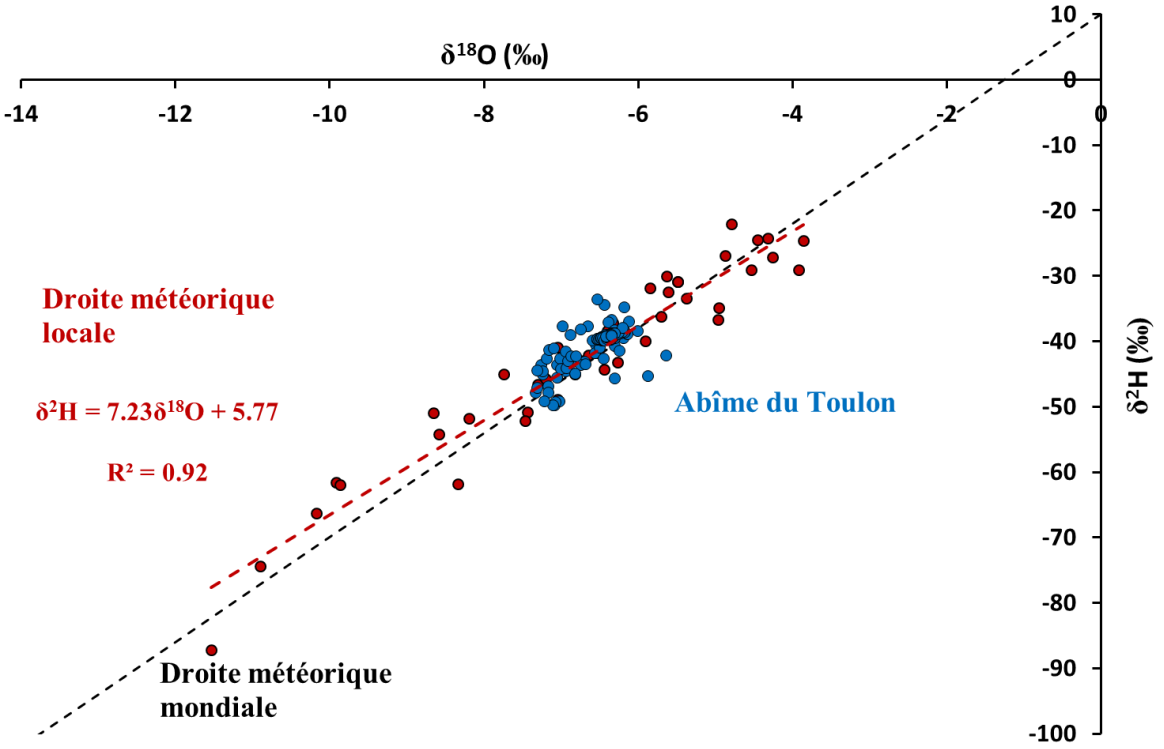


Figure 32 : Comparaison des mesures isotopiques des précipitations mesurés à Champcevinel et la droite météorique locale avec la droite météorique mondiale dans le repère $\delta^2H=f(\delta^{18}O)$. Les points en bleus correspondent aux signatures isotopiques de la source de l'Abîme du Toulon.

Les signatures isotopiques de $\delta^{18}O_{\text{-H2OvsSMOW}}$ et $\delta^{2}H_{\text{-H2OvsSMOW}}$ le long de la côte atlantique sont en effet relativement homogènes avec des valeurs de l'ordre de -5 ‰ et -30 ‰. Ces valeurs peuvent être attribuées à une contribution majeure de la vapeur d'eau de mer aux précipitations (Gat et *al.*, 2003).

L'excès en deutérium calculé à partir d'une pente de 8 ici est de +12.15 en moyenne. Cette valeur est proche de celle obtenue pour des précipitations d'origine atlantique (Excès ^{2}H = +10, Craig, 1961). La différence observée dans les eaux de pluie sur le bassin d'alimentation des sources du Toulon peut être expliquée par deux hypothèses : (i) le phénomène d'évaporation, (ii) l'origine des masses d'air responsables des précipitations dans cette région.

Les valeurs de $\delta^{18}O_{\text{-H2O}}$ et $\delta^{2}H_{\text{-H2O}}$ montre une origine majoritairement atlantique de l'eau de pluie.

Les données isotopiques ($\delta^{18}O_{\text{-H2O}}$ et $\delta^{2}H_{\text{-H2O}}$) des Sources du Toulon s'illustrent par un groupe de faible extension dans le repère $\delta^2H=f(\delta^{18}O)$, traduisant des faibles variations isotopiques mesurées.

1.2 Le bilan hydrologique pour une première estimation de la surface du bassin d'alimentation des Sources du Toulon

La définition du bilan hydrologique repose sur l'analyse de la cohérence qui existe entre les volumes d'entrée et les volumes de sortie d'un système. Elle permet de caractériser potentiellement la taille de l'impluvium du système. La méthode consiste à évaluer pour une période donnée, le volume d'eau écoulé à l'exutoire (Q, en m^3) et le volume des pluies qui renouvellent les réserves et entretiennent l'écoulement dans le système.

L'acquisition des débits à l'exutoire de l'hydrosystème étudié permet de calculer les volumes annuels qui y transitent. A partir de ces volumes annuels et de la hauteur de recharge, la surface approximative du bassin d'alimentation des Sources du Toulon est estimée pour chaque cycle hydrologique, de 2007 à 2018.

Cette méthodologie fournit des résultats contrastés suivant les cycles hydrologiques (Tableau 8), avec des surfaces allant de 45.18 km² pour le cycle hydrologique 2013-2014, à 154.42 km² pour le cycle hydrologique 2016-2017. Ces résultats illustrent la première difficulté d'estimation précise du bassin d'alimentation des Sources du Toulon.

Tableau 8 : Synthèse des résultats fournis par les bilans hydrologiques appliqués par cycle hydrologique de 2007 à 2018 sur le système karstique du Toulon.

Cycle hydrologique	Pluie annuelle (mm)	ETP annuelle (mm)	Recharge annuelle (mm)	Part recharge (%)	Volume annuel (10^6 m^3)	Surface (km²) (km²)
2007-2008	813.20	924.18	156.82	19.28	16.09	102.58
2008-2009	824.20	950.61	174.29	21.15	13.59	77.99
2009-2010	764.30	933.48	255.37	33.41	13.94	54.58
2010-2011	497.10	963.81	84.01	16.90	10.81	128.66
2011-2012	716.80	949.81	159.43	22.24	11.43	71.71
2012-2013	923.20	923.28	240.48	26.05	14.53	60.42
2013-2014	971.90	950.82	360.55	37.10	16.29	45.18
2014-2015	612.20	990.68	134.57	21.98	12.43	92.38
2015-2016	682.60	968.24	197.72	28.97	14.76	74.64
2016-2017	659.80	975.38	71.42	10.82	11.03	154.42
2017-2018	892.20	997.23	329.07	36.88	16.83	51.13

La superficie calculée ci-dessus correspond à une surface d'infiltration nécessaire à la restitution des débits aux sources du Toulon.

Le calcul à partir du cycle hydrologique annuel n'est pas représentatif des débits sortant car il se base sur l'hypothèse que le volume annuel mesuré aux Sources du Toulon dépend du total des précipitations survenues durant cette même année. Or, le Tableau 8 montre que ce n'est pas le cas, avec parfois des volumes annuels plus importants pour un total de pluies brutes plus faible.

Ceci introduit la notion de réserves pluriannuelles dans le système. Les débits observés aux Sources du Toulon sont alors considérés en partie comme le résultat de l'emmagasinement des évènements pluvieux des années antérieures. Cette notion correspond à la limite de la méthode utilisée.

Pour établir une superficie qui rend compte de la notion de réserves pluriannuelles, le même calcul que précédemment est réalisé, mais avec le cumul des volumes annuels de 2007 à 2018 et du total des infiltrations sur la même période.

Après application numérique, la superficie du bassin d'alimentation des sources du Toulon est estimée à 70.12 km². Le détail des paramètres utilisés est fourni dans le Tableau 9.

Tableau 9 : Synthèse des résultats fournis par le bilan hydrologique appliqué de 2007 à 2018 sur le système karstique du Toulon.

Cycle hydrologique	Pluie pluriannuelle (mm)	ETP pluriannuelle (mm)	Recharge pluriannuelle (mm)	Part recharge (%)	Volume pluriannuelle (10^6 m^3)	Surface (km^2) (km^2)
2007-2018	8357.50	10527.52	2163.73	25.89	151.72	70.12

2. Evaluation du fonctionnement hydrogéologique des Sources du Toulon par caractérisation hydrodynamique et hydrogéochimique

Cette deuxième partie vise à coupler les approches hydrodynamiques et hydrochimiques pour caractériser le fonctionnement hydrogéologique des Sources du Toulon. Chaque sous-partie présentera dans un premier temps les données utilisées avant de les interpréter.

2.1 Caractérisation des réponses hydrodynamiques des Sources du Toulon

2.1.1 Présentation des données utilisées

Du 01/07/2007 à 30/09/2018, les données hydrodynamiques (pluie et débit) sont enregistrées. Ces données sont présentées dans la Figure 33. Les débits sont mesurés à la station de jaugeage localisée à l'exutoire du système karstique du Toulon. Du 01/07/2007 au 21/01/2016, les données de pluie utilisées sont celles de la station de Périgueux mises à disposition par le Service de Prévision des Crues de la Dordogne (SPC_24). Depuis le 21/01/2016, les données de pluie utilisées sont celles de la station du Lyonnet (Figure 17 du Chapitre 2).

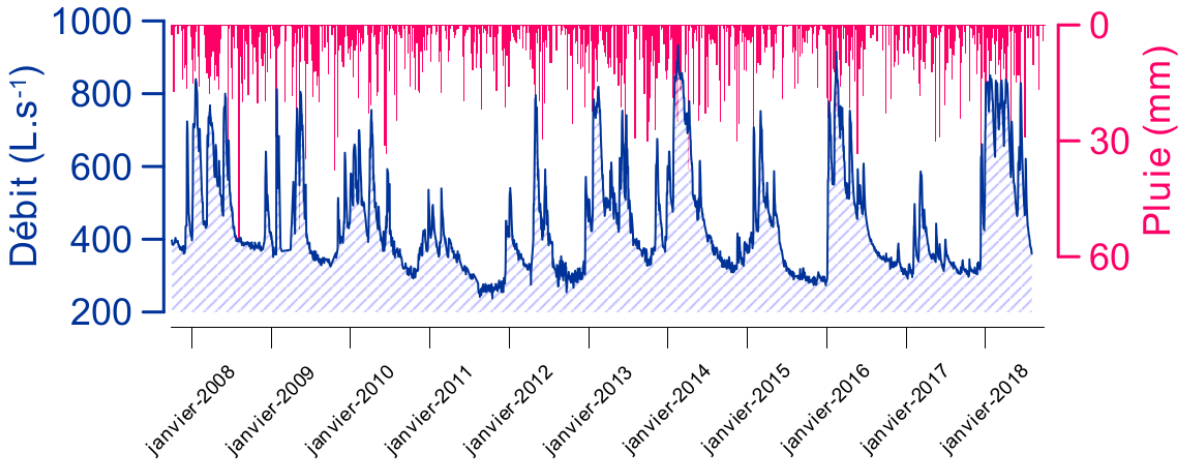


Figure 33 : Evolution temporelle des débits journaliers des Sources du Toulon et des pluies brutes de juillet 2007 à septembre 2018

Les Sources du Toulon possèdent un débit moyen de 450 $L.s^{-1}$, avec un débit minimum mesuré le 16/10/2011 à 230 $L.s^{-1}$, et un débit maximum mesuré le 16/02/2014 à 940 $L.s^{-1}$.

2.1.2 Méthodologies appliquées

La stratégie a pour but de caractériser le fonctionnement hydrogéologique des Sources du Toulon à partir des réponses hydrodynamiques et vise à évaluer : (i) la réponse du système karstique aux évènements pluvieux ; (ii) la vidange de la zone saturée lorsqu'elle n'est plus influencée par les précipitations.

L'ANALYSE DES COURBES DE RECESSION

L'analyse des courbes de récession est généralement menée pour déterminer la capacité de vidange d'un système karstique (Mangin, 1975 ; Bonacci, 1993 ; Padilla et *al.*, 1994 ; Amit et *al.*, 2002 ; Mudarra et Andreo, 2011 ; Eris et Wittenberg, 2015 ; Fu et *al.*, 2016). En s'inspirant des équations de Maillet (1905), Mangin (1975) propose qu'une équation exponentielle soit utilisée pour simuler la récession (Equation 7).

$$Q(t) = Q_{R0} * e^{-\alpha t} \qquad \text{(Equation 7)}$$

Avec Q_{R0} l'extrapolation de la courbe de tarissement au pic de crue, et α le coefficient de tarissement en jours^{-1}.

En milieu karstique, le coefficient de récession est généralement de l'ordre de 10^{-1} à 10^{-3} j^{-1} (Mangin, 1975 ; Bonacci, 1993 ; Amit et *al.*, 2002 ; Fu et *al.*, 2016). Cependant, El-Hakim et Bakalowicz (2007) ont étudié des sources karstiques au Moyen orient (Liban) présentant des coefficients de tarissement de l'ordre de 10^{-4} j^{-1}.

Le coefficient de tarissement traduit la vidange de l'aquifère lorsqu'il n'est plus influencé par les précipitations. Une vidange lente (α faible) implique généralement une zone saturée importante, avec une forte capacité de stockage. Dans certains cas, un coefficient de tarissement faible peut être causé par un débit d'étiage soutenu par des pertes en rivières (Source de la Touvre, Fontaine des Chartreux), ou par un autre aquifère.

L'intégration des courbes de récession dans le temps fournit le volume dynamique (V_{dyn}), traduisant la quantité d'eau disponible dans la zone saturée de l'aquifère et/ou provenant d'un autre aquifère.

L'ANALYSE CORRELATOIRE SIMPLE ET CROISEE

Les analyses corrélatoires simples et croisées sont largement utilisées en traitement du signal. Ces analyses peuvent caractériser la structure temporelle d'un signal hydrologique (Mangin, 1984 ; Padilla and Pulido-Bosh, 1995 ; Larocque et *al.*, 1998 ; Labat et *al.*, 2000 ; Panagopoulos and Lambrakis, 2006). Le choix est fait ici de ne pas décrire l'ensemble des équations permettant ces analyses ; ces dernières étant déjà largement décrites dans la littérature.

L'analyse corrélatoire simple (ACS) évalue comment une valeur dépend de la valeur précédente sur une période de temps. La représentation graphique est appelée un corrélogramme. La pente du corrélogramme caractérise les réponses du système karstique aux évènements pluvieux. Plus la pente est grande, plus le système possède un fonctionnement typiquement karstique. Au contraire, plus la pente est faible, plus les

réponses hydrodynamiques seront considérées comme inertielles. Généralement, la longueur de l'influence d'un évènement est donnée par l'effet mémoire, noté r(k), et considéré d'après Mangin (1984) comme le décalage de temps lorsque l'ACS atteint la valeur de 0.2.

L'analyse corrélatoire croisée (ACC) détermine les relations entre deux variables X et Y lorsque ces deux variables ont une relation entrée-sortie (variables pluie-débit). Cette analyse donne directement la réponse impulsionnelle si le signal d'entrée peut être considéré comme aléatoire. Certains auteurs ont utilisé l'ACC pour déterminer les relations entre plusieurs variables, telles que la pluie, les débits, la conductivité électrique, la turbidité, ou encore la température de l'eau (Larocque et *al.*, 1998 ; Bouchaou et *al.*, 2002 ; Amaraoui et *al.*, 2003 ; Genthon et *al.*, 2005 ; Massei et *al.*, 2006). L'ACC est représentée graphiquement par un corrélogramme croisé, possédant une partie positive et négative. Un pic dans la partie positive signifie qu'il existe une relation de cause à effet entre le signal d'entrée et le signal de sortie. Un pic dans la partie négative signifie que le signal d'entrée est anti-corrélé avec le signal de sortie. L'amplitude maximale et le décalage temporel fournissent des informations. Plus l'amplitude maximale est importante, plus la corrélation entre le signal d'entrée et le signal de sortie est importante. Plus le décalage temporel est faible, plus l'aquifère transmet le signal d'entrée rapidement.

Quand la pluie et le débit sont respectivement considérés comme signal d'entrée et de sortie, le corrélogramme, l'effet mémoire, et le décalage temporel peuvent être utilisés pour décrire le degré de karstification de l'aquifère et sa réponse aux évènements pluvieux (Covington et *al.*, 2009 ; Lo Russo et *al.*, 2014 ; Mayaud et *al.*, 2014 ; Fu et *al.*, 2016).

LA CLASSIFICATION DES SYSTEMES KARSTIQUES

Le coefficient de récession et le volume dynamique associé permettent de replacer le système karstique étudié dans la classification proposée par Mangin (1975), et modifiée par El-Hakim et Bakalowicz (2007). Mangin (1975) considère deux indices : (i) **k**, le pouvoir régulateur, définissant l'extension de la zone saturée de l'aquifère ; (ii) **i**, le délai d'infiltration, caractérisant les conditions d'infiltration.

Le paramètre k est le rapport entre le volume dynamique maximal observé sur une longue période de temps et le volume moyen annuel. Le paramètre i correspond à la valeur de la fonction homographique, y au temps t = 2 (Equation 8) :

$$y = \frac{(1-\eta t)}{(1+\varepsilon t)}$$

Equation 8

Avec η la vitesse d'infiltration en j^{-1}, et ε l'hétérogénéité d'écoulement en j^{-1}.

Mangin (1975) et El-Hakim et Bakalowicz (2007) ont défini 5 domaines dans l'espace défini par **k** et **i** :

- domaine 1, les systèmes complexes, généralement de grande taille et dont la structure est faite de nombreux sous-systèmes ;
- domaine 2, les systèmes karstiques plus karstifiés à l'amont qu'à l'aval et avec des retards dans l'alimentation dus soit à la présence de terrains non karstiques, soit à une couverture neigeuse importante, ;
- domaine 3, les systèmes possédant un réseau de drainage très développé, avec une zone noyée peu importante ;

- domaine 4, les systèmes possédant un réseau spéléologique bien développé et débouchant à l'aval sur un important karst noyé ;
- domaine 5, décrit par El-Hakim et Bakalowicz (2007), intégrant les systèmes où la zone noyée est partiellement confinée, profonde, à karstification multiphasée très développée. Ce sont des systèmes karstiques non fonctionnels, dans lesquels les temps de séjour sont pluriannuels à séculaires (Bakalowicz, 2008).

2.1.3 L'estimation de la capacité de vidange du système par analyse des courbes de récession

La démarche décrite précédemment a été appliquée à l'hydrogramme des Sources du Toulon (Figure 33). Un total de 9 courbes de récession sont analysées de 2007 à 2017 (Tableau 10). Le coefficient moyen estimé et le volume dynamique calculé sont respectivement de 6 $x10^{-4}$ j^{-1} et 54 $x10^{6}$ m^3.

Malgré un contexte climatique qui peut varier d'une année à l'autre, le coefficient de tarissement calculé est toujours de l'ordre de 10^{-4} j^{-1}. Ce paramètre reflète bien la vidange de l'aquifère karstique du Toulon lorsqu'il n'est plus soumis aux précipitations.

Tableau 10 : Caractéristiques des récessions analysée sur le système karstique du Toulon de 2007 à 2017.

Période de récession	Paramètres de la fonction de Maillet			
	Q_{R0} ($L.s^{-1}$)	t_i (jour)	α (10^{-4} j^{-1})	V_{dyn} (10^6 m^3)
09/09/2007 à 03/12/2007	404	94	7.9	44.2
24/07/2008 à 24/11/2008	394	123	4.4	77.4
17/06/2009 à 25/09/2009	372	100	9.0	35.7
08/08/2012 à 01/12/2012	305	115	4.4	59.9
30/07/2013 à 01/11/2013	398	94	8.0	43.0
07/09/2014 à 13/11/2014	324	67	9.4	29.8
30/06/2015 à 01/01/2016	313	185	4.4	61.5
19/06/2016 à 16/11/2016	365	150	4.3	67.8
01/07/2017 à 15/10/2017	306	106	3.7	70.5

	Paramètres de la fonction de Maillet			
	Q_{R0} ($L.s^{-1}$)	t_i (jour)	α (10^{-4} j^{-1})	V_{dyn} (10^6 m^3)
moyenne	353	115	6	54
min	305	67	3.7	29.8
max	404	185	9.4	77.4
ecart type	41.48	34.79	2.21	16.72
coeff. de variation (%)	11.74	30.28	40.16	30.73

La Figure 34 présente l'analyse de la courbe de récession du cycle 2014-2015. Ce cycle, considéré comme sec, a subi l'étiage le plus long enregistré aux Sources du Toulon. S'étalant sur 185 jours, cette période de récession permet d'obtenir des informations capitales sur la vidange de la zone saturée du système karstique du Toulon. Pendant cette période, le coefficient de tarissement est estimé à 4.40 x10^{-4} j^{-1}, ce qui est très faible pour une source karstique. Ce résultat implique une faible capacité de vidange de la zone saturée de l'aquifère.

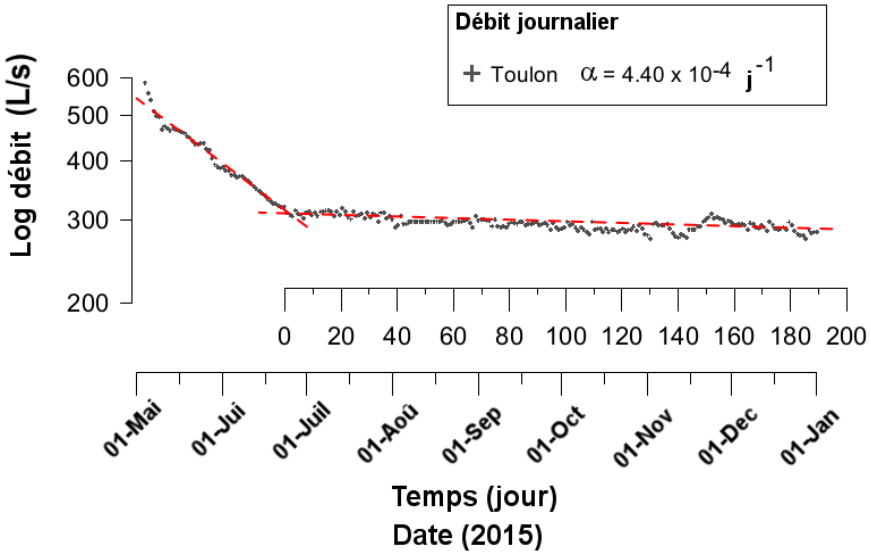


Figure 34 : Analyse de la courbe de récession du cycle hydrologique 2014-2015. La ligne rouge correspond à la tendence de l'évolution des débits de mai 2015 à janvier 2016.

Les volumes dynamiques calculés à partir des coefficients de récession, sont compris entre 29.8 millions de m^3 et 77.4 millions de m^3. Ces valeurs sont importantes par rapport à la taille du bassin d'alimentation des Sources du Toulon (environ 70 km²). En comparaison, Fontaine de Vaucluse possède un volume dynamique de 101 millions de m^3 pour un bassin d'alimentation de 1 115 km² (Mangin, 1975).

Ces résultats fournissent des informations sur la forte capacité de stockage et la faible capacité de vidange de la zone saturée de l'aquifère. Ceci implique une importante quantité d'eau disponible dans la zone saturée. L'aquifère du Turonien, généralement peu productif d'après les forages réalisés dans le secteur (de l'ordre de 60 $m^3.h^{-1}$) ne semble pas être capable de supporter à lui seul une telle réserve. La rivière Beauronne, localisée au Nord-Ouest de la zone d'étude (Figure 19 du Chapitre 2), pourrait être suspectée de soutenir le débit de base des Sources du Toulon. Cependant, comme cette rivière est tarie en période de basses eaux, cette hypothèse est écartée. La possible connexion avec un autre aquifère permettant le soutien des débits pendant les périodes de basses eaux n'est pas à exclure à ce stade des travaux.

2.1.4 Evaluation des réponses hydrodynamiques du système lors des évènements pluvieux par analyse corrélatoire simple et croisée

Les analyses corrélatoires simples (ACS) et croisées (ACC) sont réalisées sur les données de débit journalier des Sources du Toulon, juillet 2007 à septembre 2018.

L'ACS calcule un effet mémoire de 77 jours (Figure 35A) et confirme la faible capacité de drainage des Sources du Toulon. Des résultats similaires sont trouvés dans des systèmes karstiques plus grands. En comparaison, la Fontaine des Chartreux (250 km²) et Fontaine de Vaucluse (1 115 km²) possèdent des effets mémoires respectifs de 71 jours et 75 jours (Moussu, 2011). Certains systèmes karstiques plus petits peuvent aussi posséder des effets mémoires similaires. Le système karstique d'El Torqual en Espagne (28 km²) possède un effet mémoire de 70 jours (Padilla et Pulido-Bosh, 1995).

L'ACC entre les pluies et les débits des Sources du Toulon (Figure 35B) fournit des informations supplémentaires sur le fonctionnement hydrogéologique du système karstique étudié. L'ACC calcule une réponse impulsionnelle moyenne de 5 jours après des évènements pluvieux, avec une intensité maximale de 0.22 (Figure 35B).

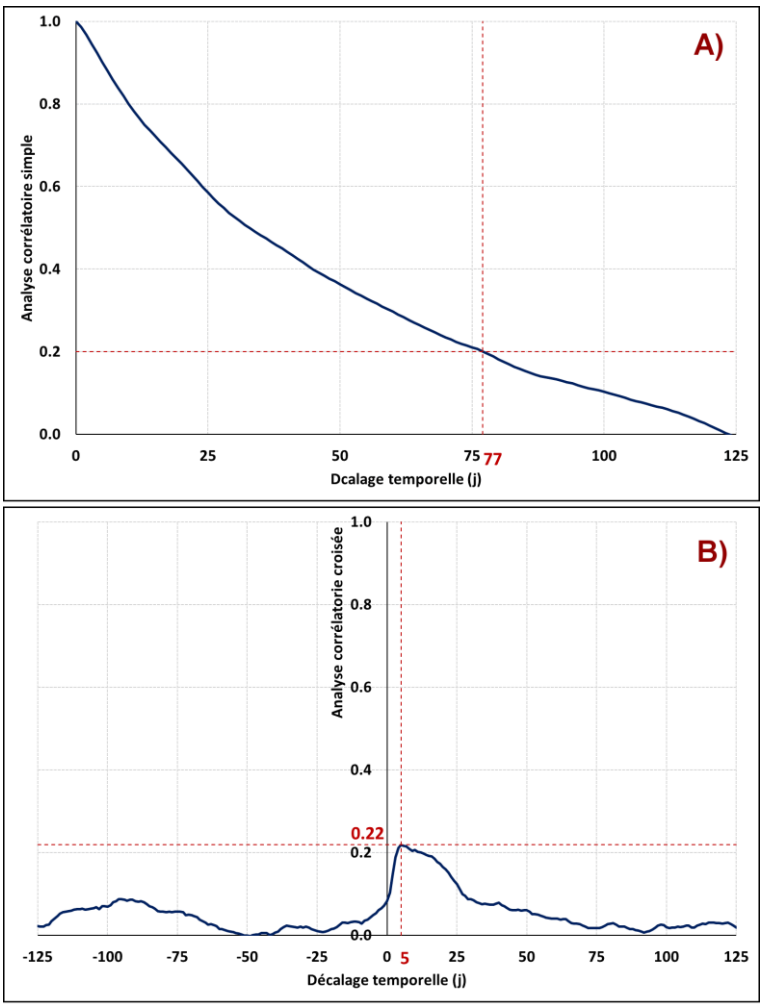


Figure 35 : A) Auto-corrélogramme des débits journaliers des Sources du Toulon, de juillet 2007 à septembre 2018. B) Corrélogramme croisé des débits journaliers des Sources du Toulon et des précipitations, de juillet 2007 à septembre 2018.

Les résultats apportés par l'ACC sont en accord avec ceux trouvés dans la littérature, où le décalage temporel est de l'ordre de quelques heures (Bailly-Comte et *al.*, 2008 ; Covington et *al.*, 2009 ; Mayaud et *al.*, 2014) à quelques jours (Padilla et Pulido-Bosch, 1995 ; Larocque et *al.*, 1998 ; Panagopoulos and Lambrakis, 2006). L'ACC montre que la composante d'écoulement rapide est présente (réponse moyenne de 5 jours après un épisode pluvieux). Cependant, la majeure partie du signal est filtrée à travers le système karstique (intensité maximale de 0.22). La faible pente de 25 à 70 jours confirme la prédominance de la composante d'écoulement de base. Cette valeur de 70 jours, est une mesure du temps de l'influence d'une pluie unique dans le système karstique.

2.1.5 Emplacement des Sources du Toulon dans la classification des aquifères karstiques

Les paramètres k et i calculés, respectivement de 4.26 an et 0.78, permettent de placer les Sources du Toulon dans la classification des aquifères karstiques.

D'après la Figure 36, les Sources du Toulon se situent dans le domaine 5 de la classification des aquifères karstiques. Ce domaine intègre les systèmes où la zone noyée est partiellement confinée, profonde et à karstification polyphasée d'après El-Hakim et Bakalowicz (2007).

Avant ces travaux, les sources de la Touvre étaient les seules sources karstiques françaises localisées dans le domaine 5. Malgré leur proximité de localisation dans cette classification, les sources de la Touvre et les Sources du Toulon possèdent un fonctionnement hydrogéologique très différent. Les sources de la Touvre sont soutenues par des pertes de rivières (jusqu'à 50 %), impliquant des débits très stables pendant l'étiage, et donc un coefficient de tarissement faible. Par conséquence, le volume dynamique calculé pour les sources de la Touvre n'est pas représentatif de la quantité d'eau disponible dans la zone saturée de l'aquifère. Au contraire, le volume dynamique calculé pour les Sources du Toulon, est représentatif de la quantité d'eau disponible dans la zone saturée. Ces résultats illustrent d'une part le côté original des Sources du Toulon en termes de fonctionnement hydrogéologique, et d'autre part le potentiel hydrogéologique en termes d'alimentation en eau disponible pour la population.

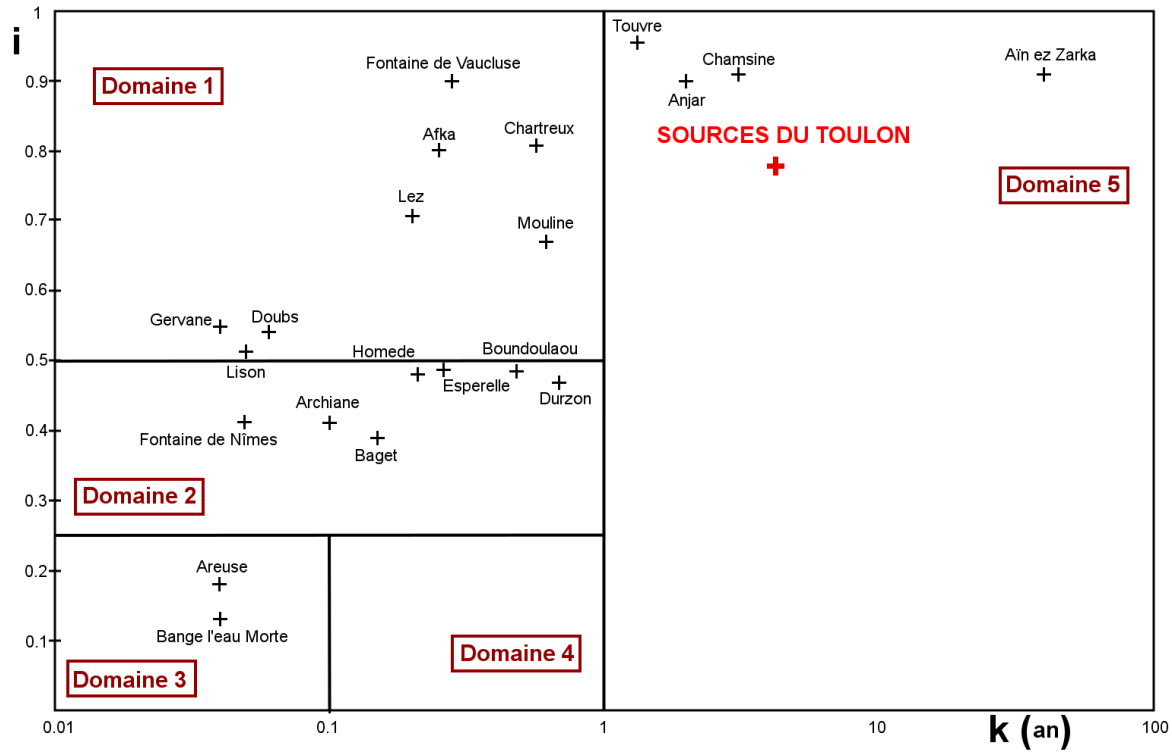


Figure 36 : Classification des systèmes karstiques basée sur les résultats de l'analyse de récession (adaptée d'après El-Hakim et Bakalowicz, 2007 ; Moussu, 2011).

2.2 Caractérisation des réponses hydrochimiques des Sources du Toulon

2.2.1 Présentation des données utilisées

La stratégie a pour but de caractériser le fonctionnement hydrogéologique des Sources du Toulon. Pour cela, de février 2014 à septembre 2018, des échantillons d'eau sont prélevés sur les Sources du Toulon et sur différentes sources et forages représentatifs des différents aquifères rencontrés sur la zone d'étude. Sur certains forages, les données utilisées proviennent de la base de données ADES eau France.

Ces données doivent permettre : (i) de caractériser l'évolution des paramètres physico-chimiques pendant un cycle hydrologique ; (ii) d'identifier les différentes masses d'eau qui transitent à l'exutoire du système karstique du Toulon ; (iii) de comparer les signatures hydrochimiques des Sources du Toulon avec les autres signatures hydrochimiques caractéristiques des différents aquifères.

Le Tableau 11 synthétise les données hydrochimiques : (i) des Sources du Toulon ; (ii) de la fontaine du Godet ; (iii) de la source de la Clavelie ; (iv) de la source du stade COPO, dont la localisation est donnée en Figure 28. Le Tableau 12 synthétise les données hydrochimiques des forages utilisés ; leur localisation est donnée en Figure 37.

Tableau 11 : Statistique descriptive des échantillons d'eau analysés aux Sources du Toulon, fontaine du Godet, source de la Clavelie, et source du stade COPO, entre février 2014 et septembre 2018.

		Q ($L.s^{-1}$)	pH (u. pH)	T (°C)	EC ($\mu S.cm^{-1}$)	O2 ($mg.L^{-1}$)	Ca^{2+} ($mg.L^{-1}$)	Mg^{2+} ($mg.L^{-1}$)	$HCO3^-$ ($mg.L^{-1}$)	Cl^- ($mg.L^{-1}$)	SO_4^{2-} ($mg.L^{-1}$)	NO_3^- ($mg.L^{-1}$)	SiO_2 ($mg.L^{-1}$)	ISc (u. pH)	PCO_2 (%)	COD ($mg.L^{-1}$)	$\delta^{13}C_{-CID}$ (‰)	Turbidité (NTU)
Source du Toulon	n	4826	1112	1112	1112	1112	250	250	250	233	233	959	250	250	187	959	203	1465
	Mean	476.0	7.005	13.98	585	4.90	107.29	7.64	336.71	11.15	8.37	13.45	15.61	-0.10	2.92	0.98	-12.66	1.20
	Min	230.0	6.818	12.80	518	3.62	98.16	2.92	290.36	10.06	7.14	9.99	12.10	-0.27	2.14	0.26	-14.52	0.20
	Max	940.0	7.130	14.40	608	8.30	116.33	12.77	356.37	13.75	10.57	20.03	20.50	0.05	3.91	2.90	-10.51	254.00
	σ	122.8	0.1	0.39	15.1	1.17	3.56	2.76	13.38	0.46	0.74	2.40	1.92	0.07	0.33	0.92	1.08	1.06
	CV (%)	25.8	0.8	2.82	2.6	23.86	3.32	36.09	3.97	4.13	8.90	17.85	12.30	71.88	11.41	93.23	-8.53	88.71
Fontaine du Godet	n		62	62	62	62	62	62	62	62	62	62	62	62	62	62	47	32
	Mean		6.825	12.33	559	7.92	111.76	2.39	324.14	11.53	8.11	9.82	15.84	-0.27	3.97	1.22	-14.82	0.98
	Min		6.674	11.90	367	7.37	65.70	1.89	195.40	8.53	6.85	5.76	11.71	-0.84	2.85	0.43	-15.76	0.04
	Max		6.918	12.50	629	8.42	131.37	2.96	374.54	18.17	10.77	14.29	18.06	-0.10	4.87	3.76	-14.17	6.16
	σ		0.1	0.14	53.6	0.24	14.14	0.28	34.91	1.24	1.11	2.40	1.34	0.13	0.56	0.82	0.37	1.53
	CV (%)		0.8	1.13	9.6	3.08	12.66	11.76	10.77	10.75	13.70	24.44	24.44	46.77	14.05	67.34	-2.50	155.30
Source de la Clavelie	n		61	61	61	61	61	61	61	61	61	61	61	61	61	61	57	32
	Mean		6.903	13.70	629	4.40	122.48	3.79	359.81	12.58	8.69	16.87	22.48	-0.09	3.74	1.67	-13.59	1.57
	Min		6.810	12.90	552	2.77	111.98	1.79	293.85	11.29	7.35	10.11	20.49	-0.23	2.77	0.70	-14.68	0.27
	Max		6.978	14.20	660	7.24	130.68	5.88	379.77	14.31	12.06	28.90	24.48	0.01	4.57	4.10	-12.62	10.37
	σ		0.0	0.36	22.7	1.28	4.30	1.14	18.50	0.56	1.00	4.89	0.98	0.05	0.37	0.87	0.43	2.14
	CV (%)		0.5	2.65	3.6	29.02	3.51	30.08	5.14	4.45	11.48	28.98	28.98	52.06	9.82	52.32	-3.16	136.11
Source du stade COPO	n		19	19	19	19	19	19	19	19	19	19	19	19	19	19	19	13
	Mean		7.134	20.39	551	1.62	81.71	22.29	329.69	12.71	9.38	7.26	13.96	0.03	2.17	0.59	-8.15	0.05
	Min		7.048	20.20	530	1.35	72.25	21.54	320.86	12.28	8.30	4.95	13.23	-0.05	1.97	0.30	-8.60	0.00
	Max		7.182	21.20	568	1.92	87.00	23.22	334.70	13.22	11.66	8.97	14.56	0.08	2.69	0.97	-7.55	0.12
	σ		0.0	0.23	8.7	0.16	2.91	0.57	3.93	0.26	1.21	1.09	0.43	0.04	0.22	0.23	0.32	0.04
	CV (%)		0.6	1.14	1.6	9.90	3.56	2.54	1.19	2.05	12.91	15.00	15.00	-133.71	10.03	40.01	-3.93	84.97

Tableau 12 : Statistique descriptive des échantillons d'eau analysés sur les forages localisés en Périphérie de la ville de Périgueux. Les données des forages en bleus sont issues des prélèvements réalisés pendant ces travaux. Les données des forages en rouge proviennent de la base de données ADES eau France.

		pH (u. pH)	T (°C)	EC ($\mu S.cm^{-1}$)	O2 ($mg.L^{-1}$)	Ca^{2+} ($mg.L^{-1}$)	Mg^{2+} ($mg.L^{-1}$)	$HCO3^-$ ($mg.L^{-1}$)	Cl^- ($mg.L^{-1}$)	SO_4^{2-} ($mg.L^{-1}$)	NO_3^- ($mg.L^{-1}$)	SiO_2 ($mg.L^{-1}$)	ISc (u. pH)	PCO_2 (%)	$\delta^{13}C_{-CID}$ (‰)	Turbidité (NTU)
Forage de Cornille Jur. Sup - Turonien	n	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	13	4	4	4	4
	Mean	7.024	16.60	628	2.41	108.76	16.33	398.52	10.57	8.00	6.02	10.56	0.04	3.30	-11.88	6.87
	Min	6.873	15.30	609	1.21	97.82	5.69	390.40	8.88	7.00	1.32	15.09	-0.02	2.68	-12.28	4.00
	Max	7.100	17.30	676	3.92	132.84	21.12	414.80	13.14	9.24	13.14	2.20	0.09	4.67	-11.15	13.50
	σ	0.1	0.90	32.3	1.12	16.53	7.21	11.04	1.97	1.02	5.50	17.58	0.05	0.92	0.63	4.44
	CV (%)	1.5	5.43	5.1	46.66	15.20	44.17	2.77	18.64	12.70	91.38		109.44	28.01	-5.33	64.65
Forage de Trélissac Jur. Moyen	n	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1
	Mean	7.129	20.80	562	0.06	85.52	22.09	361.38	9.16	7.84	0.00	10.15	0.08	2.42	-8.02	1.27
	Min															
	Max															
	σ															
	CV (%)															
Forage de Roussie Turonien - Coniacien	n	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	1	1
	Mean	7.164	14.65	584	6.78	120.05	2.87	350.64	10.02	6.72	11.45	24.97	0.16	2.00	-12.75	9.64
	Min	7.123	14.30	577	6.65	118.94	2.59	341.60	9.44	6.27	11.20	24.90	0.11	1.84		
	Max	7.205	15.00	590	6.90	121.16	3.16	359.67	10.60	7.16	11.69	25.03	0.21	2.17		
	σ	0.1	0.49	9.2	0.18	1.57	0.40	12.78	0.82	0.63	0.35	0.09	0.08	0.23		
	CV (%)	0.8	3.38	1.6	2.61	1.31	13.89	3.64	8.18	9.34	3.03	0.37	47.94	11.68		
Forage de Leclerc Turonien	n	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2
	Mean	7.152	14.95	581	5.13	105.28	5.33	341.91	14.74	5.20	12.97	13.78	0.09	2.01	-12.28	619.50
	Min	7.146	14.90	580	5.06	105.06	5.31	341.26	14.70	5.05	12.96	13.76	0.09	1.99	-12.31	294.00
	Max	7.157	15.00	582	5.19	105.50	5.35	342.56	14.78	5.35	12.97	13.80	0.10	2.02	-12.26	945.00
	σ	0.0	0.07	1.4	0.09	0.31	0.03	0.92	0.06	0.21	0.01	0.03	0.01	0.03	0.03	460.33
	CV (%)	0.1	0.47	0.2	1.79	0.30	0.59	0.27	0.39	4.11	0.07	0.21	8.74	1.27	-0.26	74.31
Forage de St Laurent sur Manoire Jur. moyen	n	19	12	11		12	12	12	12	12	19	12				
	Mean	7.324	17.45	531		86.11	16.18	321.58	10.21	5.53	5.17	14.48				
	Min	7.150	12.00	520		81.30	14.60	315.00	9.40	4.20	4.20	5.70				
	Max	7.700	20.00	545		92.00	17.60	345.00	11.00	7.20	6.80	17.60				
	σ	0.1	2.20	7.4		3.16	0.96	8.83	0.53	0.96	0.65	3.05				
	CV (%)	1.8	12.61	1.4		3.67	5.91	2.74	5.19	17.45	12.51	21.03				
Forage de Château l'Evêque Jur. Moyen	n	28	27	29	14	22	22	22	23	22	32	13				
	Mean	7.374	16.84	558	5.01	96.12	13.86	338.37	11.70	8.98	8.23	15.66				
	Min	7.000	15.50	481	1.21	87.00	10.00	320.86	10.00	7.50	4.40	13.40				
	Max	7.800	19.00	587	7.72	110.00	17.10	348.92	20.60	10.00	14.00	19.20				
	σ	0.2	0.84	18.3	2.19	6.11	1.65	6.45	2.12	0.70	2.41	1.57				
	CV (%)	3.3	4.97	3.3	43.73	6.36	11.93	1.91	18.12	7.81	29.33	10.02				
Forage de Lesparat Jur. Moyen	n	33	26	26	15	27	27	27	27	33	35	17				
	Mean	7.327	21.12	545	2.40	77.04	23.53	335.37	11.21	6.92	4.86	15.96				
	Min	6.790	17.00	519	0.48	68.00	21.00	324.00	9.80	5.60	4.10	7.30				
	Max	8.000	22.40	575	3.69	82.80	25.00	358.00	12.40	9.60	5.50	18.40				
	σ	0.3	1.20	14.6	0.80	3.17	1.08	5.89	0.54	0.73	0.36	2.60				
	CV (%)	4.1	5.7	2.7	4.1	4.6	1.8	4.8	10.5	7.5	7.5	16.3				

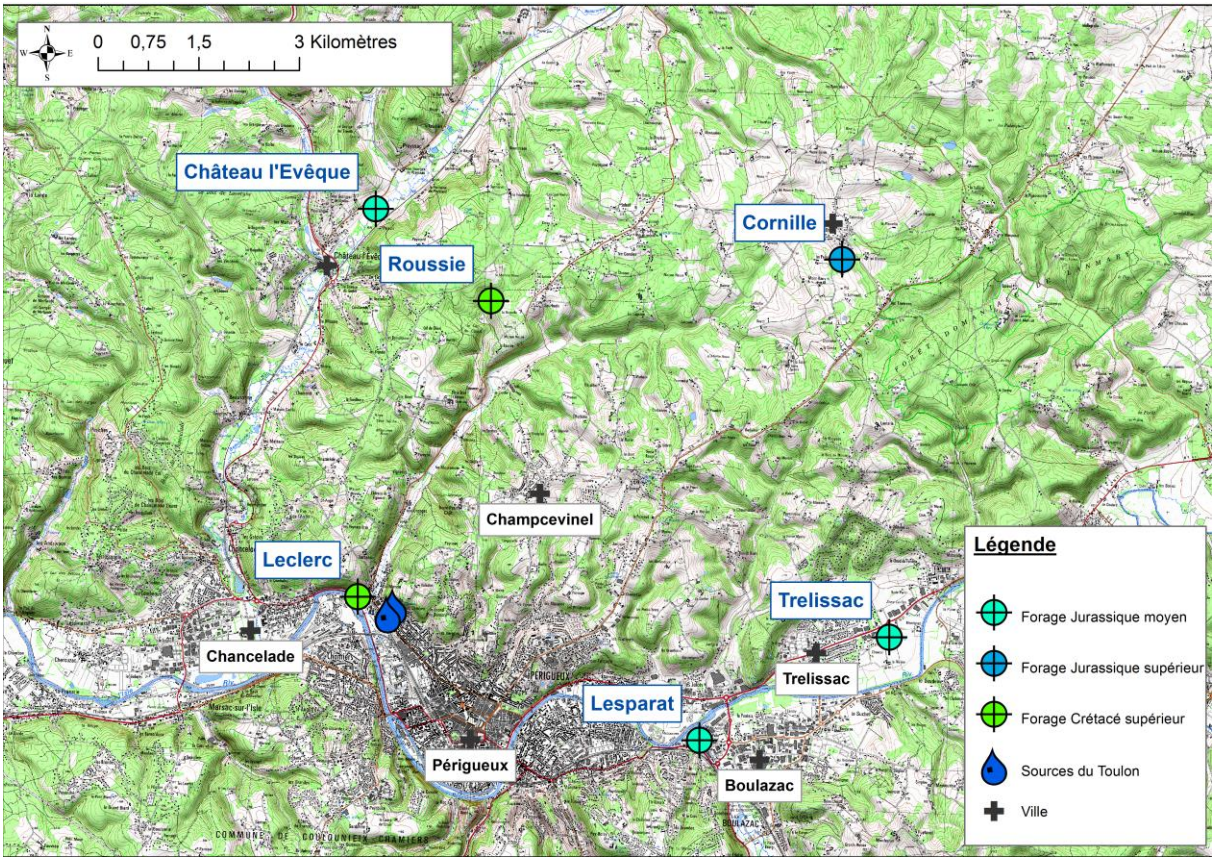


Figure 37 : Localisation des forages prélevés ou analysés pendant ces travaux.

2.2.2 Présentation des différents types d'eaux des aquifères de la zone d'étude par utilisation des données des forages profonds

Les informations fournies par les forages profonds de la zone d'étude permettent d'identifier les faciès des eaux dans les principaux aquifères du grand multicouche Nord Aquitain.

Les eaux prélevées dans les forages de la Roussie et de Leclerc sont représentatives des eaux de l'aquifères du **Crétacé supérieur**. Leur faciès général est similaire, et est bicarbonaté calcique. Ces deux forages se distinguent par leur position géographique et par les horizons géologiques qu'ils captent. Le forage de la Roussie est localisée en amont hydraulique des Sources du Toulon, et capte les eaux provenant des horizons du Coniacien et du Turonien. Le forage de Leclerc est localisé à quelques centaines de mètres à l'Ouest, en aval hydraulique des Sources du Toulon, et offre une fenêtre d'observation sur la signature géochimique de la nappe du Turonien.

Les eaux issues du Crétacé supérieur se caractérisent par des concentrations en magnésium faibles, avec une teneur maximale de 5.19 $mg.L^{-1}$ mesurée au niveau du forage Leclerc. Les eaux sont généralement oxiques (supérieur à 5.00 $mg.L^{-1}$), et possèdent des concentrations parfois élevées causée par la présence importante d'éléments détritiques dans l'encaissant.

Dans le compartiment sous jacent, les différents forages utilisés captent les aquifères du **Jurassique supérieur** (Cornille), et du **Jurassique moyen** (Lesparat, Château l'Evêque, Saint-Laurent-sur-Manoire, et Trélissac-La Rivière).

Le forage de Cornille ne capte pas uniquement l'aquifère du Jurassique supérieur, mais il capte aussi la partie basale du Turonien. Lors du pompage il est alors possible d'identifier différentes signatures géochimiques en fonction du temps de vidange. Une vidange courte permettra de mobiliser majoritairement des eaux du Turonien, et une vidange plus longue permettra d'accéder à des eaux représentatives de l'aquifère du Jurassique supérieur. Les deux prélèvements réalisés dans ce forage (le premier après une vidange de 1h30 et le deuxième après une vidange de 3 jours) sont ainsi représentatifs des deux aquifères. Le premier montre des signatures plus importantes du Turonien par rapport au Jurassique supérieur, caractérisées par des concentrations en Mg^{2+} faibles (5.69 $mg.L^{-1}$) et des teneurs en nitrates plus élevées (13.14 $mg.L^{-1}$). Le deuxième, réalisé après une vidange de longue durée, montre une chimie des eaux différente du premier, et est plus représentatif des eaux du Jurassique supérieur. La concentration en Mg^{2+} est cette fois de 21.12 $mg.L^{-1}$ et les nitrates ne sont quasiment plus présents (1.32 $mg.L^{-1}$).

Les forages qui captent l'aquifère du Jurassique moyen sont utilisés aujourd'hui pour l'alimentation en eau potable. Comme évoque dans le Chapitre 2, ces forages tous captés initialement l'aquifère du Jurassique supérieur, mais des changements de qualité d'eau brute ont été mesurés après les mises en exploitation des captages, avec des apparitions de nitrates, d'éléments bactériologiques de turbidité, et des diminutions de température (Pelissier-Hermitte, 1983 ; S.H.E, 1998, 2001, 2014). L'influence de l'aquifère libre du Crétacé a été supposé pour expliquer ces anomalies. Ces forages ont tous subi des travaux de réhabilitation et d'approfondissement pour aller capter l'aquifère du Jurassique moyen afin de fournir une eau de meilleure qualité. L'eau du forage de Trélissac-La Rivière est considérée comme la plus représentative du faciès du Jurassique moyen, avec une teneur en oxygène dissous quasi nulle (0.06 $mg.L^{-1}$), une contamination par les nitrates inexistante, et une concentration en magnésium de 22.09 $mg.L^{-1}$. Cette concentration élevée en magnésium est généralement retrouvée dans les eaux du Jurassique comme c'est le cas dans les autres forages (entre 21 $mg.L^{-1}$ et 25 $mg.L^{-1}$ au forage de Lesparat. Cependant, les autres ouvrages possèdent des teneurs moyennes en magnésium inférieures, respectivement de 16.18 $mg.L^{-1}$ et 13.86 $mg.L^{-1}$ pour les forages de Saint Laurent sur Manoire et Château l'Evêque. Ce dernier ouvrage possède d'ailleurs de nombreuses anomalies (température, oxygène dissous, nitrates) laissant supposer une communication privilégiée avec l'aquifère du Crétacé supérieur. =

Ces ouvrages, encore trop peu étudiés aujourd'hui, ne permettent de discriminer qualitativement les eaux du Jurassique moyen et du Jurassique supérieur. Les relations hydrogéologiques potentielles entre les aquifères complexifient l'utilisation des données de ces forages ; l'utilisateur restant constamment confronté à la question de l'aquifère capté.

La source du Stade COPO, émergeant sur la zone d'étude et présentée initialement dans le Chapitre 2, est considérée comme représentative d'un horizon profond et captif en provenance du Jurassique.

2.2.3 Analyse des différents type d'eau identifiés aux Sources du Toulon

L'analyse des paramètres physico-chimiques mesurés aux Sources du Toulon (Figure 38) distingue deux principaux types d'eau : (i) une signature typique des périodes de basses eaux, avec des eaux de bonne qualité ; (ii) une signature typique des périodes de hautes eaux, présentant des indices de contamination de surface, illustrant les réponses rapides du système karstique.

Les eaux d'étiage sont généralement mesurées pendant l'été et l'automne, et se distinguent par des eaux plus chaudes (~14.40 °C) comparées aux sources régionales (~12.5 °C) comme décrit par Peyraube et *al.*, (2012, 2013) et Houillon et *al.*, (2017). Cette température plus importante est à relier avec nature vauclusienne de l'émergence et d'une remontée d'eau d'environ 60 mètres d'après le gradient thermique local (environ 3°C par 100 mètres, en considérant une température moyenne de l'air de 12.52 °C). Les eaux d'étiage sont caractérisées par des concentrations en magnésium élevées (~12.00 $mg.L^{-1}$) et par de faibles concentrations en oxygène dissous (~4.00 $mg.L^{-1}$). La conductivité électrique et les concentrations en bicarbonate sont globalement stables (~590 $\mu S.cm^{-1}$ et ~345.00 $mg.L^{-1}$). Elles sont associées à de faibles débits et présentent une meilleure qualité que celles de hautes eaux. La turbidité est en dessous du seuil de potabilité donné par les normes françaises (~0.20 NTU). Pendant cette période, les eaux sont à l'équilibre avec la calcite (~0.00), ont une pression partielle de CO_2 (P_{CO2}) plus faible que pendant les hautes eaux (~2.50 %), et ont des compositions isotopiques en $\delta^{13}C_{-CID}$ plus enrichies (~-11.00 ‰).

Malgré les similarités observées à chaque étiage des cycles hydrologiques, le contexte climatique impose les variabilités mesurées sur les réponses hydrochimiques aux Sources du Toulon au cours du cycle hydrologique.

Les eaux de hautes eaux sont généralement mesurées pendant l'hiver et le printemps. Pendant cette période, les fortes intensités pluvieuses engendrent des variations hydrochimiques rapides aux Sources du Toulon, associées à la recharge de l'aquifère. Les évènements pluvieux génèrent des crues de plus ou moins grandes amplitude et durée aux Sources du Toulon. Les réponses hydrochimiques pendant les crues sont assez similaires d'un cycle à l'autre (Figure 38) :

1) L'effet piston cause une augmentation de turbidité et une mobilisation d'eau plus minéralisée stockée dans la zone saturée. Cette arrivée d'eau est caractérisée par une augmentation de conductivité électrique (~605 $\mu S.cm^{-1}$) ;
2) ensuite, le transfert de masse provoque une diminution de la minéralisation, illustrée par une diminution de la conductivité électrique (~520 $\mu S.cm^{-1}$), de la concentration en bicarbonate (~290 $mg.L^{-1}$) et de la concentration en magnésium (~3.00 $mg.L^{-1}$). La diminution de la température (~12.8 °C), et l'augmentation d'oxygène dissous (~7.50 $mg.L^{-1}$) et de carbone organique dissous (~2.50 $mg.L^{-1}$) caractérise une infiltration rapide provenant du compartiment de subsurface. Les eaux transitant pendant les crues sont généralement sous-saturées vis-à-vis de la calcite (~ -0.25 $mg.L^{-1}$), possèdent une P_{CO2} plus importante que pendant la période de basses eaux (~3.8 %), et sont plus appauvries en $\delta^{13}C_{-CID}$ (~ -14.00 ‰).

Une analyse plus complète du fonctionnement hydrogéologique des Sources du Toulon pendant les crues est proposée dans le chapitre suivant.

Du point de vue de la vulnérabilité de la ressource en eau, les périodes de hautes eaux sont les périodes les plus vulnérables. Les augmentations de nitrates et de carbone organique dissous illustrent une arrivée d'eau pouvant provenir des horizons de surface. Associés à ces paramètres, il est possible d'imaginer que d'autres contaminants peuvent être associés, tels que des éléments bactériens.

Les Chapitres suivants visent à caractériser la vulnérabilité des Sources du Toulon vis-à-vis des nitrates (Chapitre 5) et des éléments bactériologiques (Chapitre 6).

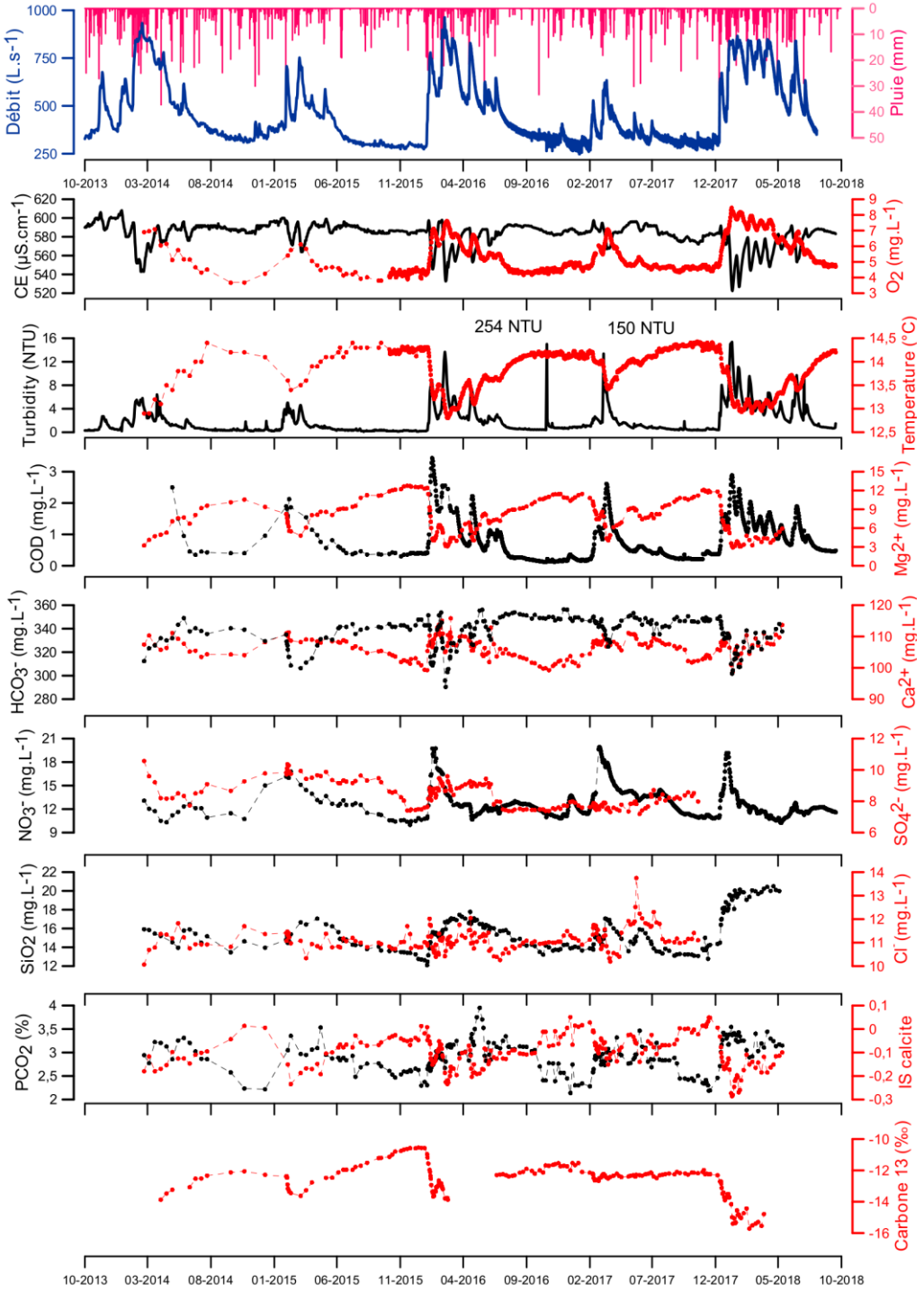


Figure 38 : Evolution temporelle des débits et des paramètres physico-chimiques mesurés aux Sources du Toulon d'octobre 2013 à septembre 2018.

2.2.4 Comparaison des signatures géochimiques des sources de la zone d'étude

Une analyse en composante principale (ACP) est réalisée à partir des données des Sources du Toulon, et des autres types d'eau de la zone d'étude (Figure 39) : (i) la source du stade COPO, représentative des eaux de l'aquifère du Jurassique ; (ii) la fontaine du Godet, représentative des eaux subsuperficielles du Crétacé supérieur, (iii) la source de la Clavelie, représentative de la zone saturée du Crétacé supérieur. Les évolutions temporelles des paramètres physico-chimiques de ces sources sont fournies en Annexe 4 : Evolution temporelle des paramètres physico chimiques des sources de Godet, Clavelie, et COPO.

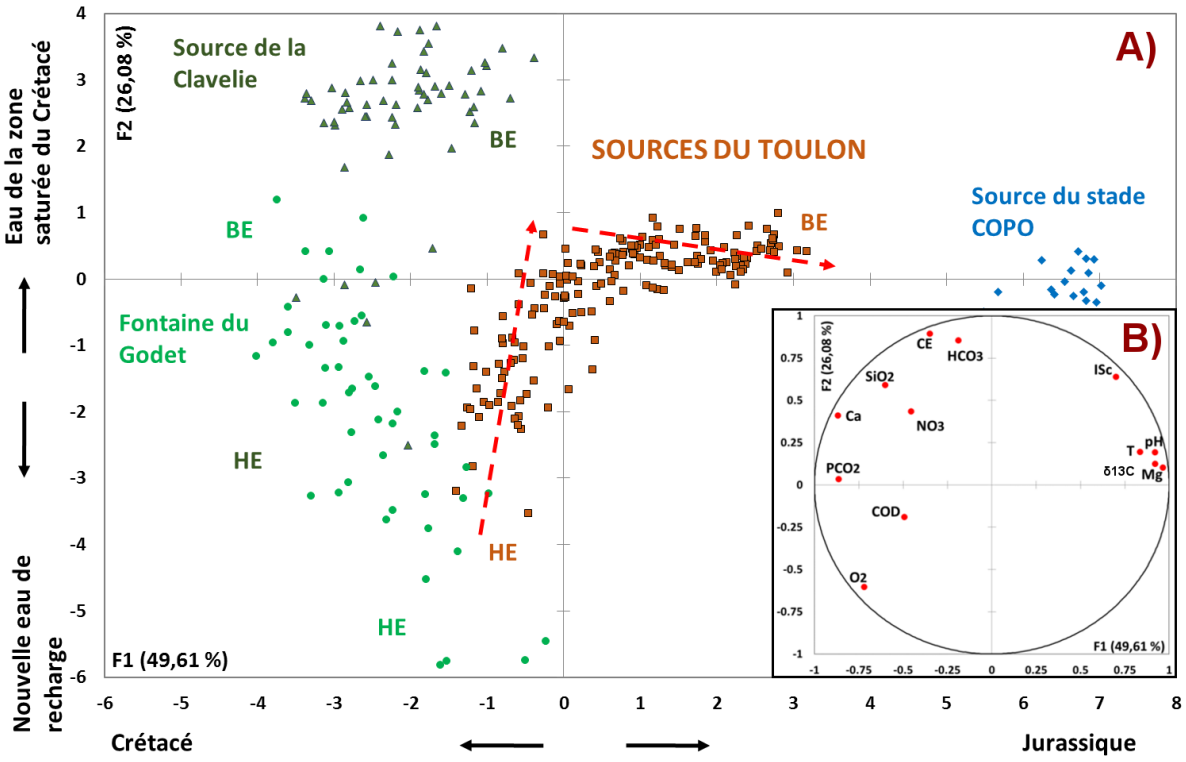


Figure 39 : A) Espace des individus dans le premier plan factoriel établi à partir des échantillons d'eaux des Sources du Toulon, de la fontaine du Godet, de la source de la Clavelie, et de la source du stade COPO. B) Espace des variables dans le premier plan factoriel. HE : Hautes eaux. BE : Basses eaux.

L'ACP est réalisée avec 375 échantillons (233 des Sources du Toulon, 62 de la fontaine du Godet, 61 de la source de la Clavelie, 19 de la source du stade COPO), et 13 variables (T, pH, O_2, CE, Ca, Mg, HCO_3, NO_3, SiO_2, COD, ISc, PCO_2, $\delta^{13}C_{\text{-CID}}$). Les deux premiers axes factoriels expliquent 75.69 % de la variance expliquée.

Le premier axe factoriel (F1) est expliqué par T, pH, ISc, Mg, et $\delta^{13}C_{\text{-CID}}$ dans sa partie positive, et par Ca, SiO_2, PCO_2 et O_2 dans sa partie négative. Les origines des eaux peuvent être associées à l'axe F1 : « eaux du Jurassique » dans la partie positive, « eaux du Crétacé » dans la partie négative. En allant vers la partie positive, la proportion d'eau en provenance du Jurassique augmente.

Le deuxième axe factoriel (F2) est expliqué par CE et HCO_3 dans sa partie positive, et par O_2 et COD dans sa partie négative. Il représente les « eaux de la zone saturée du Crétacé » dans la partie positive, et les « nouvelles eaux de recharge » dans la partie négative.

Les eaux de la fontaine du Godet sont étalées entre deux pôles (Figure 39) : (i) les nouvelles eaux de recharge pendant la période de hautes eaux ; (ii) les eaux de la zone saturée du Crétacé supérieur pendant la période de basses eaux. La fontaine du Godet peut être considérée comme un bon exemple de source alimentée par un aquifère unique.

Les eaux de la source de la Clavelie sont principalement localisées dans la partie positive de l'axe F2 et peuvent être considérées comme des eaux appartenant à la zone saturée de l'aquifère du Crétacé supérieur (Figure 39). Cependant, pendant les périodes de hautes eaux, les eaux peuvent bouger vers la partie négative de l'axe F2, associées à une participation de nouvelles eaux de recharge.

Les eaux du stade COPO sont uniquement positionnées dans la partie positive de l'axe F1 et constituent le pôle « eaux du Jurassique » (Figure 39). Ces eaux montrent peu de variation hydrochimique. Elles sont caractérisées par une température élevée (~20.40 °C), une forte concentration en Mg (~22.30 $mg.L^{-1}$), une faible teneur en O_2. (~1.60 $mg.L^{-1}$), et un $\delta^{13}C_{-CID}$ enrichi (~ -8 ‰).

Les eaux des Sources du Toulon sont dispersées le long de 3 pôles représentés dans l'ACP (Figure 39) :

1) pendant les périodes de hautes eaux, les « nouvelles eaux de recharge » expliquent principalement les eaux qui s'écoulent aux Sources du Toulon ;
2) pendant la décrue, les eaux évoluent vers la partie positive de l'axe F2. La proportion des « nouvelles eaux de recharge » diminue à la faveur des « eaux de la zone saturée du Crétacé supérieur » ;
3) pendant l'étiage, les eaux qui s'écoulent aux Sources du Toulon évoluent vers la partie positive de l'axe F1, illustrant un mélange des « eaux de la zone saturée du Crétacé supérieur » avec les « eaux du Jurassique ».

2.2.5 Relation Magnésium – Oxygène dissous dans l'aquifère karstique multicouche du Toulon

Les fortes teneurs en magnésium mesurées aux Sources du Toulon pendant les périodes des basses eaux ne sont pas communes aux eaux de l'aquifère du Turonien en Dordogne. Récemment, des études locales (Peyraube et *al.*, 2012 ; Houillon, 2016) ont montré de faibles concentrations en magnésium dans les aquifères du Crétacé supérieur (moins de 5.00 $mg.L^{-1}$, en l'absence de dolomite). De plus, des prélèvements réalisés dans des forages du Turonien (forage de la Roussie, forage du Leclerc du Toulon) n'ont pas montré de teneurs en magnésium supérieur à 5.00 $mg.L^{-1}$. La question de l'origine du magnésium aux Sources du Toulon est une des principales questions liées à leur fonctionnement hydrogéologique. De fortes concentrations en magnésium sont uniquement mesurées dans l'aquifère captif du Jurassique (plus de 15 $mg.L^{-1}$, dues à la présence de calcite magnésienne). Le contexte hydrogéologique complexe, associé aux possibles relations hydrogéologiques entre les aquifères du Jurassique et du Crétacé supérieur rend difficile la compréhension de l'origine du magnésium à l'exutoire du système karstique du Toulon.

L'oxygène dissous est un paramètre pertinent pour le système karstique du Toulon. Habituellement, dans les aquifères karstiques, les bonnes connexions avec l'atmosphère impliquent des eaux oxiques à l'exutoire des systèmes karstiques (Perrin et *al.*, 2007 ; Mahler et *al.*, 2011 ; Musgrove et *al.*, 2011). La mobilisation d'eau d'origine profonde pourrait être responsable des faibles concentrations en oxygène dissous mesurées aux Sources du Toulon pendant les périodes de basses eaux. Ce phénomène a déjà été observé aux Sources Barton (Texas, USA) (Estefanía Lazo-Herenda et *al.*, 2011 ; Mahler et Bourgeais, 2013).

La comparaison des concentrations en oxygène dissous et en magnésium (Figure 40) aux sources présentées précédemment montre que l'oxygène dissous seule n'est pas un paramètre indiquant la mobilisation d'une eau d'origine profonde. La source de la Clavelie, représentative de l'eau de la zone saturée du Crétacé supérieur, possède des teneurs en oxygène dissous similaires à celles mesurées aux Sources du Toulon. Cependant, ses concentrations en magnésium sont largement plus faibles (5.88 $mg.L^{-1}$ le 08/12/2015, c'est-à-dire à la fin de la période de basses eaux). Pendant la période de hautes eaux, les eaux des sources de Clavelie et Toulon sont très proches dans le diagramme $Mg_{vs}O_2$ (Figure 40), confirmant l'origine similaire de ces eaux comme indiqué dans l'ACP présentée précédemment (Figure 39). Pendant la période de basses eaux, le diagramme $Mg_{vs}O_2$ (Figure 40) identifie deux lignes distinctes partant des eaux de hautes eaux des Sources du Toulon : (i) la première allant vers les eaux de la source du stade COPO, illustrant un mélange avec les eaux de l'aquifère captif du Jurassique ; (ii) la deuxième allant vers les eaux de basses eaux de la Source de la Clavelie, illustrant le temps de résidence dans l'aquifère et la dissolution de la calcite-magnésienne.

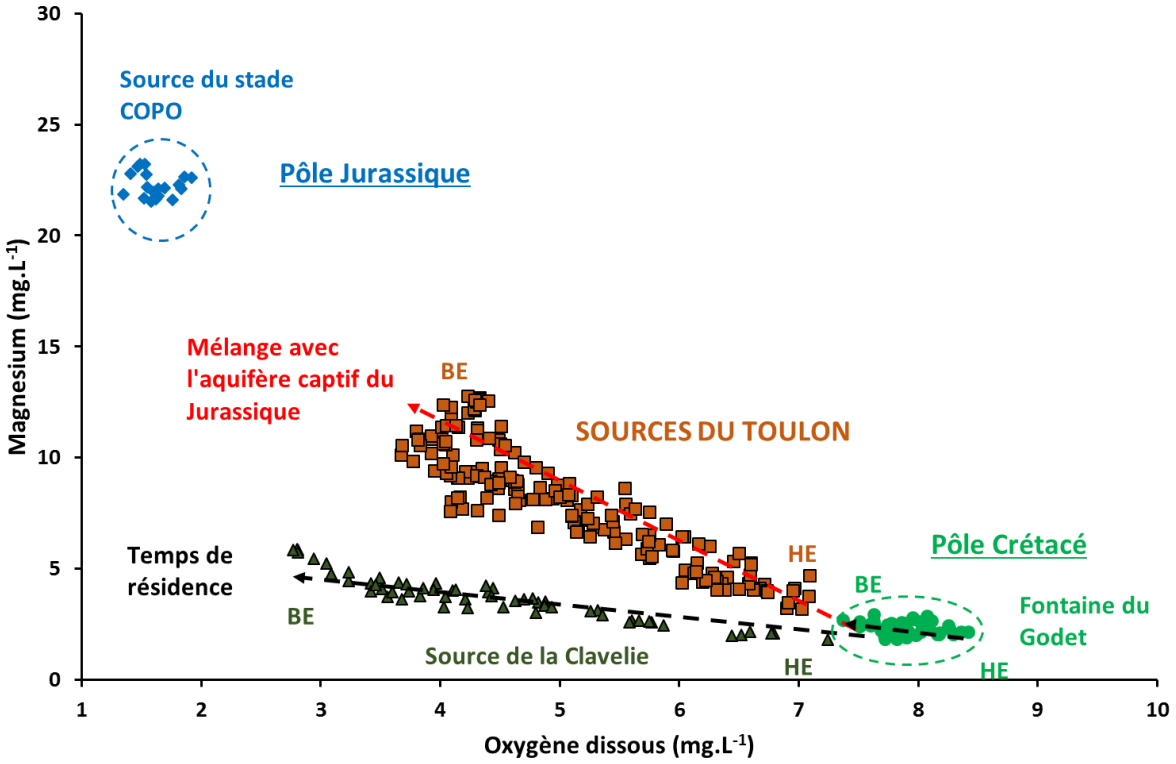


Figure 40 :Diagramme magnésium vs oxygène dissous. La flèche rouge illustre le mélange des eaux du Crétacé supérieur avec l'aquifère captif du Jurassique. La flèche noir illustre l'évolution des eaux du Cétacé supérieur vers des eaux à temps de résidence plus long, sans influence d'un autre aquifère. HE : Hautes eaux. BE : Basses eaux.

2.2.6 La datation des eaux souterraines locales et les origines des eaux des Sources du Toulon

Les résultats précédents illustrent la difficulté de distinguer les aquifères alimentant les Sources du Toulon, en particulier pour les aquifères captifs du Jurassique supérieur et Jurassique moyen. Les datations réalisées sur les eaux locales peuvent être utilisées pour tenter de préciser cette participation.

Peu de données de datation sont disponibles sur les eaux de Dordogne dans la littérature. Une étude du BRGM (Chigot et Mazurier, 1992) a permis une première datation

au carbone 14 (^{14}C) des eaux souterraines profondes en Dordogne. Dans ces travaux, l'intégralité des prélèvements ont été réalisés sur des eaux d'aquifères captifs (Jurassique moyen, Jurassique supérieur, Crétacé supérieur, et Eocène). Les données issues des eaux des aquifères captifs du Crétacé supérieur et de l'Eocène ne sont pas utilisables. Ne seront utilisés ici que les eaux prevenant des aquifères du Jurassique moyen et du Jurassique supérieur. Seules ces données sont présentées en Figure 41 et Tableau 13.

Une datation au ^{14}C a été réalisée lors de la réalisation du forage de Château l'Evêque (Figure 41) (SHE, 2001). Elle a été réalisée lors de la création de l'ouvrage, pendant la traversée du Jurassique supérieur.

Une dernière datation au ^{14}C est réalisée sur les Sources du Toulon le 21/10/2017, à la fin de la période d'étiage.

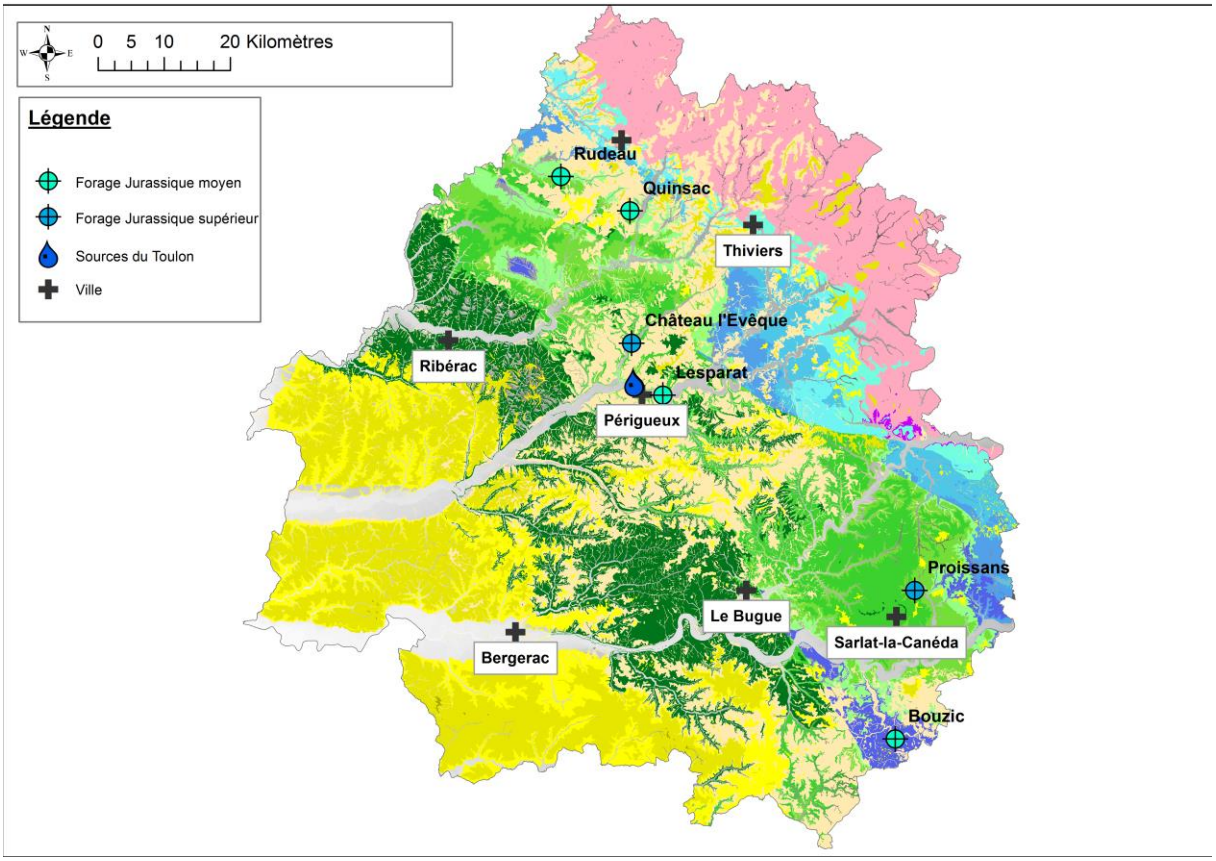


Figure 41 : Localisation des ouvrages ayant été échantillonnés pour une datation des eaux.

Tableau 13 : Synthèse des datations au carbone 14 réalisés sur des ouvrages de Dordogne. N.A. : non analysé.

Nom usuel du point de mesure	Type	Numéro BSS	Aquifère capté	Datation carbone 14 (an)	$\delta^{13}C_{-CMTD}$ (‰)	Références
Rudeau	Forage	BSS001VDSG	Jurassique moyen	6 180	-12.50	Chigot et Mazurier, 1992
Lesparat	Forage	BSS001WDRG	Jurassique moyen	12 930	-9.30	Chigot et Mazurier, 1992
Quinsac	Forage	BSS001VEAV	Jurassique moyen	11 800	-11.10	Chigot et Mazurier, 1992
Bouzic	Forage	BSS001ZRBB	Jurassique moyen	10 000	-10.80	Chigot et Mazurier, 1992
Proissans	Forage	BSS001YSBQ	Jurassique supérieur	1 240	-13.20	Chigot et Mazurier, 1992
Château l'Evêque	Forage	BSS001WDJB	Jurassique supérieur	2 800	N.A.	S.H.E., 2001
Sources du Toulon	**Source**	**BSS001WDGM**	**-**	**4 480**	**-10.80**	**Thèse Guillaume LORETTE**

Les résultats des datations donnent des âges relatifs variant pour les différents compartiments de l'aquifère mulitcouche du Jurassique. Pour le Jurassique moyen, les âges relatifs mesurés sont compris entre 6 180 ans (Forage de Rudeau) et 12 930 ans (Forage de

Lesparat). Les eaux du Jurassique supérieur possèdent elles des âges relatifs plus jeunes, compris entre 1 240 ans (Proissans) et 2 800 ans (forage de Château l'Evêque).

L'âge relatif, de 4 480 ans, mesuré aux Sources du Toulon est un constat très original pour une source karstique. Généralement, les eaux sont datées de quelques années, à quelques dizaines d'années, témoignant de la participation majoritaire d'eaux récentes. Cette datation traduit un mélange entre une eau récente et une eau probablement plus ancienne. La présence de certains éléments dissous comme des nitrates soulignent bien la notion d'âge relatif des eaux souterraines.

Les aquifères qui contribuent à l'alimentation des Sources du Toulon restent encore à définir avec précision, mais plusieurs hypothèses peuvent être posées :

- la participation du Jurassique moyen (daté à 12 930 ans au forage de Lesparat à Boulazac) est importante période de basses eaux, sinon les eaux possèderaient un âge se raprochant de ceux mesurés dans le Jurassique supérieur ;
- le peu de mesures effectuées ne sont pas représentatives de l'âge des eaux du Jurassique supérieur, et ces dernières seraient en réalité plus vieilles. Dans ce cas, une participation du Jurassique moyen ne serait pas nécessaire.

Les données de datation semblent être un meilleur outil que la géochimie classique pour discriminer les eaux provenant de l'aquifère du Jurassique supérieur de celles du Jurassique moyen.

2.3 Schéma conceptuel de fonctionnement hydrogéologique des Sources du Toulon

Le contexte hydrogéologique du système karstique du Toulon inclut deux aquifères karstiques multicouches : (i) un aquifère multicouche calcaire du Crétacé supérieur, fracturé et karstifié (Turonien, Coniacien, Santonien) ; (ii) un aquifère karstique multicouche à dominance dolomitique du Jurassique (Bajocien, Bathonien, Oxfordien, Kimméridgien). L'approche mise en place dans ce travail vise à évaluer les relations entre ces deux aquifères multicouches.

La première étape a été d'identifier le comportement inertiel des Sources du Toulon pendant les périodes de basses eaux, associé à un volume dynamique important (analyse des courbes de récession et analyse corrélatoire simple). Ces caractéristiques ne sont pas habituelles pour un système karstique, soulignant le potentiel de ce système en termes d'alimentation en eau potable. Une partie de ce travail a permis d'évaluer la composante d'écoulement rapide pendant les périodes de crue (analyse corrélatoire croisé), illustrant le caractère vulnérable de cette ressource, par transfert rapide de potentiels contaminants.

La deuxième étape a été d'évaluer les caractéristiques physico-chimiques naturelles des eaux. Deux principaux types d'eau ont été mis en évidence : (i) un premier pendant la période de basses eaux, associé à une eau ancienne d'origine profonde de bonne qualité ; (ii) un deuxième pendant les périodes de haute eaux, associé aux infiltrations rapides des eaux de subsurface. La comparaison des signatures hydrochimiques observées sur la zone d'étude (ACP) a permis d'identifier l'alimentation multiréservoirs des Sources du Toulon (Figure 42) par : (i) l'aquifère multicouche captif et profond du Jurassique (supérieur et moyen) ; (ii) l'aquifère libre du Crétacé supérieur. Les taux de contribution de chaque aquifère diffèrent

suivant les conditions hydrologiques. La participation du Jurassique est plus importante pendant la période de basses eaux (Figure 42B), et la participation du Crétacé supérieur est majoritaire pendant la période de hautes eaux (Figure 42A). La distinction de la contribution des aquifères du Jurassique supérieur et du Jurassique moyen n'est actuellement pas possible.

Le contexte géologique de bordure de bassin sédimentaire, implique des difficultés dans l'évaluation de la recharge des aquifères profonds. Sur la zone d'étude, les aquifères du Jurassique supérieur et du Crétacé supérieur sont supposés séparés par les formations du Cénomanien (Figure 22 du Chapitre 2). En amont des Sources du Toulon, la recharge de l'aquifère du Jurassique supérieur peut s'opérer dans la partie libre du Crétacé supérieur si : (i) le Cénomanien n'est plus imperméable (localement sableux) ; (ii) si la charge piézométrique du Crétacé supérieur est supérieure à celle du Jurassique supérieur. Le manque de données précises sur les variations lithologiques du Cénomanien, ou sur les charges piézométriques des aquifères ne permet pas actuellement d'aller plus loin sur cette question.

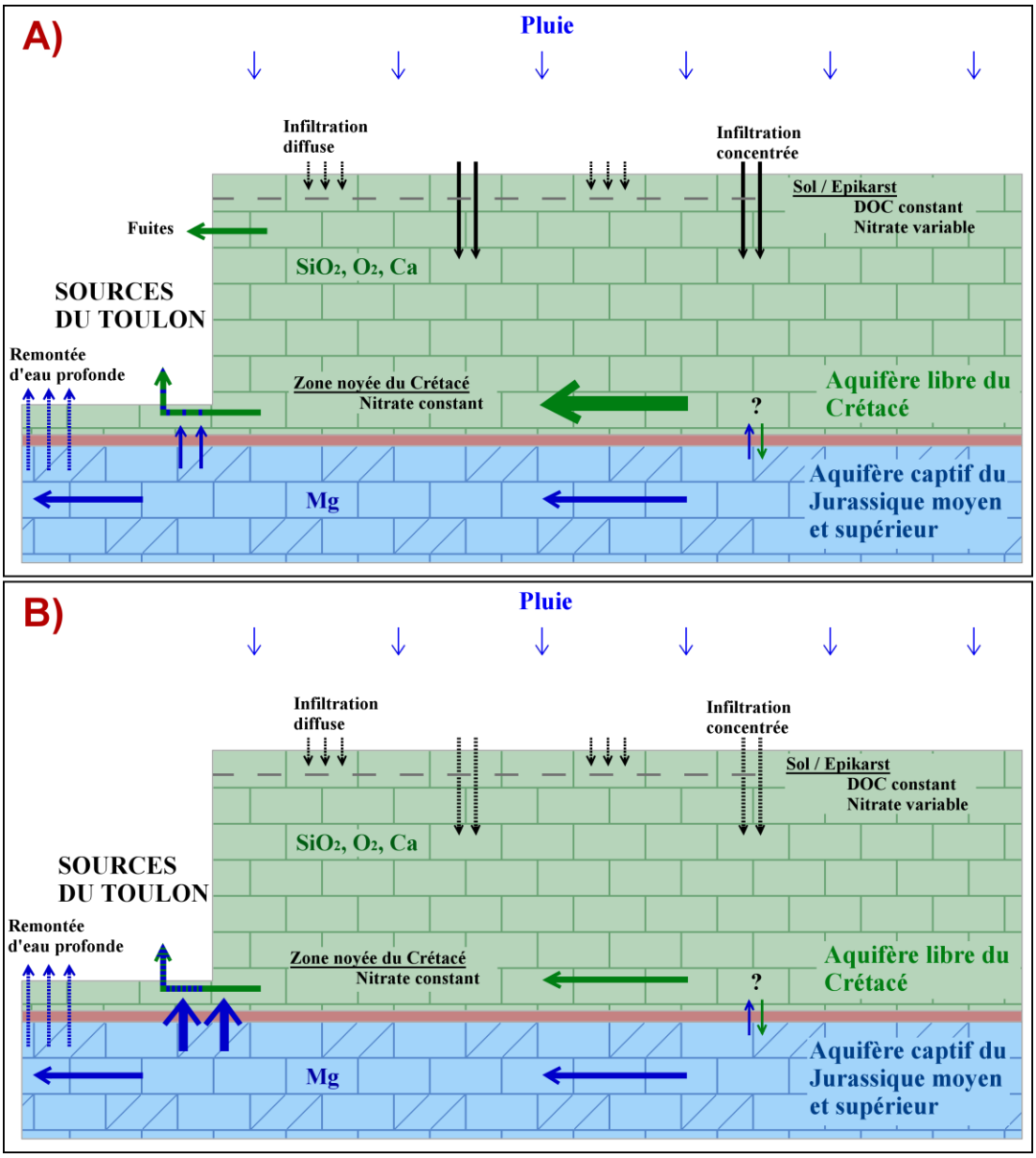


Figure 42 : Schéma conceptuel de fonctionnement hydrogéologique du système karstique du Toulon. A) période de hautes eaux. B) période de basses eaux.

3. Vers une meilleure délimitation des bassins d'alimentation des systèmes karstiques à alimentation multiréservoirs

La mise en évidence de l'alimentation multiréservoirs des Sources du Toulon nécessite une adaptation de certains concepts hydrogéologiques tels que le bilan hydrologique. La participation d'eau plurimillénaire réfute la méthodologie classique du bilan hydrologique réalisée à l'échelle annuelle ou pluriannuelle. Cette méthodologie se doit d'être adaptée en ne tenant compte uniquement des volumes engendrés par les infiltrations récentes. Pour cela, cette partie propose une méthodologie innovante pour orienter la réflexion vers une meilleure délimitation des bassins d'alimentation des systèmes karstiques à alimentation multiréservoirs.

La méthodologie propose de décomposer l'hydrogramme de crue pour en extraire les volumes d'eau issus des infiltrations au cours de l'année. A partir de ces volumes, des bilans hydrologiques sont réalisés pour estimer la surface théorique nécessaire à leur restitution. Des traçages artificiels à partir des points de surface sont intégrés dans la réflexion pour préciser certaines directions d'écoulement en souterrain. Enfin, ces résultats sont intégrés dans le cadre hydrogéologique régional pour proposer une nouvelle délimitation du bassin d'alimentation des Sources du Toulon.

3.1 Décomposition de l'hydrogramme au cours du cycle hydrologique

Une décomposition de l'hydrogramme entre octobre 2013 et septembre 2018 est réalisée. Cette décomposition est réalisée par projection orthogonale entre deux pôles. Le diagramme $O_{2vs}Mg$ présenté dans la Figure 40, est utilisé à nouveau pour réaliser cette décomposition. Les deux pôles choisis sont : (i) la source du Stade COPO, représentatif de l'aquifère du Jurassique captif ; (ii) la fontaine du Godet, représentatif des apports d'eau par infiltration à travers le Crétacé supérieur. L'illustration théorique de la projection orthogonale est proposée en Figure 43A. Chaque prélèvement réalisé aux Sources du Toulon sur la période d'étude a subi une projection orthogonale sur l'axe entre les deux pôles (Figure 43B) permettant le calcul d'une estimation du pourcentage de participation de chacun des pôles (Figure 43A).

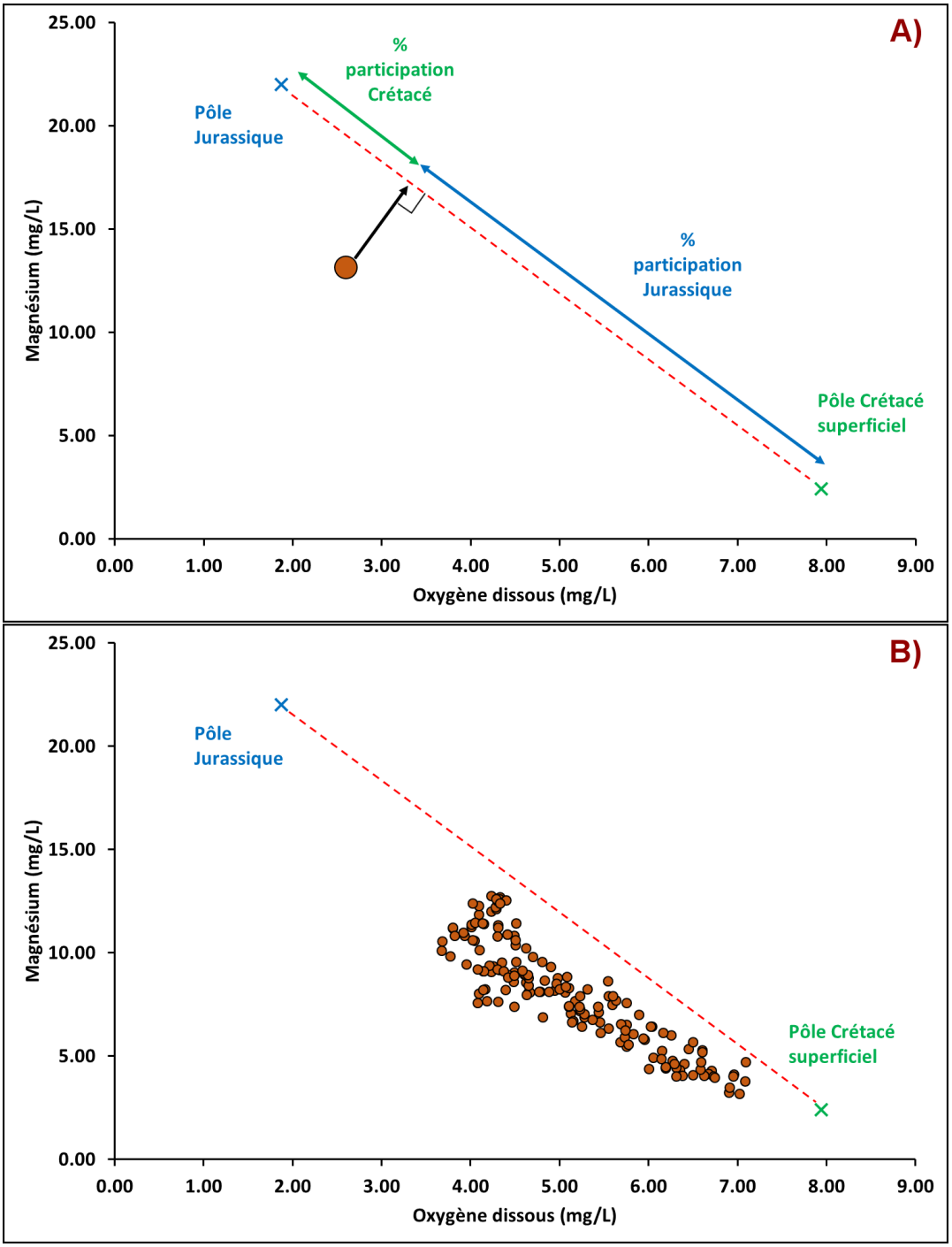


Figure 43 : Méthodologie de calcul de participation de chaque pôle au débit des Sources du Toulon. A) théorie. B) application.

Les débits journaliers mesurés aux Sources du Toulon permettent, à partir du pourcentage de participation de chacun des pôles, d'estimer le volume de participation de chaque pôle (Figure 44B). Cette décomposition confirme les interprétations proposées dans les parties précédentes où l'aquifère du Crétacé supérieur serait responsable des variations hydrodynamiques et hydrochimiques mesurées pendant les crues. Elle est également en accord avec l'interprétation qui est réalisée sur le rôle de l'aquifère du Jurassique sur le soutien du débit d'étiage des Sources du Toulon. Ce soutien est estimé par décomposition de l'hydrogramme en moyenne à environ 12 000 $m^3.j^{-1}$, et peut être compris entre 6 000 $m^3.j^{-1}$ et plus de 20 000 $m^3.j^{-1}$.

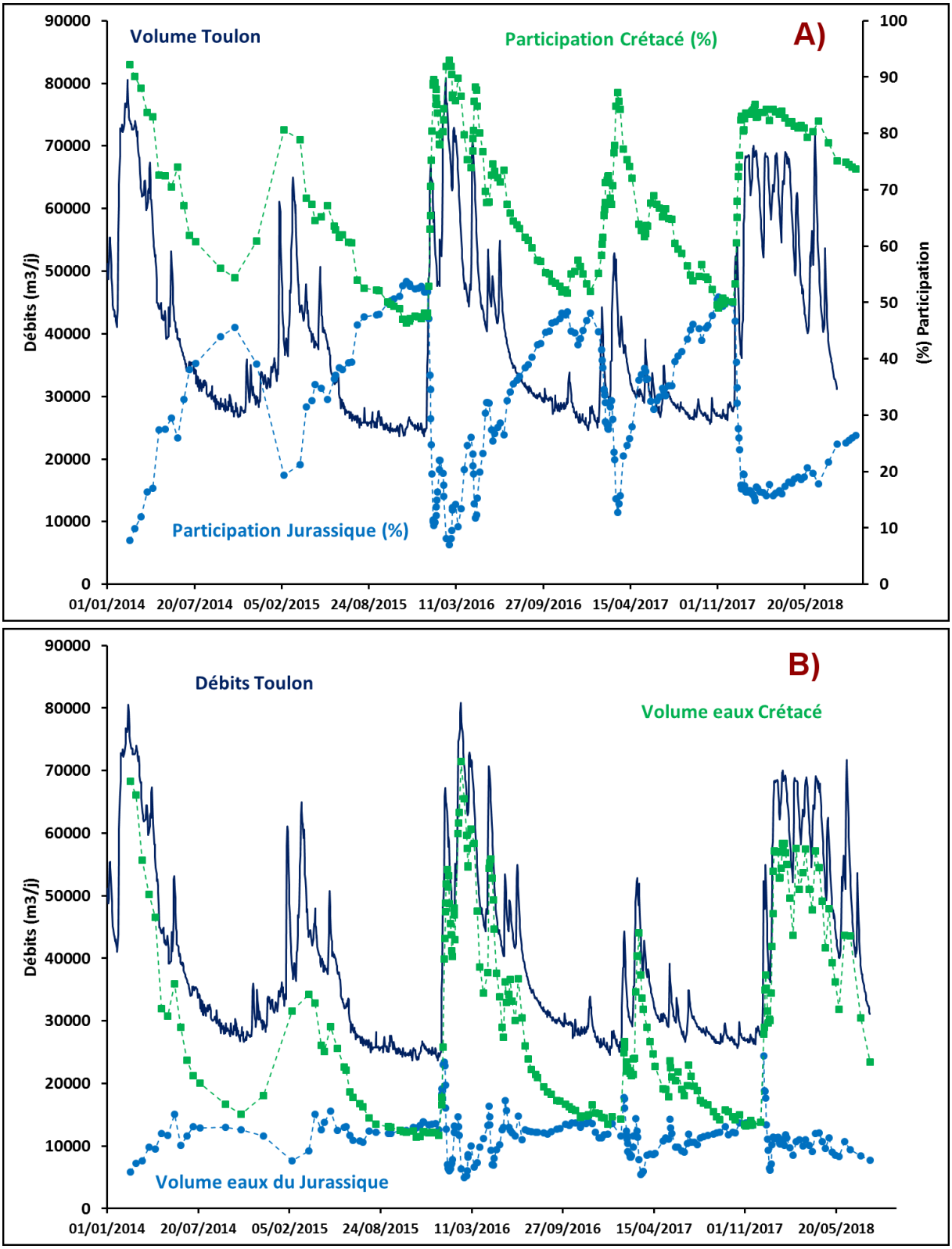


Figure 44 : Décomposition de l'hydrogramme des Sources du Toulon. A) Evolution du pourcentage de participation des pôles Jurassique et eaux d'infiltration. B) Evolution des volumes apportés par les deux pôles.

3.2 Réalisation d'un nouveau bilan hydrologique

La décomposition d'hydrogramme précédemment réalisée permet d'estimer la contribution de chaque aquifère au débit des Sources du Toulon. En intégrant ces contributions sur l'ensemble du cycle hydrologique, il est alors possible d'évaluer le volume annuel d'eau provenant de chaque aquifère (Tableau 14).

En tenant compte uniquement du volume annuel apporté par l'aquifère du Crétacé supérieur, il est alors possible de réaliser un nouveau bilan hydrologique à l'échelle du cycle hydrologique, en utilisant les données de recharge calculée dans la partie 1.1.2 de ce chapitre. Le bilan hydrologique est d'abord réalisé à l'échelle annuelle pour les cycles 2013-2014, 2014-2015, 2015-2016, 2016-2017, 2017-2018 (Tableau 14A). Le calcul permet d'estimer la surface théorique d'alimentation en surface à la restitution des volumes du Crétacé supérieur. Cette méthodologie fournit des résultats contrastés entre 29 km² pour le cycle hydrologique 2013-2014, et 101 km² pour le cycle hydrologique 2016-2017.

Pour établir une superficie qui rend compte de la notion de réserves pluriannuelles, le même calcul que précédemment est réalisé, mais avec le cumul des volumes annuels d'octobre 2013 à septembre 2018 et du total des infiltrations sur la même période.

Après application numérique, la superficie du bassin d'alimentation des sources du Toulon est estimée à 48 km². Le détail des paramètres utilisés est fourni dans le Tableau 14B.

Tableau 14 : Synthèse des paramètres utilisés pour le calcul du bilan hydrologique apporté par les eaux du Crétacé supérieur. A) Bilan hydrologique annuel. B) Bilan hydrologique de 2013 à 2018.

A)

Cycle hydrologique	Participation Jurassique (%)	Participation Crétacé (%)	Volume total (m^3)	Volume Jurassique (m^3)	Volume Crétacé (m^3)	Recharge annuelle (m)	Surface théorique Crétacé (km^2)
2013-2014 *	24.72	75.28	9371709	2316503	7055206	0.24	29
2014-2015	33.93	66.07	12102059	4106578	7995481	0.13	60
2015-2016	28.12	71.88	15344698	4314909	11029789	0.20	56
2016-2017	36.67	63.33	11345018	4159841	7185177	0.07	101
2017-2018	22.87455465	77.12544535	14885151	3404912	11480239	0.3	38

* Le bilan du cycle 2013-2014 est calculé à partir du 21/01/2014 ; date de la première donnée disponible.

B)

Cycle hydrologique	Participation Jurassique (%)	Participation Crétacé (%)	Volume total (m^3)	Volume Jurassique (m^3)	Volume Crétacé (m^3)	Recharge annuelle (m)	Surface théorique Crétacé (km^2)
2013-2018	29.03	70.97	63048635	18302743	44745892	0.94	48

3.3 Apport des traçages artificiels

Entre avril 2017 et mars 2018, 6 traçages artificiels sont réalisés par l'Université de Bordeaux, avec l'aide des acteurs locaux. Il ne s'agit pas ici de décrire de façon exhaustive l'ensemble des campagnes, mais d'en présenter les principaux résultats. Les détails des opérations (organisation, déroulement, surveillance) sont fournis dans les comptes rendus de Lorette (2018a), et (Lorette 2018b).

Les colorations sont réalisées avec des traceurs solubles fluorescents classiques : l'uranine et la sulforhodamine B. Ils présentent les avantages d'être relativement peu onéreux, et détectables à des concentrations très faibles.

3.3.1 Choix des points d'injection et des points de surveillance

Six points d'injection ont été choisis d'après leur localisation et leur intérêt en termes de fonctionnement hydrogéologique. Les points d'injections sont des pertes ou des effondrements localisés sur, ou en périphérie du périmètre de protection éloigné des Sources du Toulon défini en 2004. La Tableau 15 synthétise les principales caractéristiques des points d'injection choisis. La Figure 45 permet de visualiser la localisation de ces points.

Un descriptif détaillé des points d'injection est proposé dans les comptes rendus de Lorette (2018a), et (Lorette 2018b).

Tableau 15 : Description des principales caractéristiques des points d'injection choisis pour les traçages artificiels.

Point d'injection	Date d'injection	X_L93 (m)	Y_L93 (m)	Z (mNGF)	Traceur utilisé	Masse injectée (kg)	Distance aux Sources du Toulon (km)
Effondrement de la Merlie	26/04/2017	524 259	6 461 475	180	Sulforhodamine B	5	5.8
Effondrement de Mont-Rany	26/04/2017	525 494	6 463 188	182	Uranine	7	7.9
Perte de la Barrière	17/07/2017	521 370	6 466 612	115	Uranine	8	8.7
Perte de Sept-Font	07/02/2018	523 944	6 461 195	170	Sulforhodamine B	5	5.5
Perte des Michoux	07/02/2018	522 907	6 461 760	150	Uranine	5.5	5.1
Perte de Saint Angel	28/03/2018	518 013	6 459 850	165	Uranine	4.5	2.2

Plusieurs points de surveillance (Figure 45) sont choisis lors des opérations de traçage multi-traceurs. Ils sont sélectionnés en fonction des connaissances de terrain acquises et des hypothèses à confirmer ou à réfuter. En complément des Sources du Toulon, 5 points de surveillance sont choisis :

- la source des Bories à Antonne-et-Trigonant ;
- la source de la Clavelie à Trélissac ;
- le puits de la petite Sibérie à Champcevinel ;
- la rivière Beauronne à Chancelade ;
- la rivière Foncroze à Périgueux.

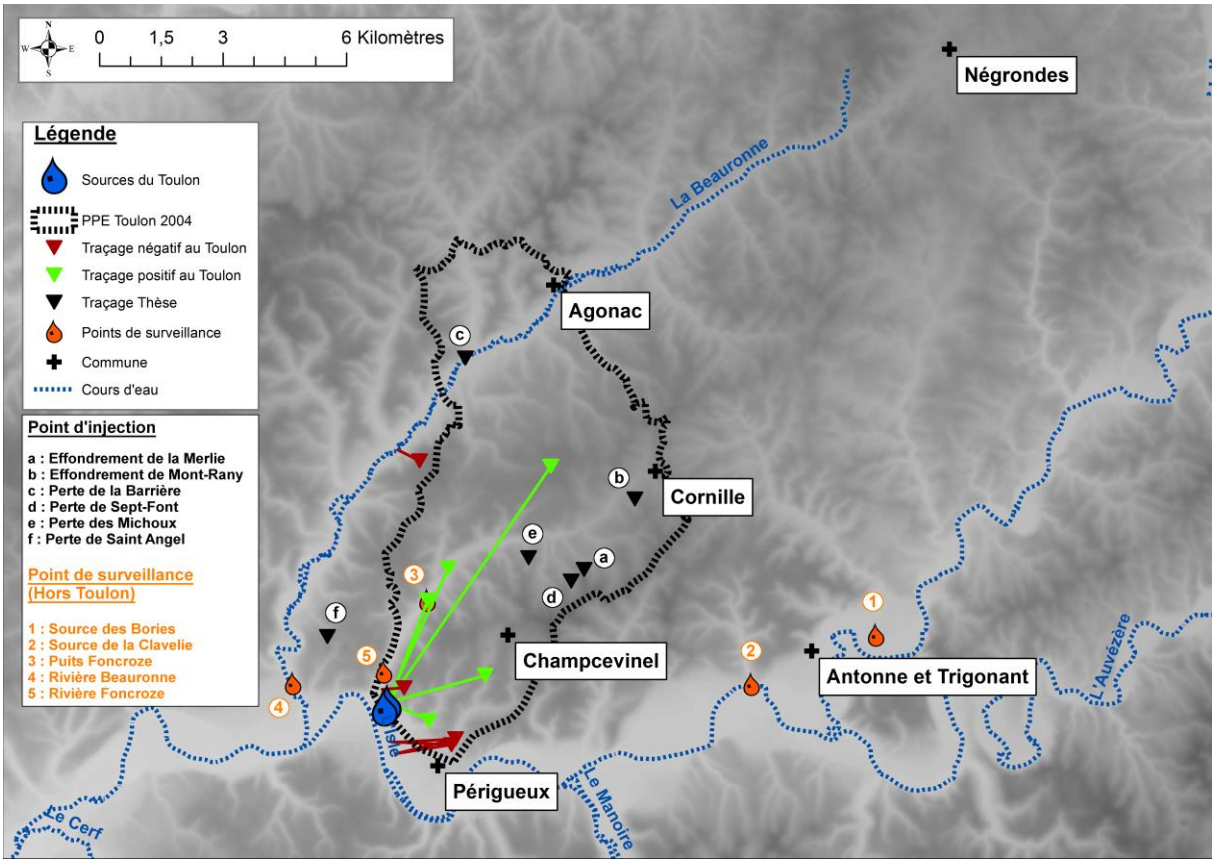


Figure 45 : Localisation des points d'injection et des points de surveillance lors des opérations de traçages artificels réalisés pendant ces travaux. Les traçages des études précédentes sont également représentés.

La surveillance du passage des traceurs fluorescents dans les points de surveillance est assurée par des préleveurs automatiques et des fluorimètres de terrain. Les fluorimètres et les préleveurs automatiques sont respectivement configurés pour prendre une mesure ou un prélèvement toutes les 15 minutes et toutes les 12h. L'utilisation couplée de ces appareils permet une surveillance fiable et précise des traceurs artificiels lors des périodes de surveillance.

Le tableau suivant (Tableau 16) synthétise l'équipement de chaque point de surveillance.

Tableau 16 : Description des points de surveillance choisis pour les opérations de traçage multi-traceurs.

Point de surveillance	X_L93 (m)	Y_L93 (m)	Z (mNGF)	Fluorimètre	Préleveur automatique
Source de l'Abîme du Toulon	519 420	6 458 116	83	X	X
Source des Bories	531 358	6 459 751	97	X	X
Source de la Clavelie	528 323	3 458 683	90	X	X
Puits Foncroze	520 453	6 460 731	102	X	X
Rivière Beauronne	517 043	6 458 924	90	X	X
Rivière Foncroze	519 289	6 458 599	89		X

3.3.2 Résultats des traçages artificiels

Les prochains paragraphes synthétisent les résultats des traçages réalisés entre avril 2017 et mars 2018. Le Tableau 17 synthétise les résultats des restitutions des traceurs. La Figure 46 montre les directions d'écoulement mis en évidence par les traçages.

L'Annexe 5 : Fiches descriptives des traçages réalisés entre 2017 et 2018 par l'Université de Bordeaux fournit les fiches décrivant les résultats de chaque traçage.

Tableau 17 : Synthèse des principaux résultats des traçages artificiels.

Point d'injection	Date d'injection	Traceur utilisé	Masse injectée (kg)	Distance aux Sources du Toulon (km)	Temps d'arrivée au Toulon (j)	Vitesse de l'onde colorée ($m.h^{-1}$)
Effondrement de la Merlie	26/04/2017	Sulforhodamine B	5	5.8	Restitution à la source de la Clavelie	5.5
Effondrement de Mont-Rany	26/04/2017	Uranine	7	7.9	Restitution à la source de la Clavelie	6
Perte de la Barrière	17/07/2017	Uranine	8	8.7	Traceur non mesuré	Traceur non mesuré
Perte de Sept-Font	07/02/2018	Sulforhodamine B	5	5.5	Restitution à la source de la Clavelie	60
Perte des Michoux	07/02/2018	Uranine	5.5	5.1	8	26
Perte de Saint Angel	28/03/2018	Uranine	4.5	2.2	Restitution au lavoir de Lavaure	134

Sur les 6 traçages réalisés, seulement 1 a montré une restitution positive aux Sources du Toulon : le traçage de la perte des Michoux. 4 autres traçages ont montré des restitutions positives sur des points de surveillance localisés sur la zone d'étude. 1 traçage n'a pas été retrouvé sur les points de surveillance : le traçage de la perte de la Barrière dans la rivière Beauronne.

Les injections de colorants réalisés en bordure Est de la zone d'étude (effondrement de Mont Rany, effondrement de la Merlie, perte de Sept-Font) ont montré des restitutions positives dans la source de la Clavelie à Trélissac (Figure 46). Les vitesses d'écoulement varient entre 5.5 $m.h^{-1}$ et 60 $m.h^{-1}$, ce qui concorde avec les vitesses mesurées dans les études précédentes. Les circulations souterraines, orientées NO-SE dans cette partie de la zone d'étude, permettent d'apporter de nouvelles informations sur les écoulements souterrains, en lien avec l'hydrosystème karstique des Sources du Toulon. Une coloration supplémentaire a été nécessaire dans une zone plus centrale du PPE actuel (perte des Michoux), sur la commune de Champcevinel. Cette coloration a montré une restitution positive aux Sources du Toulon 8 jours après injection, avec une vitesse d'écoulement en souterrain de 26 $m.h^{-1}$. Ces 4 colorations ont permis de contraindre de façon un peu plus précise les limites du bassin d'alimentation des Sources du Toulon dans la partie Est de la zone d'étude.

La coloration effectuée en juillet 2017 dans la perte de la Barrière, localisée dans la rivière Beauronne, s'est infiltrée de façon diffuse dans le lit de son lit (Figure 46). Aucun colorant n'a été retrouvé, ni dans la partie aval de la Beauronne, ni aux Sources du Toulon. Des campagnes de traçages hydrogéologiques devront continuer à être menées dans cette partie de la zone d'étude.

La dernière coloration effectuée en mars 2018 sur le plateau de Saint Angel (perte de Saint Angel) a montré un drainage des eaux vers la rivière Beauronne, dans la source du lavoir de Lavaure sur la commune de Chancelade (Figure 46). Cette source draine l'aquifère du Turonien et permet de supposer la bonne délimitation du bassin d'alimentation dans la partie Ouest de la zone d'étude.

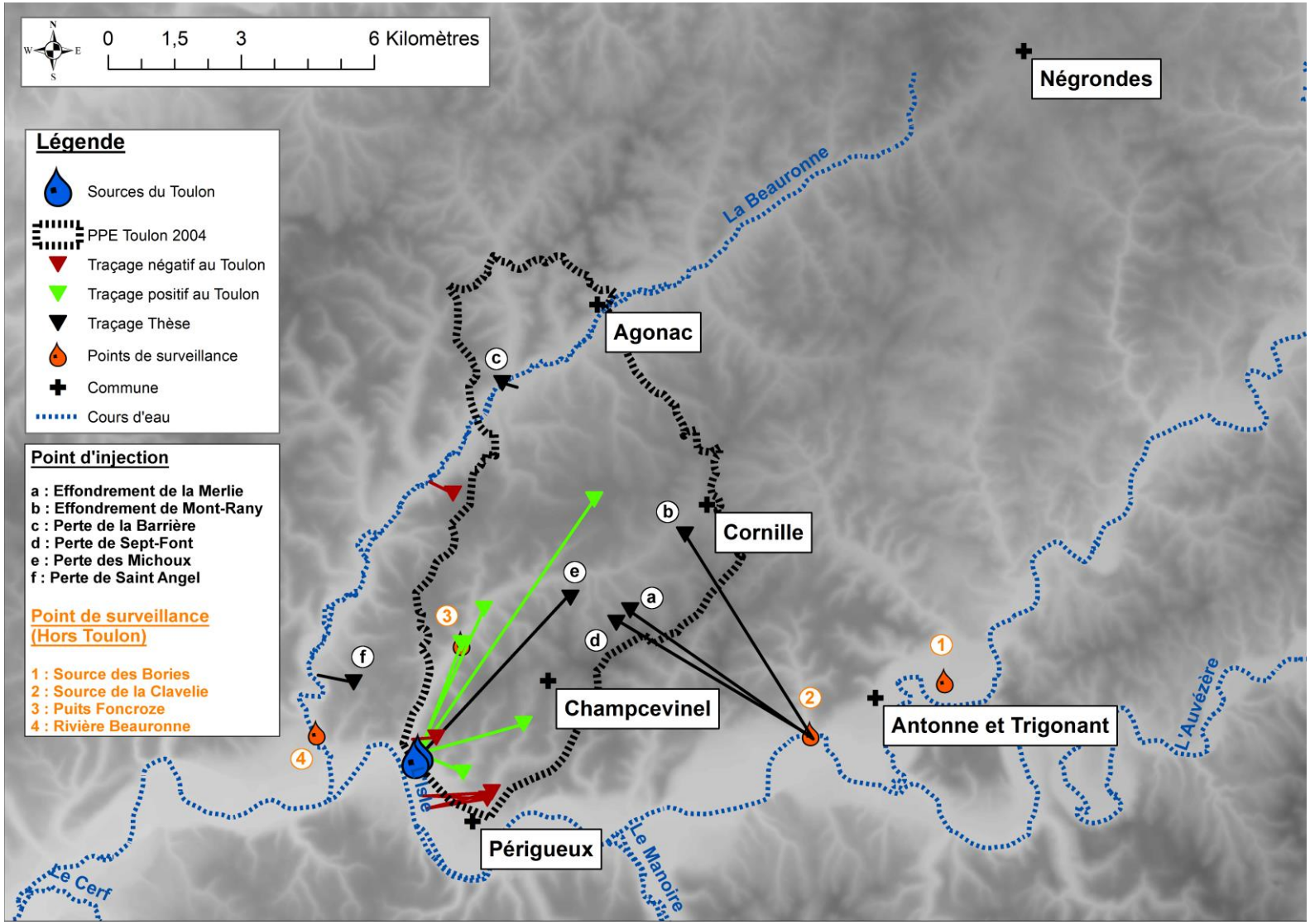


Figure 46 : Résultats des traçages artificiels réalisés dans le cadre des travaux de Thèse entre avril 2017 et mars 2018.

3.4 Nouvelle délimitation du bassin d'alimentation des Sources du Toulon

L'estimation d'un premier bilan hydrologique au début de ce chapitre a calculé une surface théorique d'environ 100 km² pour expliquer les volumes restitués à l'exutoire du système karstique. La mise en évidence d'une alimentation par les eaux d'un aquifère possédant un temps de résidence de plusieurs millénaires engendre la nécessité de réevaluer ce bilan hydrologique avec des volumes causés par des infiltrations de l'année en question. Pour cela, la décomposition de l'hydrogramme au cours du cycle hydrologique a permis d'estimer à nouveau ce bilan hydrologique. La surface théorique expliquant ces volumes restitués est alors d'environ 48 km². Les traçages hydrogéologiques réalisés entre avril 2017 et mars 2018 apportent de nouveaux éléments de réflexions sur la délimitation du bassin d'alimentation des Sources du Toulon.

A partir de ces résultats, la réflexion présentée ici propose de différencier un sous bassin fonctionnel, à drainage rapide, dans le bassin d'alimentation global du système.

Le sous bassin karstique fonctionnel des Sources du Toulon se caractérise par des infiltrations efficaces participant à la recharge de l'aquifère mulitcouche du Crétacé supérieur, et il est responsable des variations hydrodynamiques et hydrochimiques recensées pendant la période des hautes eaux. Il serait délimité en surface par une aire d'environ 48 km², et tiendrait compte des résultats des traçages hydrogéologiques réalisés sur l'ensemble de la zone d'étude.

Le bassin hydrogéologique global tiendrait compte, en plus, des infiltrations indirectes participant à la recharge de l'aquifère du Jurassique supérieur. Il intègre le basin versant topographique de la rivière Beauronne temporaire, c'est-à-dire de Château l'Evêque à Négrondes. Les limites de ce bassin restent encore préciser, et des campagnes de traçage hydrogéologiques restent encore à faire en rive droite de la Beauronne pour identifier le rôle des rivières Beauronne et Côle dans le drainage des eaux souterraines karstiques.

La Figure 47 présente le sous bassin karstique fonctionnel du bassin d'alimentation des Sources du Toulon.

Le sous bassin karstique fonctionnel se distingue par plusieurs limites :

- **au Sud**, la limite reste inchangée. La rivière l'Isle, qui joue le rôle de niveau de base, est toujours considérée comme une limite aux écoulements ;
- **à l'Est**, la limite a été modifiée grâce aux résultats des 4 traçages artificiels réalisés pendant ces travaux. Cette limite a été déplacée plus à l'Ouest de la zone d'étude (Figure 47). Dans la partie Sud-Est la coloration n'ayant pas donnée de restitution positive aux Sources du Toulon (Rue Combes des Dames à Périgueux) a également été extraite du bassin d'alimentation direct (Figure 47) ;
- **à l'Ouest**, la limite reste inchangée également. Elle se justifie par les traçages de Peyssard (2005) et Saint Angel (2018). Ces deux traçages ont montré des restitutions positives des sources alimentant la rivière Beauronne. Entre Chancelade et le lieu-dit Preyssac à Château l'Evêque, la Beauronne est pérenne. Elle joue probablement un rôle de drainage hydrogéologique des écoulements souterrains, avec la présence de 19 sources recensées. Un manque de connaissance sur les niveaux piézométriques la nappe du Crétacé et la nappe alluviale de la Beauronne ne permet pas de prouver cette hypothèse. Dans les années 1970

Christophe Von Stempel avait noté une augmentation de 180 $L.s^{-1}$ entre le lieu-dit Beauronne et Saltgourde, laissant sous-entendre un apport d'eau supplémentaire (au moins 100 $L.s^{-1}$) par l'aquifère du Crétacé. En période d'étiage, malgré l'aspect pérenne de la rivière, ce même auteur avait noté une diminution de 80 $L.s^{-1}$ sur la même tranche du cours d'eau. L'auteur laisse sous-entendre un rôle différent de la rivière Beauronne entre les périodes de hautes eaux et de basses eaux. Des doutes peuvent être émis quant à cette hypothèse. En effet, les affleurements dans la partie aval de la Beauronne sont datés du Turonien, et les sources sont pérennes. Cependant, un suivi plus précis des débits à plusieurs endroits dans la Beauronne permettrait de comprendre un peu mieux son rôle hydrogéologique ;

- **au Nord**, la limite du sous bassin karstique fonctionnel est la rivière Beauronne.

Le bassin hydrogéologique global est délimité au Nord de la zone d'étude, et plus particulièrement au Nord de la rivière Beauronne. Ce sous bassin intègre le bassin versant topographique de la rivière.

De Preyssac à Négrondes, la Beauronne ne possède plus un écoulement pérenne. Elle est alimentée par des sources qui permettent sont écoulement en période de hautes eaux. En période de basses eaux, la Beauronne ne coule plus du fait de l'assèchement de certaines sources. Le contexte de cette partie de la zone d'étude laisse supposer des relations complexes d'un point de vue hydrogéologique. Les relations entre les aquifères karstiques et la surface restent difficilement compréhensibles sans un suivi piézométrique de la nappe du Crétacé et de la nappe d'accompagnement de la Beauronne.

Deux vallées situées au Nord de la Beauronne (vallée de l'Alemps à l'Ouest d'Agonac, vallée de l'Alemps à l'Est d'Agonac) possèdent également des ruisseaux à écoulement non pérenne. Il est possible de supposer des zones de pertes dans toute la partie au Nord d'Agonac en lien avec l'écoulement des ruisseaux et de la Beauronne. Plusieurs zones de pertes diffuses (Rochemorin) ou ponctuelles (Barrière) ont été recensées dans le lit de la Beauronne. Cependant, le traçage artificiel de la perte de la Barrière n'apporte pas d'éléments convaincants sur la communication directe entre cette forme géomorphologique et les Sources du Toulon.

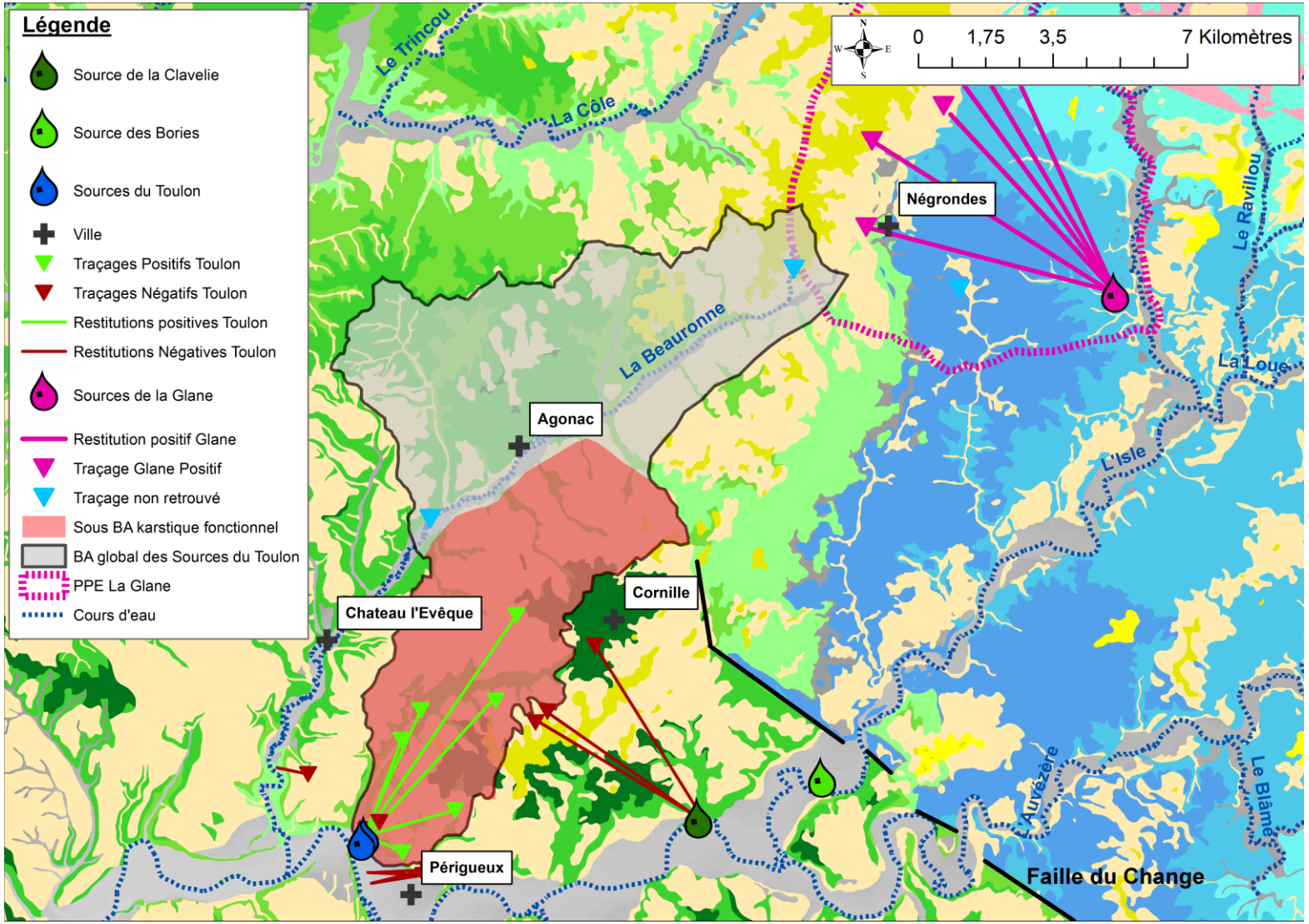


Figure 47 : Nouvelle proposition du bassin d'alimentation des Sources Toulon. En rouge, le sous bassin karstique fonctionnel.

4.Conclusion du Chapitre 3 et perspectives

Le premier objectif de Chapitre était d'évaluer le fonctionnement hydrogéologique global des Sources du Toulon à partir d'une caractérisation hydrodynamique et hydrochimique. Un focus a été proposé sur la comparaison avec les masses d'eau régionales et sur l'utilisation novatrice et prometteuse du diagramme $Mg_{vs}O_2$. Le deuxième objectif était de proposer une réflexion pour s'orienter vers une meilleure délimitation des systèmes karstiques à alimentation multiréservoirs.

L'ensemble de ces objectifs s'intègrent dans des réflexions régionales de compréhension de fonctionnement des aquifères multicouches de la marge Nord du Bassin aquitain, mais également dans une réflexion plus globale de la compréhension de fonctionnement hydrogéologique des aquifères localisés en bordure de bassin sédimentaire.

Une partie de ces travaux sont valorisés par le biais d'une publication internationale dans *Journal of Hydrology* (Lorette et *al.*, 2018a).

Les résultats apportés par les caractérisations hydrodynamiques et hydrochimiques, couplés aux observations de terrain, suggèrent que les Sources du Toulon sont alimentées par un mélange de deux aquifères : (i) l'aquifère captif du Jurassique (Bajocien, Bathonien, Oxfordien, Kimméridgien), qui est responsable du soutien du débit d'étiage et du faciès magnésien mesuré pendant cette période et contribue à la qualité exceptionnelle des eaux des Sources du Toulon à l'étiage ; (ii) l'aquifère majeur du Crétacé supérieur (Turonien, Coniacien, Santonien) qui est responsable des variations hydrodynamiques et hydrochimiques mesurées pendant les évènements pluvieux.

Une discussion est proposée sur l'utilisation des concentrations en magnésium et en oxygène dissous pour distinguer : (i) le mélange entre deux aquifères (résultant de la présence de calcite-magnésienne) ; (ii) une augmentation du temps de résidence de l'eau (résultant d'une absence de dolomite). Le diagramme $O_{2vs}Mg$ est un outil innovant et prometteur à utiliser dans des contextes hydrogéologiques présentant des relations hydrogéologiques complexes entre aquifères.

La mise en évidence de l'alimentation multiréservoirs des Sources du Toulon nécessite une adaptation de certains concepts hydrogéologiques tels que le bilan hydrologique. La participation d'eau à temps de résidence plurimillénaire ne pouvait pas être intégrée dans un bilan hydrologique à l'échelle annuelle. Une décomposition d'hydrogramme à l'échelle du cycle hydrologique a alors été proposée pour estimer les volumes d'eau écoulés suite aux infiltrations saisonnières. Ces calculs ont permis d'estimer une surface théorique du sous bassin d'alimentation karstique fonctionnel des Sources du Toulon de l'ordre de 48 km².

Les traçages hydrogéologiques réalisés entre avril 2017 et mars 2018 apportent de nouveaux éléments de réflexions sur la délimitation du bassin d'alimentation des Sources du Toulon.

A partir de ces résultats, la réflexion présentée ici propose : (i) un sous bassin fonctionnel à transfert rapide en karst libre ; (ii) un bassin à transfert lent en karst captif.

Le découpage d'un bassin d'alimentation en deux sous bassin hydrogéologiques semble pertinent dans ce contexte complexe d'alimentation multiréservoirs. Il permettra d'initier une réflexion des autorités de santé publique sur la gestion du territoire et la définition des périmètres de protection. Les principales mesures environnementales doivent être réalisées sur le sous bassin hydrogéologique fonctionnel. Des mesures moins restrictives en termes d'activités humaines peuvent être envisagées sur le sous bassin hydrogéologique à écoulement plus lent.

CHAPITRE 4
APPORT DU SUIVI HAUTE-RESOLUTION POUR LA PRECISION DU FONCTIONNEMENT HYDROGEOLOGIQUE DES AQUIFERES KARSTIQUES

Dans les milieux aquatiques naturels, la mesure des paramètres physico-chimiques en continu est souvent difficile. Les éléments biologiques présents dans le milieu dégradent rapidement le matériel et imposent un entretien important des capteurs.

Le suivi de la qualité de l'eau des exutoires des systèmes karstiques est généralement réalisé à partir d'échantillons ponctuels prélevés sur site et envoyés en laboratoire pour analyse, avec pour inconvénients des décalages en matière de délai (transport, prise en charge, émission et analyse des résultats). Actuellement quelques paramètres peuvent être suivis en continu à l'aide de capteurs fonctionnant de façon autonome. Classiquement, la température de l'eau, la conductivité électrique et la hauteur d'eau au-dessus du capteur sont mesurés. Une mesure du signal de turbidité peut parfois être réalisée en complément dans le cas d'une ressource utilisée pour l'alimentation en eau potable.

Pourtant, la mesure haute-résolution des paramètres physico-chimiques des eaux karstiques peut apporter des informations pertinentes et nouvelles sur le fonctionnement de ces hydrosystèmes. Les vitesses de transit importantes en souterrain et le transport d'éléments dissous associé peuvent impliquer l'arrivée de plusieurs masses d'eau à l'exutoire des systèmes karstiques. La surveillance haute résolution peut alors préciser de manière importante le transfert des éléments dissous et particulaires en souterrain.

Ce chapitre est dédié à la présentation d'un système de mesure haute-résolution innovant et à l'apport de son utilisation pour la précision du fonctionnement hydrogéologique des aquifères karstiques. Tout d'abord, ce chapitre introduira le problème technique à résoudre et le fonctionnement du système de mesure développé. Ensuite, l'apport de l'utilisation des données enregistrées par ce système sera présenté à travers l'analyse de l'évolution des paramètres physico-chimiques. Enfin, une dernière partie s'attardera à une analyse par traitement du signal des paramètres sur l'ensemble des données recueillies puis sur deux épisodes de crue.

1.Le SSERK'ŒIL : Le Système de Surveillance d'Etude et de Recherche sur le Karst – Observation, Enregistrement, Interprétation, Laboratoire *in situ*

1.1 Le problème technique à résoudre

Le SSERK'ŒIL, **(**Figure 48**)**, vise à résoudre le problème de l'échantillonnage de la ressource en eau par un suivi en continu sur site de la qualité des eaux. Il propose un suivi *in situ* et « en continu » des eaux à l'exutoire des systèmes karstiques, avec un pas de temps de mesure modulable suivant le besoin (période de crue ou de basses eaux). Le pas de mesure peut être choisi entre 10 secondes et 24 heures. Il permet également une surveillance des nappes avec des mesures *in situ* en continu dans les piézomètres.

1.2 Le fonctionnement du SSERK'ŒIL

Les mesures en continu réalisées par les différents capteurs sont immédiatement disponibles sur place via les transmetteurs commerciaux. Les mesures peuvent aussi être récupérées via clé USB ou carte SD pour une facilité d'exploitation. La mise en place d'une communication vers l'usine d'eau potable du Toulon a été réalisée pour permettre : (i) la consultation sur les automates du service, (ii) le pilotage automatique du traitement de l'eau brute pompée.

1.2.1 Du dispositif technique au rapatriement des données

Plusieurs équipements constituent le SSERK'ŒIL (Figure 48) :

- **une pompe d'aspiration** à débit variable de 1 à 10 $m^3.h^{-1}$, qui permet de pomper l'eau directement dans le milieu sans créer de turbulences. Cette pompe est placée directement au niveau des sorties d'eau dans la vasque de l'Abîme du Toulon (Figure 48) ;
- **un tuyau** en PVC plastifié, renforcé d'une spirale en PVC rigide antichoc de diamètre 40 mm, permettant un acheminement de l'eau brute dans le bac de mesure ;
- **un bac de mesure (**Figure 48**)**, placé sur la berge de l'Abîme du Toulon. Il est composé en deux parties :
    - *une chambre de stabilisation* (Figure 49), permettant de stabiliser l'écoulement ;
    - *une chambre de mesure* (Figure 50), accueillant les capteurs dans un environnement stabilisé ;
- **des capteurs autonomes**, placés dans la chambre de mesure et dans les piézomètres permettant la mesure des différents paramètres désirés ;
- **un tuyau d'exhaure** pour la vidange du SSERK'ŒIL, placé à la base, et fermé par une vanne ;
- **Une armoire électrique**, contenant les systèmes d'enregistrement et de communication (Figure 49).

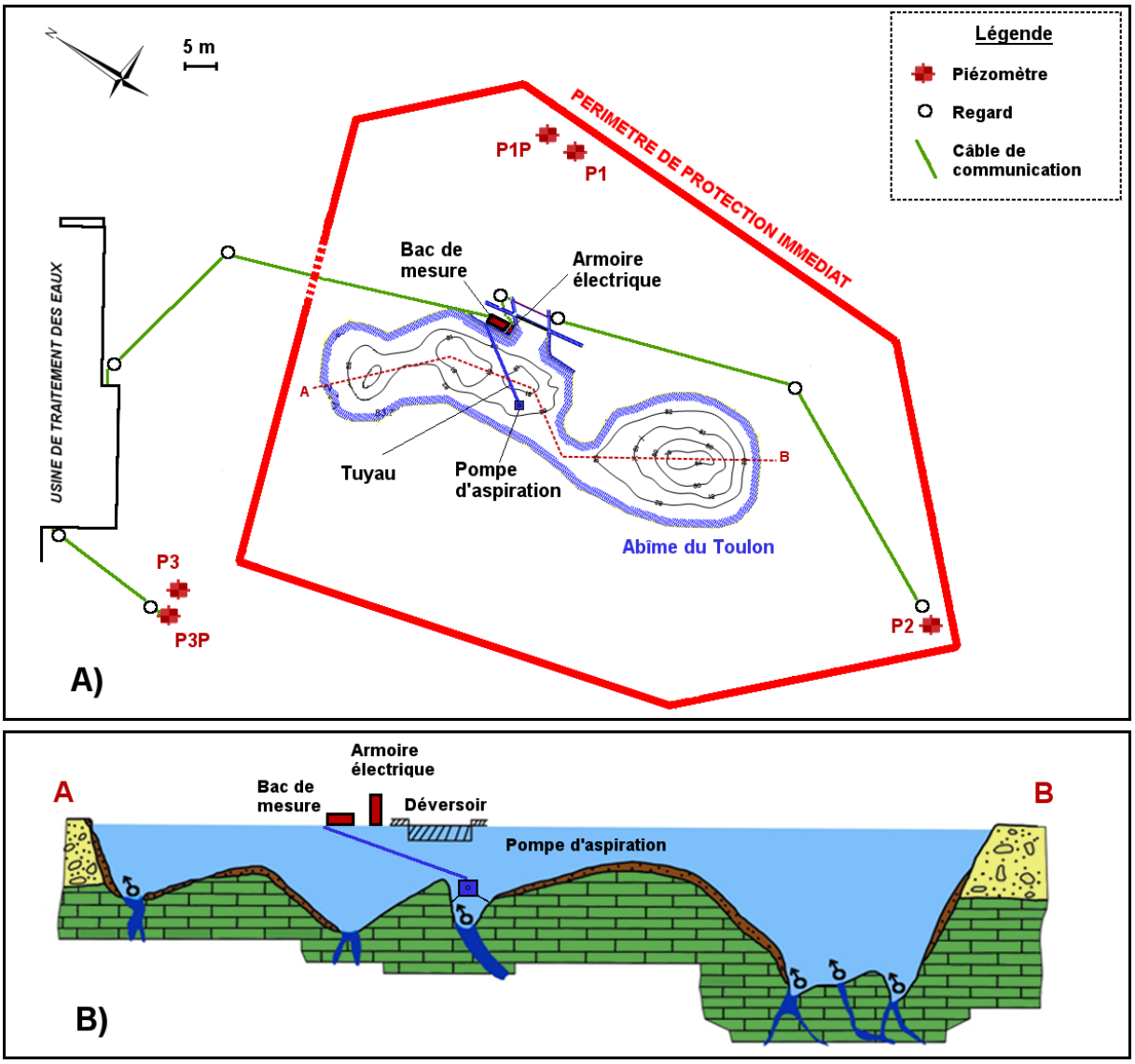


Figure 48 : Localisation du dispositif mis en place sur le site du Toulon

Pour la surveillance de la source de l'Abîme du Toulon, le SSERK'ŒIL est composé de capteurs autonomes de deux marques différentes : HACH et S::CAN. Ces capteurs permettent la mesure en continu de :

- la température (S::CAN, HACH) ;
- le pH (HACH) ;
- la conductivité électrique (S::CAN, HACH) ;
- l'oxygène dissous (HACH) ;
- la turbidité (S::CAN, HACH) ;
- le potentiel d'oxydoréduction (HACH) ;
- l'ion nitrate (S::CAN) ;
- le carbone organique dissous (S::CAN).

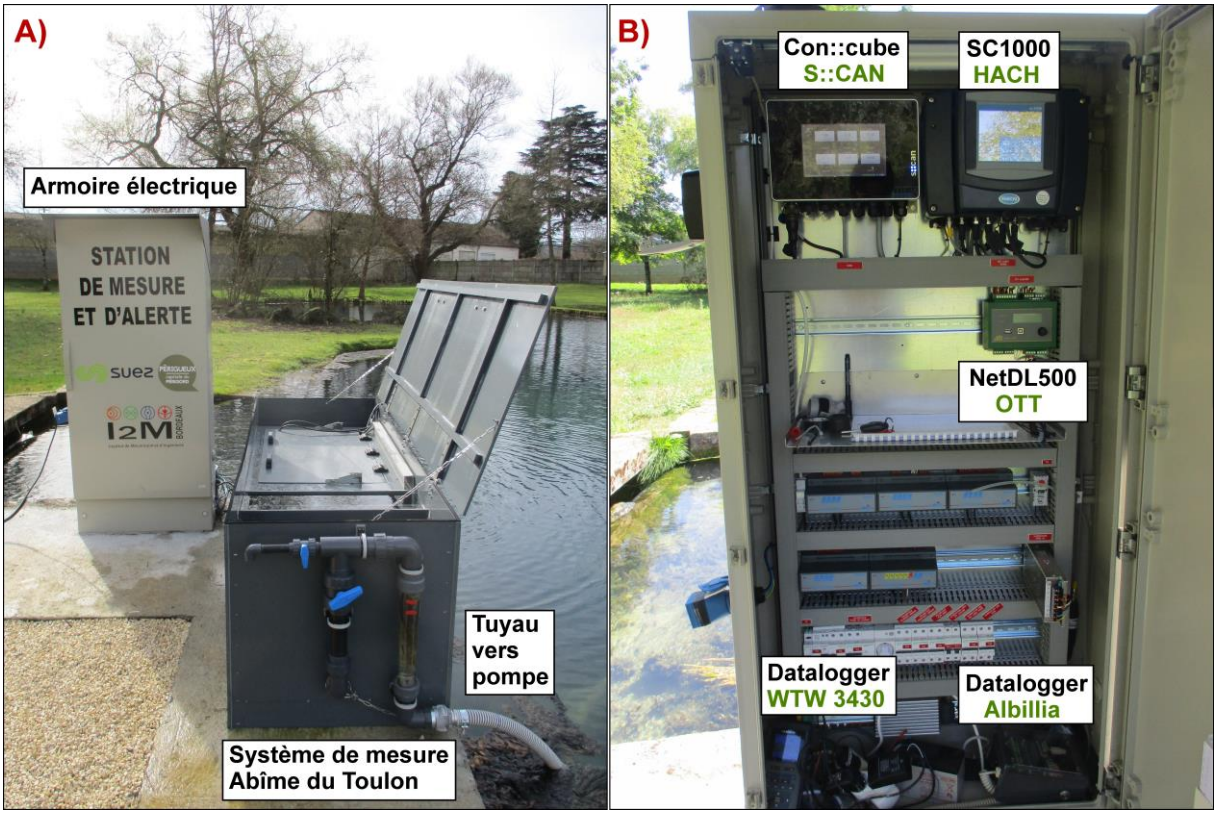


Figure 49 : A) Illustration de l'armoire électrique, du système de mesure de l'Abîme du Toulon et du tuyau vers la pompe d'aspiration. B) Illustration des systèmes d'acquisition des mesures dans l'armoire électrique.

Figure 50 : A) Composition du système de mesure de l'Abîme du Toulon avec illustration de la chambre de stabilisation et de la chambre de mesure. B) Illustration et localisation des capteurs dans la chambre de mesure.

En complément du SSERK'ŒIL et pour parer à tout problème lié à la mesure des capteurs précédemment exposés, des capteurs complémentaires des marques WTW et Albillia ont été installés. Ils permettent la mesure en continu de :

- la température (WTW) ;
- le pH (WTW) ;
- la conductivité électrique (WTW) ;
- l'oxygène dissous (WTW) ;
- la fluorescence naturelle et artificielle de l'eau (Albillia), lors des traçages artficiels, mais aussi pour la détermination du carbone organique dissous grâce à la mesure réalisée dans le domaine de l'ultra-violet (λ=370 nm).

Le fonctionnement de la station de mesure de l'Abîme est simple (Figure 51). Une pompe d'aspiration amène de l'eau prélevée au-dessus des griffons de l'Abîme du Toulon dans une chambre de stabilisation. Le système développé est celui d'une succession de seuil « surverse-sousverse » pour stabiliser l'écoulement de l'eau. Le dernier seuil est une plaque en PVC crépinée pour instaurer un écoulement laminaire dans la chambre de mesure. Les capteurs sont placés dans cette chambre de mesure et profitent d'un écoulement stable. Une vidange placée à la base et au sommet du bac de mesure permet à l'eau de sortir.

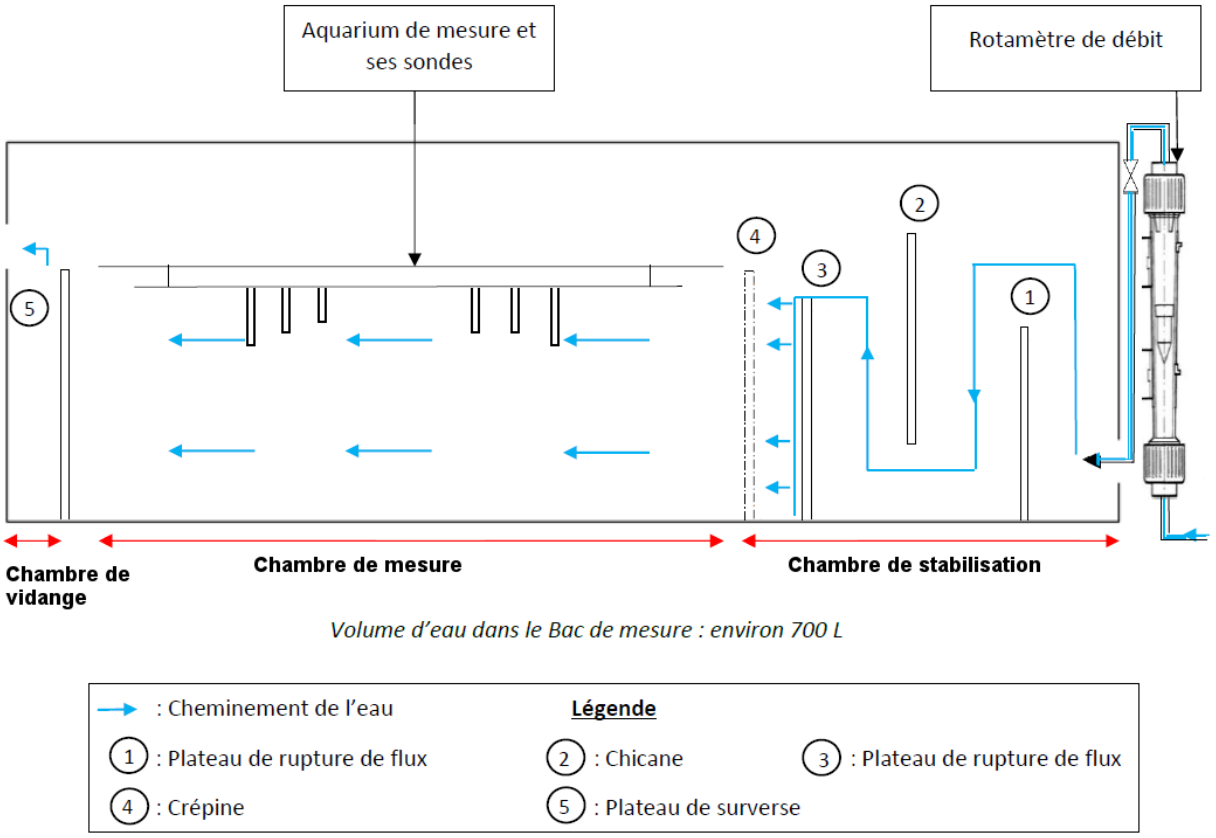


Figure 51 : Schéma du fonctionnement de la station de mesure de l'Abîme du Toulon.

Pour la surveillance des nappes, le SSERK'ŒIL est constitué de capteurs PLS-C de la marque OTT. Ces capteurs sont disposés au niveau des crépines des piézomètres P3P et P2 et permettent la surveillance de la qualité de l'eau de la nappe alluviale (P2) et de la nappe alimentant les Sources du Toulon (P3P). Ils mesurent en continu :

- la température ;
- la conductivité électrique ;
- la tranche d'eau au-dessus du capteur de pression, permettant le suivi de la piézométrie.

L'ensemble des informations relatives aux différents capteurs sont synthétisés dans le Tableau 18.

Tableau 18 : Synthèse des capteurs constituants le SSERK'ŒIL.

Emplacement	Paramètre mesuré	Nom du capteur	Marque	Unité	Plage de variation		Précision
					Min	Max	
Abîme du Toulon	Température	Tetracon 325	WTW	°C	0	100	0.1 °C
		3400 sc	HACH	°C	-10	200	0.1 °C
		Condu::lyser	S::CAN	°C	-20	130	0.1 °C
	pH de l'eau	Sentix 940	WTW	u.pH	0	14	0.05 u.pH
		pHD sc	HACH	u.pH	0	14	0.02 u.pH
	Conductivité électrique	Tetracon 325	WTW	µS/cm	1	2 000 000	1%
		3400 sc	HACH	µS/cm	1	2 000 000	1%
		Condu::lyser	S::CAN	µS/cm	0	500 000	0.5%
	Oxygène dissous	FDO 925	WTW	mg/L	0	20	1.50%
		Sc LDO	HACH	mg/L	0	20	1%
	Turbidité	**Solitax**	HACH	NTU	0.001	4000	< 1 %
	Potentiel d'oxydoréduction	**ORP**	HACH	mV	-1 500	1 500	0.5 mV
	Nitrate	**Spectro::lyser**	S::CAN	mg/L	0	46	0.1 mg/L
	Carbone organique dissous	**Spectro::lyser**	S::CAN	mg/L	0	133	0.05 mg/L
P2 P3P	Température	**PLS-C**	OTT	°C	-25	70	0.1 °C
	Conductivité électrique	**PLS-C**	OTT	µS/cm	5	2000	0.5%
	Tranche d'eau	**PLS-C**	OTT	m	0	40	0.05%

Capteur restant dans le SSERK'ŒIL

Les mesures réalisées par les différents capteurs sont rapatriées vers les différents transmetteurs de chaque marque, permettant l'archivage et la visualisation des données en direct. Les transmetteurs sont localisés dans l'armoire électrique placée sur la berge de l'Abîme du Toulon. Cette armoire contient 5 transmetteurs (Figure 49) :

- un Con::cube (S::CAN) ;
- un SC 1000 (HACH) ;
- une station NetDL 500 (OTT) ;
- un WTW 3430 (WTW ; matériel provisoire et n'appartenant pas au SSERK'OEIL) ;
- un datalogger GGUN FL 30 (ALBILLIA ; matériel provisoire et n'appartenant pas au SSERK'OEIL).

Les données enregistrées par le SSERK'ŒIL sont instantanément envoyées par des câbles de communication vers l'usine de traitement des eaux, permettant : (i) la visualisation de l'évolution des paramètres sur l'automate de l'exploitant, (ii) l'automatisation du traitement de l'eau pompée. La Figure 52 synthétise le fonctionnement du SSERK'ŒIL.

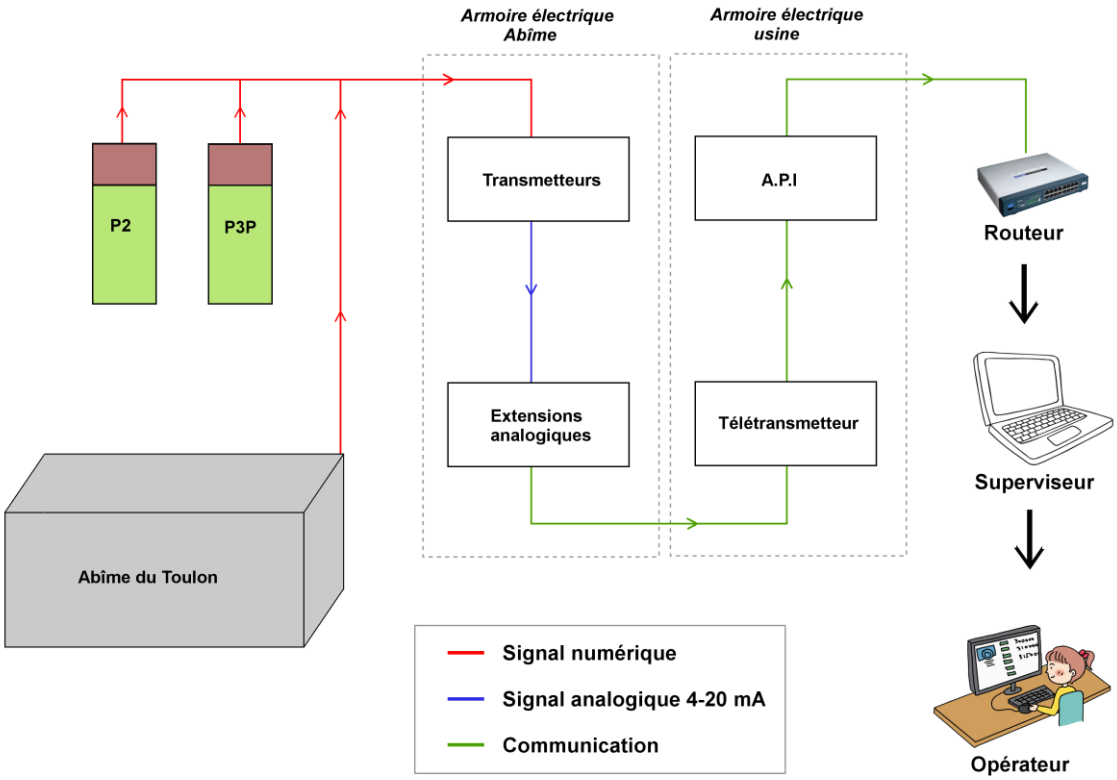


Figure 52 : Synoptique du fonctionnement du SSERK'ŒIL.

1.2.2 La calibration et la vérification des mesures

La difficulté réside en l'acquisition de valeurs correctes. Des essais de calibration ont permis de valider les valeurs mesurées par les différents capteurs. Les principaux tests ont été réalisés sur le Spectro::lyser pour les paramètres nitrate et carbone organique dissous, et sur le GGUN FL 30 pour le paramètre carbone organique dissous.

Pour le paramètre **carbone organique dissous**, les valeurs mesurées par les capteurs sont comparées avec des valeurs de laboratoire. Pour le GGUN FL30, une droite d'étalonnage (Figure 53) est réalisée entre les valeurs en mV fournies par l'appareil et les concentrations en $mg.L^{-1}$ fournies par le laboratoire. Les données brutes sont récupérées puis traitées à posteriori. Le Con::cube offre la possibilité d'étalonner le Spectro::lyser directement à partir de l'interface. Un étalonnage « multipoint » (Figure 53) est réalisé entre les valeurs du capteur et celles du laboratoire, de façon à obtenir une précision optimale de la mesure.

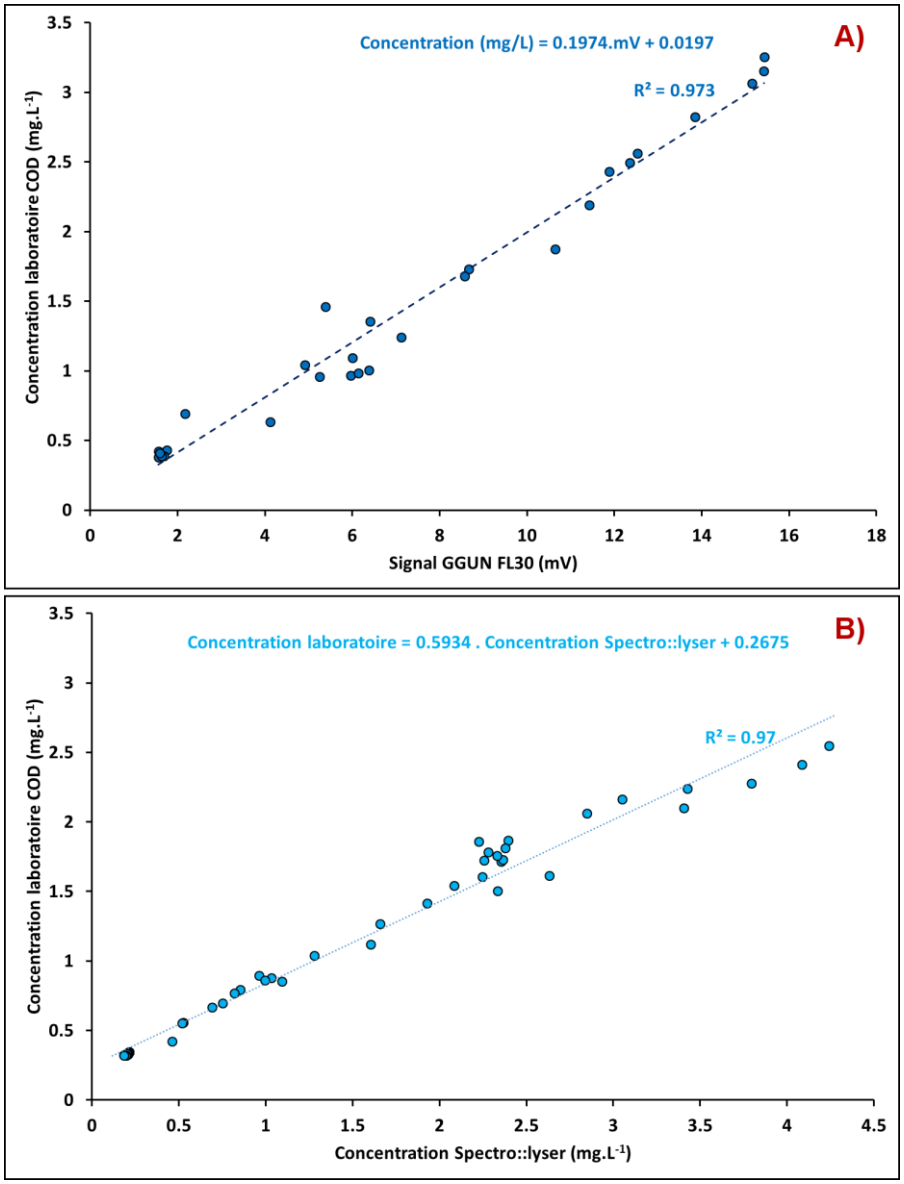


Figure 53 : A) Relation entre le signal du GGUN FL30 et les mesures de laboratoire du carbone organique dissous. B) Relation entre les concentrations en COD mesurées par le spectro::lyser et les concentrations en COD mesurées en laboratoire.

Pour le paramètre **nitrate**, les valeurs mesurées par le spectro::lyser sont comparées avec celles de laboratoire. Une calibration type « offset » a été nécessaire car toutes les valeurs mesurées par le capteur étaient supérieures de 2 $mg.L^{-1}$. Un simple décalage réalisé sur l'interface du Con::cube a permis d'ajuster ce décalage (Figure 54). La droite de corrélation de pente 1 et le coefficient de corrélation de 0.979 témoigne de la précision des mesures du SSERK'OEIL pour une large gamme de valeur (Figure 54).

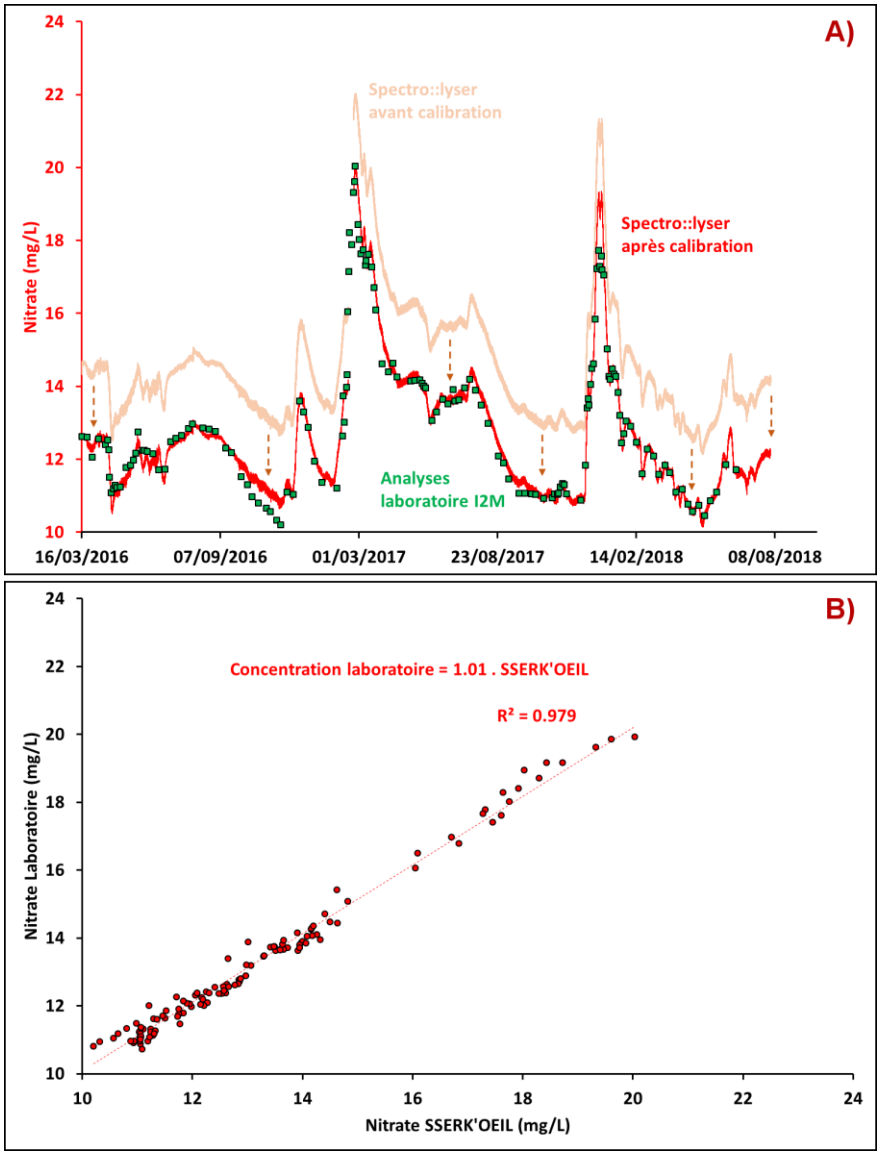


Figure 54 : A) Décalage type « offset » réalisé pour calibrer le paramètre nitrate du Spectro::lyser. B) Relation entre les concentrations en nitrate mesurées par le spectro::lyser et les concentrations en nitrates mesurées en laboratoire.

Pour les autres capteurs, les mesures en continu sont contrôlées par des mesures ponctuelles une fois par semaine (Université de Bordeaux ou SUEZ). Si nécessaire les capteurs subissent une calibration, maximisant la qualité et la fiabilité de la mesure.

1.2.3 L'entretien du SSERK'ŒIL

Les capteurs étant placés à l'extérieur du milieu naturel, le dépôt d'algue ou de biofilm est considérablement réduit, minimisant ainsi l'entretien des capteurs du SSERK'ŒIL. Un simple nettoyage des têtes de sonde à l'eau distillée toutes les semaines permet de conserver la qualité des mesures.

Le dépôt de particules au fond du bac de mesure de l'Abîme du Toulon correspond à la principale maintenance du SSERK'ŒIL. Une vidange simple et rapide à partir du tuyau d'exhaure permet de nettoyer le bac de mesure en quelques minutes.

1.3 Avantages et utilisation du SSERK'ŒIL

Le suivi en continu des paramètres physico-chimiques de la ressource brute permet de satisfaire : (i) le gestionnaire de la ressource en eau dans une optique de sa protection, (ii) l'exploitant de la ressource dans une optique de sa surveillance, (iii) la recherche universitaire pour la caractérisation de son fonctionnement hydrogéologique.

Les principaux avantages du SSERK'ŒIL sont : (i) la facilité d'utilisation, (ii) la facilité de maintenance, (iii) la précision et la répétitivité des mesures.

Le développement mis en place pendant ces travaux est un outil évolutif, tant sur les paramètres mesurés que sur son utilisation. C'est une réelle avancée dans le domaine de la métrologie de la qualité de la ressource en eau. Il peut être déployé dans plusieurs types d'environnement, même ceux initialement hostiles à la mesure *in situ* en continu.

La communication en direct du SSERK'ŒIL avec l'usine de traitement des eaux du Toulon permet à l'exploitant : (i) d'adapter son traitement de l'eau brute à partir de la mesure de la turbidité (Figure 55), (ii) d'arrêter le pompage en cas de dépassement de seuils d'alerte prédéfinis.

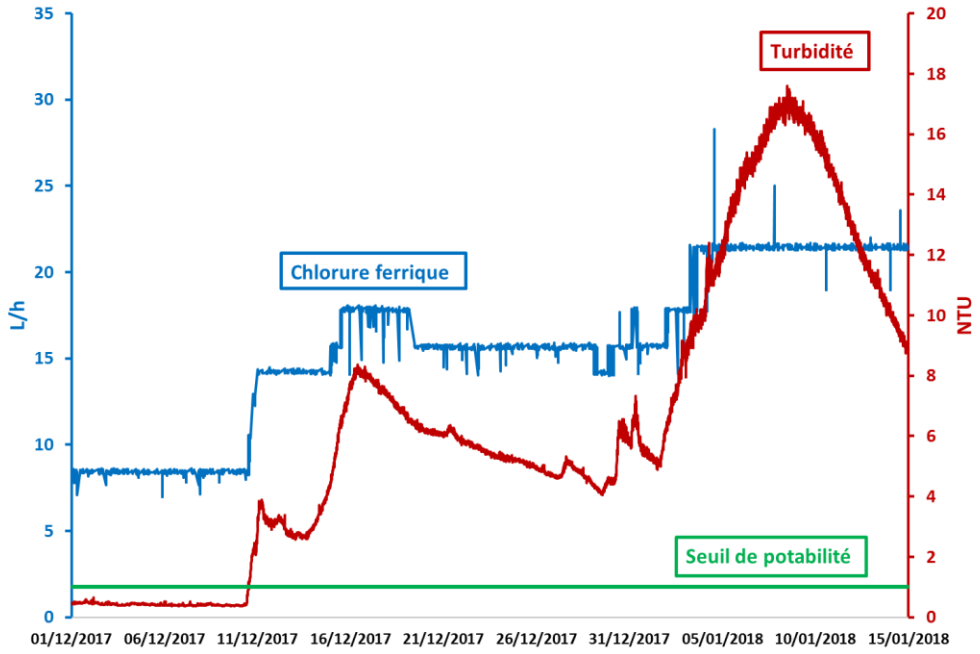


Figure 55 : Evolution temporelle de la turbidité mesurée dans l'Abîme du Toulon et de l'ajout de chlorure ferrique pour le traitement de l'eau brute pompée du 01/10/2017 au 15/01/2018.

2. Analyse temporelle des données haute-résolution pour évaluer le transfert des éléments dissous dans l'aquifère karstique

Cette partie s'attache à utiliser les données recueillies par le SSERK'ŒIL et de les analyser. Après une brève présentation des données utilisées, une première analyse est réalisée sur la chronique à long terme. Ensuite, une analyse plus fine à l'échelle de la crue permettra de distinguer différents modes de fonctionnement hydrogéologiques des Sources du Toulon.

2.1 Présentation des données utilisées

La chronique s'étend sur une période temporelle de quasiment 3 ans, comprise entre le 06 octobre 2015 et le 30 septembre 2018.

Le SSERK'ŒIL apporte une mesure fiable et précise, illustrée par la qualité des enregistrements présentés en Figure 56. Pour rappel, plusieurs paramètres sont enregistrés et bancarisés :

- la température ;
- le pH ;
- la conductivité électrique ;
- l'oxygène dissous ;
- la turbidité ;
- l'ion nitrate ;
- le carbone organique dissous.

2.2 Analyse de la chronique à long terme

Une première analyse graphique des données obtenues par le SSERK'ŒIL (Figure 56) montre une forte variabilité interannuelle des réponses physico-chimiques. Les cycles étudiés présentent des réponses physico-chimiques contrastées. Les cycles 2015-2016 et 2017-2018 sont des cycles à tendance humide, qui engendrent des réponses importantes et multiples pendant les périodes pluvieuses. Au contraire, le cycle 2016-2017 est un cycle moins pluvieux, cela se traduit par une faible variabilité hydrodynamique et physico-chimique. Les statistiques décrivant les séries temporelles sont présentées dans le Tableau 19.

L'analyse de la chronique à long terme permet d'acquérir de premières informations.

La conductivité électrique, présente des variations marquées essentiellement pendant les crues. Les diminutions enregistrées pendant ces périodes sont à relier à des apports d'eaux moins concentrées en éléments dissous. Hors des périodes de crue, le signal enregistré est assez stable avec une valeur d'environ 590 $\mu S.cm^{-1}$. Une légère diminution de conductivité électrique s'enregistre pendant la période de basses eaux. Cette diminution peut être reliée à une participation d'eau plus importante en provenance de l'aquifère captif du Jurassique (~ 550 $\mu S.cm^{-1}$ d'après les données des forages et de la source du Stade COPO).

La température montre peu de variation pendant les étiages (~ 14.5 °C), mais peu diminuer jusqu'à 12.8 °C pendant les crues. Cette diminution est à relier avec des arrivées d'eau plus froides en provenance des réservoirs plus hauts en altitude, et qui n'ont pas eu le temps de s'équilibrer avec la roche encaissante au cours de leur transit. Elle traduit un drainage plus rapide par rapport aux eaux de la zone noyée profonde.

L'oxygène dissous semble être en anti-phase avec la température, témoignant des connexions plus ou moins importantes qui peuvent se faire avec les horizons de subsurface. Lorsque les eaux des Sources du Toulon ne sont plus influencées par les eaux d'infiltration, la concentration en oxygène dissous peut diminuer fortement. Cette valeur peut être inférieure à 4 $mg.L^{-1}$ pendant les périodes de basses eaux. Ces faibles valeurs confirment le confinement de la nappe qui alimente les Sources du Toulon.

L'ion nitrate (NO_3^-) présente des variations complexes pendant les cycles hydrologiques étudiés, avec des concentrations qui peuvent augmenter ou diminuer pendant les crues. De façon plus générale, la concentration en NO_3^- moyenne dans les eaux des Sources du Toulon est de 12.50 $mg.L^{-1}$. Cette concentration, plus importante qu'un signal naturel (entre 0 et 5 $mg.L^{-1}$), indiquant l'apport non naturel sur le bassin d'alimentation des Sources du Toulon, et le caractère vulnérable de l'hydrosystème.

Les augmentations de concentrations sont enregistrées lors des crues qui apparaissent à la fin des étiages (crues de reprise hydrologique), ou lors de certaines crues en fin de printemps. Ces augmentations peuvent être reliées à des mobilisations de NO_3^- stockés dans le sol et la zone non saturée de l'aquifère. Les diminutions de concentrations en NO_3^- sont enregistrées lors des crues qui suivent les mobilisations précédemment décrites. Ces diminutions sont engendrées par une arrivée contenant une concentration plus faible en NO_3^- que le bruit de fond. Des diminutions de concentrations en NO_3^- peuvent également être enregistrées hors évènement de crue, pendant les périodes d'étiage. Ces diminutions peuvent par une contribution plus importante de l'aquifère du Jurassique supérieur, qui possède des teneurs moins importants en NO_3^- (~ 6-8 $mg.L^{-1}$ d'après les données des forages).

Le Chapitre 5 de ce manuscrit propose une nouvelle approcghe pour caractériser les différentes sources de nitrate enregistrées dans l'aquifère karstique.

Le signal de turbidité peut présenter des variations importantes en lien avec les perturbations du régime hydrologique. Lors des crues, le signal de turbidité peut être complexe avec plusieurs augmentations de ce signal, en lien ou non avec le transfert de masse. Ce signal peut atteindre jusqu'à 18 NTU pendant les crues. Lors des périodes de basses eaux, la valeur de ce signal diminue largement (~0.20 NTU), et caractérisé par une eau très claire aux Sources du Toulon. Hors évènements pluvieux, certaines augmentations du signal de turbidité sont enregistrées par le SSERK'ŒIL. Ces pics s'enregistrent en quelques heures et peuvent atteindre une valeur de 254 NTU, causant des arrêts des pompages de l'eau brute. Ces augmentations surviennent après des diminutions brutales de débits aux Sources du Toulon, et peuvent être expliqués par des effondrements karstiques proche du conduit terminal (Sabidussi, 2017).

Le Chapitre 6 de ce manuscrit propose une approche pour caractériser l'origine et la dynamique des particules en suspension retrouvées aux Sources du Toulon.

Le carbone organique dissous (COD), montre en milieu karstique les apports d'eau en provenance du sol (Emblanch et *al.*, 1998 ; Batiot et *al.*, 2003b). Pendant les périodes de basses eaux, les concentrations en COD sont faibles (~ 0.25 $mg.L^{-1}$), mais peuvent être plus importantes pendant les périodes de crues, jusqu'à 2.90 $mg.L^{-1}$. Ce paramètre est un bon

proxy pour la détermination de l'origine des eaux d'origine sub-superficielle, en le couplant avec les autres paramètres étudiés.

Le Chapitre 6 de ce manuscrit propose des réflexions sur l'analyse du signal de carbone organique dissous, en lien avec les infiltrations diffuses et concentrées.

Le pH est le paramètre enregistré qui présente le plus de bruit de mesure, montrant la difficulté d'acquisition d'un signal précis du pH. Hors période de crue, ce paramètre présente une certaine stabilité avec une valeur d'environ 7.05, traduisant de la neutralité des eaux de la zone noyée de l'aquifère alimentant les Sources du Toulon. Pendant les périodes de crues, ce paramètre peut présenter des variations importantes avec des valeurs pouvant diminuer jusqu'à 6.89, illustrant des arrivées d'eau à caractère plus agressives.

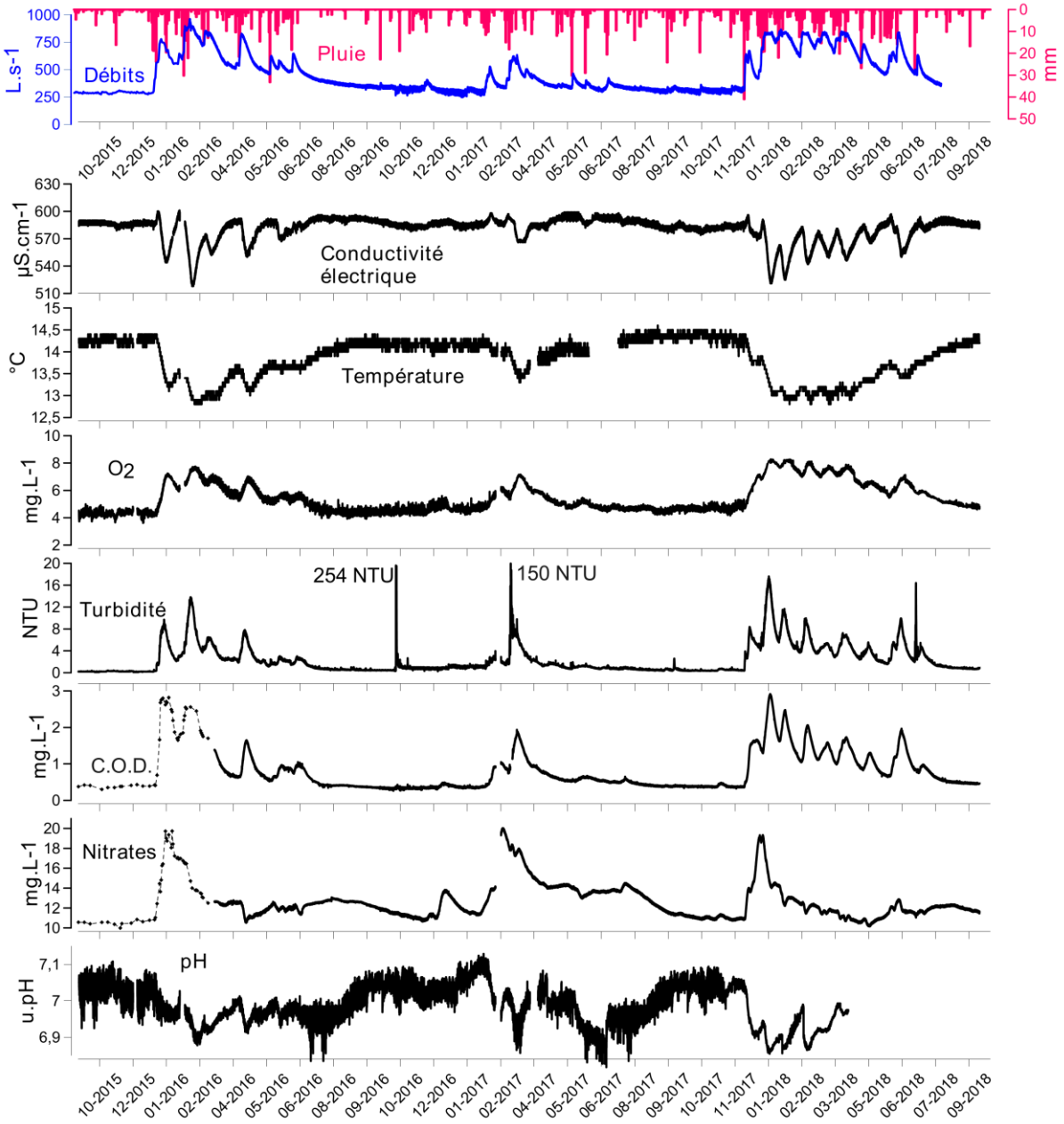


Figure 56 : Evolution temporelle des paramètres physico-chimiques en lien avec les réponses hydrodynamqiues, enregistrée en continu aux Sources du Toulon, du 01/10/2015 au 30/09/2018.

Tableau 19 : Statistiques des séries temporelles des paramètres physico-chimiques enregistrés aux Sources du Toulon avec le SSERK'ŒIL.

	2015-2016						2016-2017						2017-2018						2015-2018					
	n	Moyenne	Min	Max	σ	CV (%)	n	Moyenne	Min	Max	σ	CV (%)	n	Moyenne	Min	Max	σ	CV (%)	n	Moyenne	Min	Max	σ	CV (%)
Débit	34739	536	290	962	165	31	52559	354	295	633	60	17	43990	576	293	865	191	33	131288	489	290	962	176	36
Conductivité électrique	33776	580	518	601	14	2	43607	586	566	599	6	1	33656	573	521	597	15	3	111039	580	518	601	12.93	2
Température	33286	13.8	12.8	14.4	0.4	2.9	30280	14.1	13.3	14.6	0.2	1.4	33656	13.7	12.8	14.5	0.5	3.6	97222	13.80	12.8	14.6	0.5	3.6
Oxygène dissous	33902	5.18	3.62	7.75	1	19.31	47625	4.94	3.59	7.16	0.61	12.35	50512	6.1	3.65	8.5	1.22	20.00	132039	5.41	3.59	8.5	1.11	20.00
Turbidité	35074	2.04	0.10	13.82	1.88	91.73	57257	1.51	0.25	202.00	4.70	310.71	50512	3.60	0.31	17.60	3.19	88.57	142843	2.38	0.1	202	3.76	88.57
Carbone organique dissous *	57598	0.67	0.31	1.64	0.3	44.78	84956	0.54	0.26	1.94	0.29	53.70	84195	1.02	0.32	2.91	0.58	56.86	226749	0.74	0.26	2.91	0.48	56.86
Nitrates *	47598	12.23	10.51	13.07	0.50	4.10	85432	13.23	10.64	20.03	1.91	14.44	84194	12.04	10.14	19.34	1.58	13.13	84194	12.50	10.14	20.03	1.66	13.13
pH **	34101	6.987	6.835	7.108	0.044	0.630	60017	7.005	6.818	7.129	0.056	0.080	20844	6.975	6.855	7.094	0.066	0.946	114962	6.989	6.818	7.129	0.056	0.946

* A partir du 16/03/2016
** Jusqu'au 13/04/2018

2.3 Analyse de l'évolution des paramètres hydrochimiques pendant les crues

Au vu des premières informations mises en lumière par l'analyse générale des différents paramètres physico-chimiques à travers la chronique sur 3 ans, il parait intéressant de se focaliser sur l'analyse des réponses engendrées lors des évènements pluvieux.

2.3.1 Présentation des crues

Entre octobre 2015 et septembre 2018, 21 crues ont été générées par des événements pluvieux aux Sources du Toulon. Il ne s'agit pas ici de décrire de façon exhaustive l'intégralité des crues mais de décrire certaines d'entre elles. Les crues sont choisies en fonction des réponses hydrodynamiques et physico-chimiques qu'elles fournissent.

Trois catégories principales de crues permettent de préciser le fonctionnement hydrogéologique des Sources du Toulon, et de préciser la dynamique de transfert des éléments dissous et particulaires dans l'aquifère karstique :

- **les crues de reprise hydrologique** caractérisées par les crues de février 2017 et de décembre 2017 (Figure 57) ;
- **les crues hivernales et printanières** caractérisées par les crues d'avril 2016 et d'avril 2018 (Figure 58) ;
- **les crues engendrées par des orages pendant les périodes d'étiage**, caractérisées par les crues de juillet 2017 et d'octobre 2017 (Figure 59).

Le tableau synthétisant les statistiques descriptives des crues est fourni en Tableau 20.

Tableau 20 : Statistiques descriptives des crues servant à l'analyse des modalités de transfert des éléments dissous et particulaires dans le système karstique du Toulon.

Condition hydrologique	Crue		Q (L/s)	EC (µS/cm)	Température (°C)	Oxygène dissous (mg/L)	Turbidité (NTU)	COD (mg/L)	NO_3 (mg/L)	pH u.pH
Reprise hydrologique	Février 2017	n	3600	1955	1955	2592	2592	4388	4388	1955
		Min	277	583	13.80	4.61	0.70	0.18	12.06	6.945
		Max	511	598	14.30	6.25	3.95	1.30	20.03	7.116
		Moyenne	386	590	14.01	5.32	1.89	0.70	14.93	7.037
		σ	56	4	0.11	0.42	0.51	0.23	2.89	0.044
		CV (%)	14	1	0.79	7.89	27.03	32.70	19.35	0.625
	Décembre 2017	n	2592	1631	1631	2592	2592	4320	4320	1631
		Min	317	568	13.70	4.68	0.36	0.17	10.84	6.898
		Max	617	596	14.40	7.15	8.37	2.30	19.12	7.048
		Moyenne	496	579	14.00	6.03	5.15	1.66	14.58	6.950
		σ	88	7	0.21	0.74	1.80	0.45	2.23	0.046
		CV (%)	18	1	1.50	12.27	34.95	27.09	15.30	0.662

Condition hydrologique	Crue		Q (L/s)	EC (µS/cm)	Température (°C)	Oxygène dissous (mg/L)	Turbidité (NTU)	COD (mg/L)	NO_3 (mg/L)	pH u.pH
Hiver et printemps	Avril 2016	n	5617	3936	3936	3936	5617	9353	9353	3936
		Min	449	550	13.00	4.97	1.12	0.44	10.51	6.911
		Max	782	592	13.80	7.03	7.82	2.27	12.71	7.013
		Moyenne	570	576	13.40	5.85	3.36	1.11	11.55	6.963
		σ	110	12	0.19	0.54	1.89	0.34	0.55	0.022
		CV (%)	19	2	1.42	9.23	56.19	30.50	4.76	0.316
	Février 2018	n	4464	2971	2971	4464	4464	7440	7440	2971
		Min	649	543	12.80	6.95	2.83	1.06	11.34	6.860
		Max	483	579	13.20	8.11	8.04	2.01	12.44	6.963
		Moyenne	760	561	13.00	7.46	4.61	1.38	11.86	6.917
		σ	47	8	0.08	0.26	0.96	0.21	0.29	0.020
		CV (%)	6	1	0.62	3.49	20.82	15.22	2.45	0.289

Condition hydrologique	Crue		Q (L/s)	EC (µS/cm)	Température (°C)	Oxygène dissous (mg/L)	Turbidité (NTU)	COD (mg/L)	NO_3 (mg/L)	pH u.pH
Etiage	Juillet 2017	n	5616	4563	4563	5616	5616	9363	9363	4563
		Min	308	584	14.10	4.41	0.57	0.44	13.49	6.818
		Max	422	598	14.50	5.03	1.37	0.65	14.52	7.006
		Moyenne	347	590	14.20	4.67	0.77	0.51	13.89	6.948
		σ	21	2	0.07	0.11	0.11	0.03	0.26	0.030
		CV (%)	6	0	0.49	2.36	14.29	5.88	1.87	0.432
	Octobre 2017	n	8208	5470	5470	5470	8208	13679	13679	5470
		Min	298	574	14.10	4.16	0.31	0.34	10.72	6.962
		Max	361	588	14.50	5.27	0.98	0.48	11.39	7.094
		Moyenne	313	580	14.30	4.63	0.45	0.39	11.01	7.041
		σ	15	2	0.08	0.15	0.11	0.02	0.13	0.021
		CV (%)	5	0	0.56	3.24	24.44	5.13	1.18	0.298

2.3.2 Analyse des réponses des paramètres physico-chimiques en lien avec les évènements pluvieux

LES CRUES DE REPRISE HYDROLOGIQUE

Les crues de reprise hydrologique sont généralement rencontrées pendant l'automne ou au début de l'hiver. Elles sont liées à des évènements pluvieux plus ou moins intenses qui apparaissent après un longue période d'étiage. Précédant ces évènements, les conditions hydrodynamiques sont généralement calmes, avec des débits mesurés autour de 300 $L.s^{-1}$. La qualité de l'eau est meilleure que pendant les périodes de hautes eaux, en lien avec une participation plus importante de l'aquifère captif du Jurassique.

Les crues de février 2017 et décembre 2017 (Figure 57) sont de bons exemples de crues de reprise hydrologique. Les réponses hydrochimiques pendant ces évènements de crues sont complexes mais peuvent se résumer en plusieurs phases :

- une phase d'arrivée d'eau plus minéralisée lors de la montée de crue, illustrée par des augmentations de conductivité électrique et de turbidité ;
- une phase de dilution des eaux de à la source de l'Abîme du Toulon par des eaux en provenance de subsurface, se traduisant par une diminution de la conductivité électrique associée à des augmentations de concentrations des traceurs de l'infiltration (NO_3^-, COD).

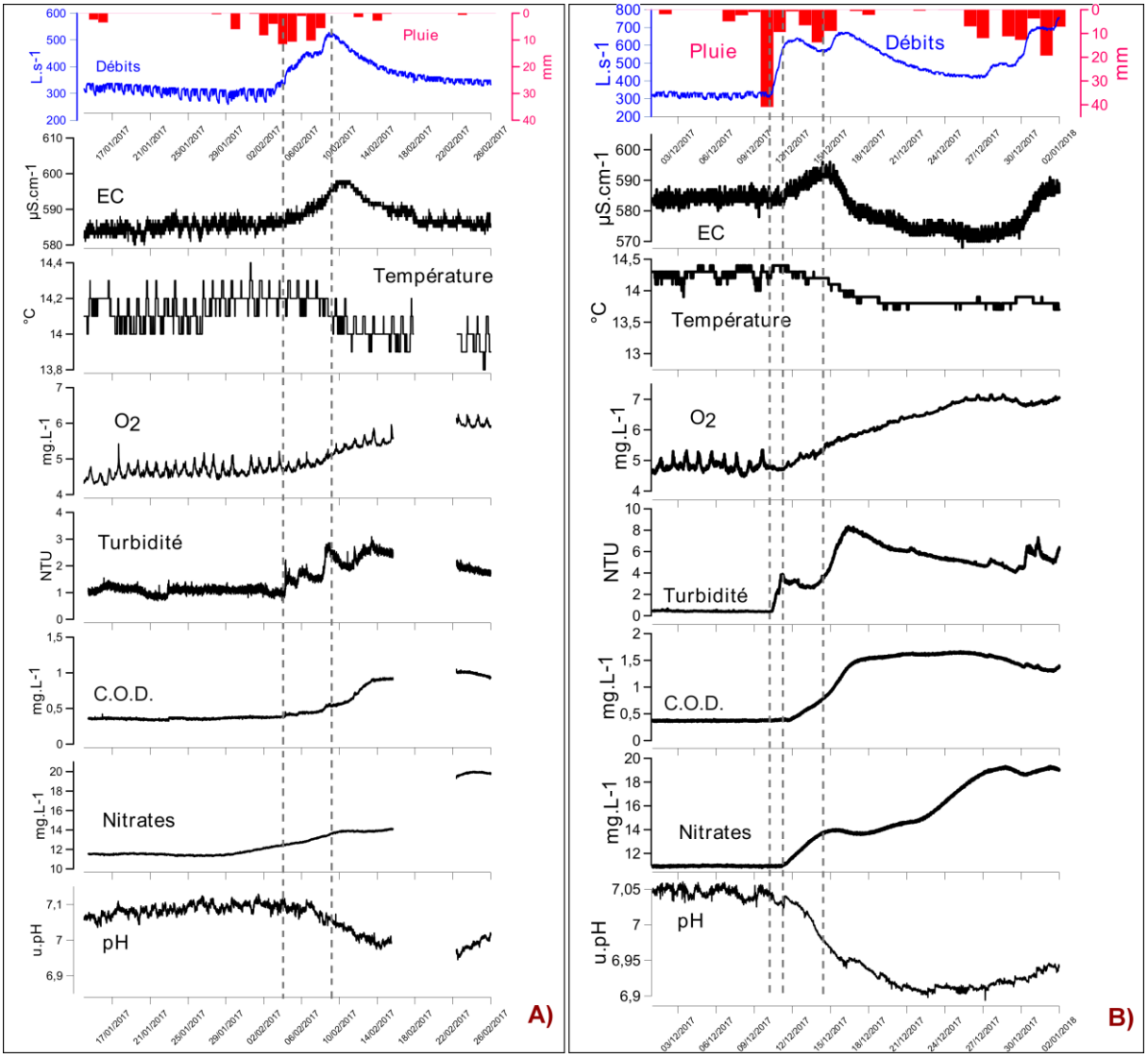


Figure 57 : Evolution temporelle des débits et des paramètres physico-chimiques mesurés en continu aux Sources du Toulon. A) crue de février 2017. B) crue de décembre 2017.

Pendant la phase de dilution, les signaux en NO_3^- et COD ne présentent pas une évolution synchrone. Sur un bassin versant non anthropisé, ces deux paramètres proviennent de la matière organique du sol. Sur le bassin d'alimentation des Sources du Toulon, l'apport important d'azote anthropique en surface implique des origines différentes pour ces paramètres. L'augmentation de concentration en NO_3^- à l'exutoire du système montre un phénomène de mobilisation de nitrates stocké dans le sol et la zone non saturée de l'aquifère pendant l'étiage.

L'évolution asynchrone de ces signaux géochimiques montre qu'au sein même de cette période de dilution, il y a participation d'au moins deux masses d'eau différentes.

Le Chapitre 5 de ce manuscrit propose une approche spécifique à cet élément pour identifier ces masses d'eau, justifiant que cette partie n'entre pas dans les détails.

Pendant les crues de reprise hydrologique, la température de l'eau et la concentration en oxygène dissous évoluent en lien avec les différentes masses d'eau qui transitent à l'exutoire du système. Notons un apport d'eau plus froide en décrue, associée à une concentration en oxygène dissous plus importante. Ce constat confirme un apport d'eau en provenance d'un réservoir moins profond en milieu ouvert, mais les évolutions de ces

paramètres ne sont pas synchrones aux autres traceurs de l'infiltration tels que le NO_3^- et le COD. Ceci illustre des mécanismes de transfert différents et complexes.

L'inertie des réponses naturelles dépend de l'intensité d'une part de l'évènement pluvieux, et d'autre part des conditions de saturation des horizons de surface (Houillon, 2016) ; causant ainsi des transferts de pression et de masse différents. Les deux crues présentées en (Figure 57) représentent bien ces différences d'inertie du transfert de masse, pouvant aller de un jour à quelques jours. Les crues de reprise hydrologique montrent les premières arrivées d'eau des réservoirs de subsurface qui s'expliquent par la réactivation des connexions hydrauliques avec la zone noyée plus profonde.

LES CRUES PRINTANIERES

Les crues printanières se rencontrent après la première crue de reprise hydrologique, lorsque le système karstique présente des connexions hydrauliques fortes entre la zone non saturée et l'exutoire du système. Pendant ces périodes-là, le sol en surface présente une configuration favorable à l'infiltration (Réserve utile maximale atteinte et épikarst rechargé), pouvant causer de nombreuses crues répétées pendant les périodes printanières si les évènements pluvieux sont suffisamment intenses.

Les crues d'avril 2016 et d'avril 2018 (Figure 58) sont de bons exemples de crues printanières. L'analyse des réponses naturelles est plus simple que pour les crues de reprise hydrologique. Le découpage de la crue s'articule encore suivant deux phases de chasse d'eau préexistante et de dilution par des eaux nouvelles, mais qui cependant diffère des crues de reprise hydrologique :

- la chasse d'eau localisée dans le réseau noyé pendant la montée de crue n'est pas caractérisée par une eau plus minéralisée. Le transfert particulaire est également moins prononcé, avec une évolution unimodale pendant l'ensemble de la crue ;
- la dilution des eaux est caractérisée par une diminution plus ou moins importante de la conductivité électrique, associée à une diminution synchrone du COD et NO_3^-.

La diminution de concentration en NO_3^- pendant les crues hivernales et printanières sont caractéristiques d'un phénomène de dilution de l'eau de la zone noyée par une eau nouvelle moins concentrée en nitrate. Le stock, précédemment lessivé pendant la première crue du cycle hydrologique, n'a pas eu le temps de se reconstituer.

L'ensemble des paramètres physico-chimiques présente des évolutions synchrones pendant les crues printanières, témoignant des conditions de transfert de masse facilités par des connexions hydrauliques bien établies entre le continuum sol – zone non saturée – zone saturée – exutoire.

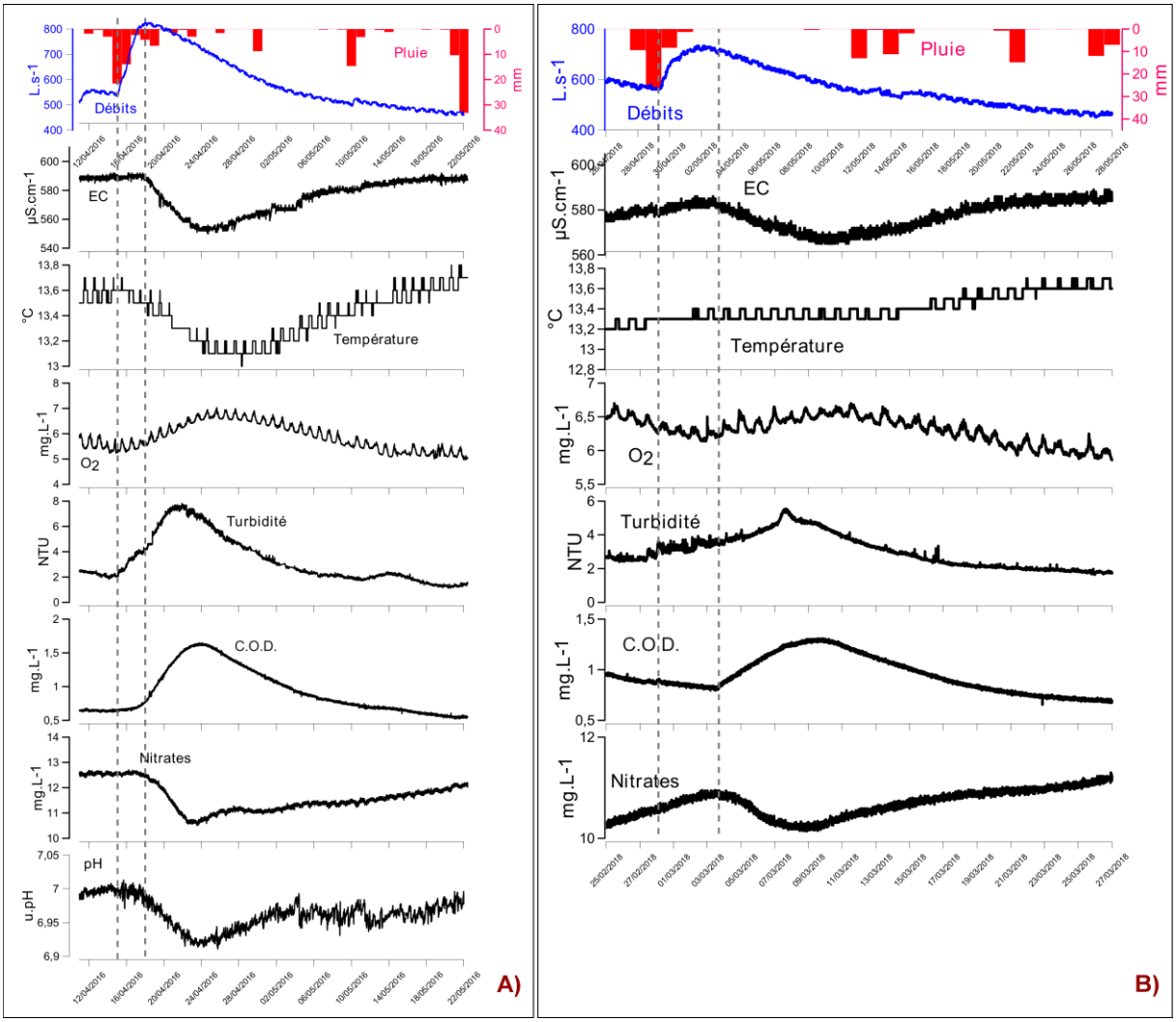


Figure 58 : Evolution temporelle des débits et des paramètres physico-chimiques mesurés en continu aux Sources du Toulon. A) crue d'avril 2016. B) crue d'avril 2018.

LES CRUES DE FAIBLE INTENSITE ENGENDREES EN PERIODE DE BASSES EAUX

Les crues de faible intensité causées par des évènements pluvieux intenses en période de basses eaux peuvent être provoquées par des orages (crue d'octobre 2017), ou par des précipitations intenses cumulées pendant plusieurs jours (crue de juillet 2017). Elles apparaissent dans des conditions d'étiage plus ou moins prolongées, lorsque le sol présente une très faible quantité d'eau. Les évènements pluvieux causant ces crues permettent une saturation partielle du sol et une faible infiltration d'eau vers l'aquifère. Les crues sont de faible intensité (quelques dizaines de litre par seconde) et engendrent des réponses naturelles particulièrement intéressantes.

Les crues de juillet 2017 et octobre 2017 (Figure 59) sont de bons exemples de crues de faible intensité en période de basses eaux. L'analyse des réponses naturelles produites pendant ces crues apportent des éléments complémentaires à la compréhension du fonctionnement hydrogéologique des Sources du Toulon.

Le transfert de pression associé à la montée de crue provoque une augmentation du signal de turbidité différent suivant l'origine de ce transfert. Un orage violent a causé une

augmentation brutale du signal de turbidité (octobre 2017), et des précipitations cumulées ont produit une augmentation plus inertielle de ce signal (juillet 2017). La montée de crue ne provoque pas de variation des signaux en éléments dissous (conductivité électrique, NO_3^-, COD), c'est de l'eau des drains karstiques qui est pistonnée.

Pendant la décrue, les évolutions des signaux se complexifient. Le signal NO_3^- présente une évolution tout à fait particulière avec une double augmentation. Une première légère augmentation de la concentration en nitrates faible est mesurée aux Sources du Toulon, alors que les autres éléments dissous et particulaires n'évoluent pas. Une seconde augmentation plus importante s'ensuit. Elle est synchrone avec une augmentation de la concentration en carbone organique dissous et du signal de la turbidité.

Ce double pic de nitrates indique l'arrivée de deux masses d'eau différentes à l'exutoire du système karstique.

- la première augmentation de nitrate, sans augmentation de carbone organique dissous, témoigne de la participation d'une eau en provenance de la zone noyée libre du Crétacé. Cette augmentation singulière de NO_3^- peut être associée à une mobilisation plus importante des eaux du réservoir du Crétacé supérieur, par effet piston ;
- la deuxième augmentation de nitrate, cette fois-ci associée à une augmentation de COD et du signal de turbidité, peut être reliée à une masse d'eau ayant transité à travers le sol et la zone non saturée de l'aquifère. Une évolution du signal de turbidité synchrone aux variations des concentrations en éléments dissous, témoigne d'une arrivée d'eau subsuperficielle. Ceci est confronté par la présence de particules d'origine allochtone au système karstique comme nous le démontrerons dans le Chapitre 6.

Le transfert de masse d'une eau en provenance du sol et de la zone non saturée de l'aquifère 21 jours après l'évènement de crue (Figure 59). Cet écoulement retardé s'explique par les mauvaises connexions hydrauliques existant au sein du système à cette période du cycle hydrologique, mais donne des informations précieuses sur les temps de transit moyen entre la surface et l'exutoire en période de basses eaux.

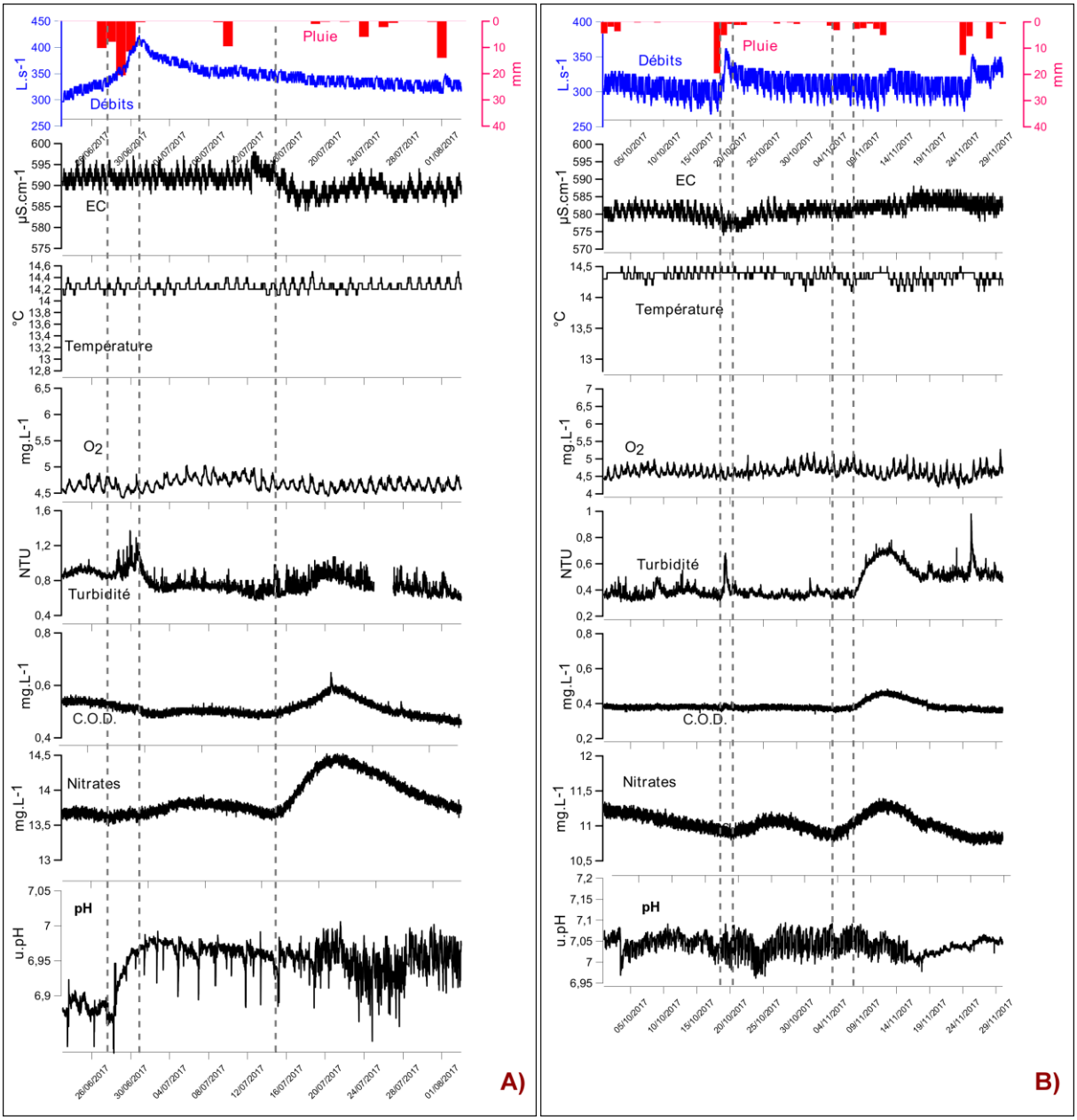


Figure 59 : Evolution temporelle des débits et des paramètres physico-chimiques mesurés en continu aux Sources du Toulon. A) crue de juillet 2017. B) crue de novembre 2017.

3. Apport du traitement du signal des chroniques haute-résolution

Cette section propose de caractériser la dynamique des paramètres physico-chimiques à partir du traitement du signal des données haute-résolution enregistrées par le SSERK'ŒIL. Le traitement du signal se fera tout d'abord sur les données de l'ensemble de la chronique obtenue, puis il se focalisera à l'échelle des crues.

3.1 Traitement du signal de la chronique à long terme

Des analyses corrélatoires simples et croisées sont réalisées dans le but d'identifier et de comparer les réponses hydrodynamiques et hydrochimiques des Sources du Toulon. Ce traitement du signal couvre l'ensemble des données disponibles du 16/03/2016 au 30/09/2018. Les analyses sont donc réalisées sur une période pluriannuelle couvrant des périodes de basses eaux mais également de hautes eaux. La synthèse des résultats issue de l'analyse des corrélogrammes simples et croisés est donnée dans le Tableau 21.

La Figure 60 présente les corrélogrammes simples des débits et des paramètres physico-chimiques au pas de temps horaire au cours des années 2016, 2017 et 2018.

La Figure 61 montre les corrélogrammes croisés des débits et des paramètres physico-chimiques pour le même jeu de données. Dans un premier temps, la dynamique des paramètres hydrodynamiques et hydrochimiques est évaluée en considérant la pluie comme signal d'entrée (en bleu). Puis, dans un deuxième temps, les réponses hydrochimiques sont analysées en considérant le débit comme signal d'entrée (en rouge). Les valeurs utilisées dans l'interprétation des corrélogrammes croisés sont résumés dans le Tableau 21B et Tableau 21C.

Tableau 21 : Synthèse des résultats des analyses corrélatoires simples et croisées réalisées avec l'ensemble de la chronique obtenue par le SSERK'ŒIL, entre octobre 2015 et septembre 2018. ACS : Analyse corrélatoire simple. ACS : Analyse corrélatoire croiée

ACS **A)**

	Q	T	pH	EC	O_2	Turbi	NO_3^-	COD
k (j)	94	86	53	94	94	44	43	70

ACC **B)**

	P-Q	P-T	P-pH	P-EC	P-O_2	P-Turbi	P-NO_3^-	P-COD
k (j)	5	13	12	11	13	6	17	10
r (k)	0.24	-0.19	-0.21	-0.27	0.25	0.28	0.09	0.28

ACC **C)**

	Q-T	Q-pH	Q-EC	Q-O_2	Q-Turbi	Q-NO_3^-	Q-COD
k (j)	6	4	5	4	1	72	4
r (k)	-0.94	-0.66	-0.74	0.91	0.68	-0.35	0.85

3.1.1 L'analyse des corrélogrammes simples

Le chapitre précédent a déjà souligné l'inertie importante des débits des Sources du Toulon, à l'image de l'effet mémoire décrit par Mangin (1975). Les corrélogrammes simples des différents paramètres peuvent montrer des inerties très différentes. En effet, la valeur r(k)=0.2, utilisée comme référence dans de nombreuses études en milieu karstique pour définir l'effet mémoire, est atteint entre 43 et 99 jours. Ceci illustre la différence de dynamique des paramètres enregistrés.

La valeur maximale est mesurée pour **le débit** (99 jours), avec une décroissance lente et quasiment rectiligne (Figure 60A). Cette valeur est supérieure à celle calculée lors du chapitre précédent, qui intégrait l'ensemble des données de débit depuis 2007. Ce décalage peut être expliqué par une longue période s'étalant de juin 2016 à novembre 2017 sans grosses variations hydrodynamiques.

La turbidité présente une valeur de r(k)=0.2 à 44 jours, ce qui est plus faible que pour les débits (Figure 60B). La décroissance est caractérisée par trois pentes disctinctes : (i) la première est très forte pendant les 3 premiers jours ; (ii) la seconde diminue jusqu'à 12 jours ; (iii) la troisième diminue encore jusqu'à 44 jours. Ce constat témoigne de la capacité de variation rapide du signal de turbidité, avec une possibilité d'augmentation très brutale, et une capacité de diminution du signal également rapide.

La conductivité électrique montre également une valeur importante de l'effet mémoire (94 jours), qui se rapproche de celle calculée pour les débits (Figure 60C). Comme pour le signal de turbidité, la décroissance n'est pas linéaire. Elle se caractérise par une décroissance rapide pendant les 12 premiers jours, puis une décroissance relativement lente jusqu'à 94 jours. Ce résultat traduit une capacité de variation rapide de la conductivité électrique, mais moins brutal que la turbidité. La distinction avec cette dernière est la dernière pente qui est beaucoup plus faible pour la conductivité électrique, et qui atteint l'effet mémoire à 94 jours, illustrant une influence des perturbations beaucoup plus longue.

Le pH (Figure 60D), la température (Figure 60E), et l'oxygène dissous (Figure 60F) présentent des décroissances rectilignes similaires, avec des effets mémoire différents, respectivement de 53 jours, 86 jours, et 94 jours. Les décroissances rectilignes de ces signaux montrent une faible capacité de variation de ces paramètres. Seul le pH se distingue par une pente plus importante.

Le carbone organique dissous atteint l'effet mémoire à 70 jours avec une décroissance en deux pentes.

Les nitrates montrent l'inertie la plus faible (43 jour pour r(k)=0.2) témoignant d'une capacité de retour aux conditions de base plus rapide que pour les autres paramètres.

Malgré des inerties pour plus moins importantes en fonction du paramètre étudié, les valeurs d'effet mémoire (entre 43 et 99 jours) restent très importantes pour un système karstique.

Comme expliqué précédemment l'influence d'une longue période de condition hydrologique, qui correspond à environ à la moitié de nos données utilisées pour le traitement du signal, peut impacter fortement les valeurs d'effet mémoire moyennes montrées ici. Il sera

pertinent de refaire ce traitement lorsque la chronique intègrera de nombreux cycles hydrologiques.

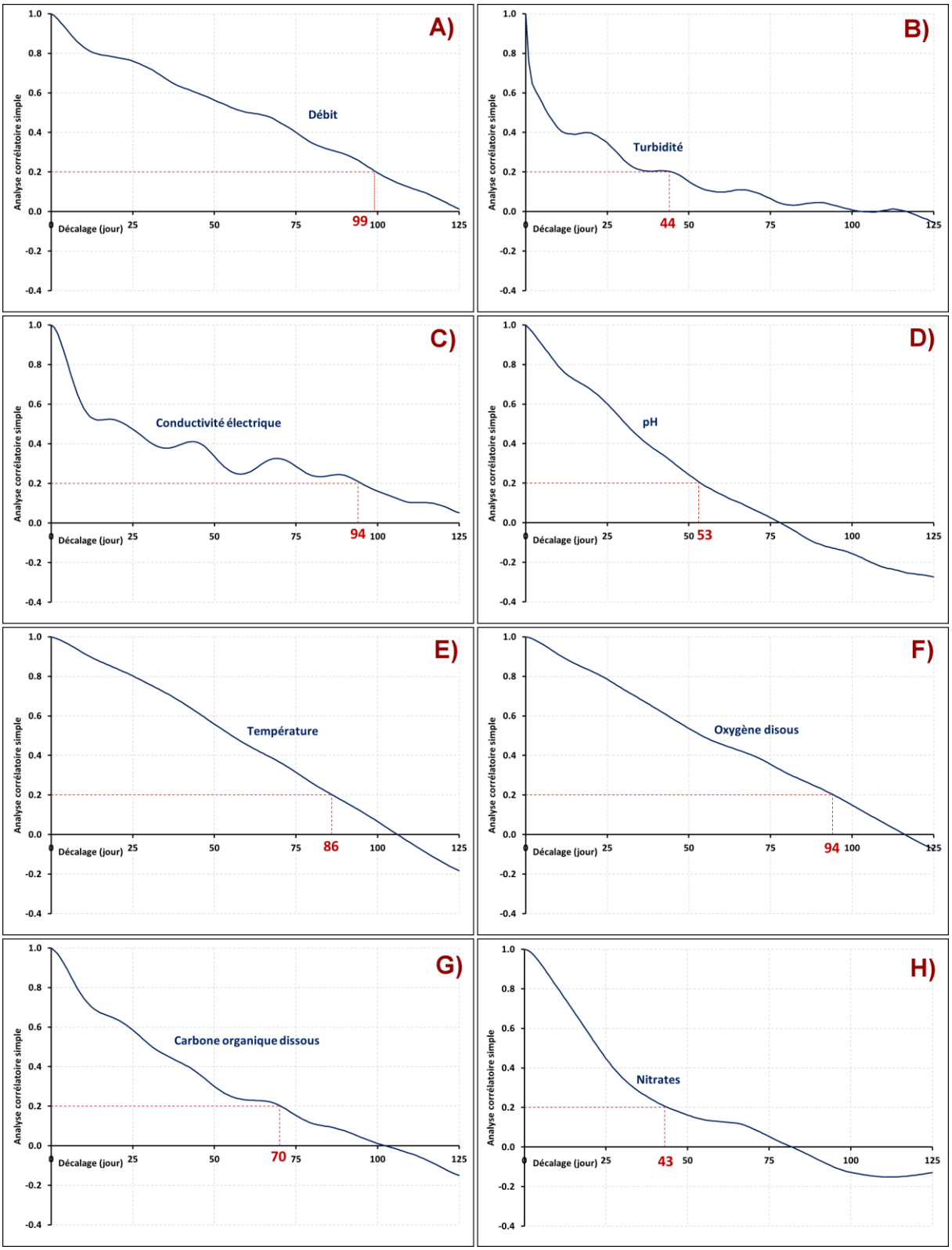


Figure 60 : Corrélogrammes simples réalisés avec l'ensemble des données enregistrées par le SSERK'ŒIL A) débits, B) turbidité, C) conductivité électrique, D) pH, E) température, F) oxygène dissous, G) carbone organique dissous, H) nitrates.

3.1.2 L'analyse des corrélogrammes croisés

LES CORRELOGRAMMES CROISES CONSIDERANT LA PLUIE COMME SIGNAL D'ENTREE

Lorsque la pluie est considérée comme signal d'entrée, les coefficients de corrélation de ces corrélogrammes sont relativement faibles, avec des valeurs de r(k) compris entre 0.09 et 0.28, et des décalages compris entre 5 jours et 17 jours.

Le corrélogramme croisée pluie-débit (Figure 61A) montre une corrélation similaire de celle calculée sur l'ensemble de la chronique (Figure 35 du chapitre 3). La valeur de r(k) est de 0.24 pour un décalage de 5 jours.

Le corrélogramme croisé pluie-turbidité (Figure 61B) montre une corrélation positive de 0.28 pour un décalage de 6 jours, ce qui est proche des valeurs calculées pour les débits.

Le corrélogramme croisé pluie-conductivité électrique (Figure 61C) montre une anti-corrélation avec des valeurs de r(k) négative de -0.27 pour un décalage de 11 jours. Ce décalage est plus important que pour la turbidité et le débit.

Le corrélogramme croisé pluie-pH (Figure 61D) présente une anti-corrélation plus faible que la conductivité électrique, avec une valeur de r(k) de -0.21 pour un décalage de 12 jours.

Les corrélogrammes croisés pluie-température (Figure 61E) et **pluie-oxygène dissous** (Figure 61F) montrent une allure similaire, avec un décalage commun de 13 jours. Les valeurs de r(k) sont différentes, et sont respectivement de -0.19 et 0.25.

Le corrélogramme croisé pluie-carbone organique dissous (Figure 61G) se caractérise par une corrélation positive, avec une valeur de r(k) de 0.28 pour un décalage de 10 jour.

Le corrélogramme croisé pluie-nitrate (Figure 61H) présente la plus faible corrélation entre le signal d'entrée et le signal de sortie. Les variations complexes d'évolution des concentrations en nitrates à l'exutoire pendant les crues (parfois en augmentation, parfois en diminution), sont probablement la cause de cette corrélation médiocre.

Peu de travaux ont réalisé ce genre d'analyse sur des données physico-chimiques. Citons les apports de ceux de Cholet (2017), qui offrent des éléments de comparaison pour un système karstique dans le Jura. Les valeurs calculées pour les décalages temporels de débit, conductivité électrique, turbidité et carbone organique dissous sont nettement plus faibles que pour le système karstique du Toulon, et sont compris entre 12 et 34 heures.

LES CORRELOGRAMMES CROISES CONSIDERANT LE DEBIT COMME SIGNAL D'ENTREE

Les corrélogrammes considérant le débit comme signal d'entrée vont montrer des corrélations beaucoup plus importantes (maximum à -0.94 pour la température). Ceci semble normal dans la mesure où les paramètres évoluent pendant les périodes de crues, là où les débits évoluent également. L'ensemble des paramètres est caractérisé par des allures similaires, à l'exception des nitrates, qui montrent une allure plus chaotique, résultant probablement des évolutions des concentrations parfois en augmentation et parfois en diminution. A l'exception des nitrates, les décalages sont calculés entre 1 et 6 jours.

Il est pertinent ici de centrer l'interprétation sur la valeur maximale de la corrélation/anti-corrélation de chaque paramètre. Pour un paramètre qui montre une corrélation la plus proche de 1 ou -1, ses évolutions peuvent être considérées comme très dépendantes des débits, et non d'autres forçages externes. En d'autres termes, plus le débit montrera une variation importante, plus ce paramètre présentera lui aussi une variation significative.

Le corrélogramme croisé débit-turbidité montre une forte dépendance du signal de turbidité aux variations de débits, avec un r(k)=0.68 pour un décalage de 1 jour. Malgré un décalage de 1 jour qui peut traduire une corrélation importante entre le signal d'entrée et de sortie, la valeur de 0.68 est ici une des plus faibles. Les variations du du signal de turbidité en milieu karstique sont complexes, avec une dynamique et des origines différentes. Ceci se retrouve sur le corrélogramme croisé débit-turbidité. Au contraire, **les corrélogrammes croisés débit-température** (Figure 61E) ou **débit-oxygène dissous** (Figure 61F) présentent des corrélations très importantes, respectivement de -0.94 et 0.91. Les évolutions de ces paramètres sont beaucoup plus simples que celles du signal de turbidité, et seront plus dépendantes des débits des Sources du Toulon.

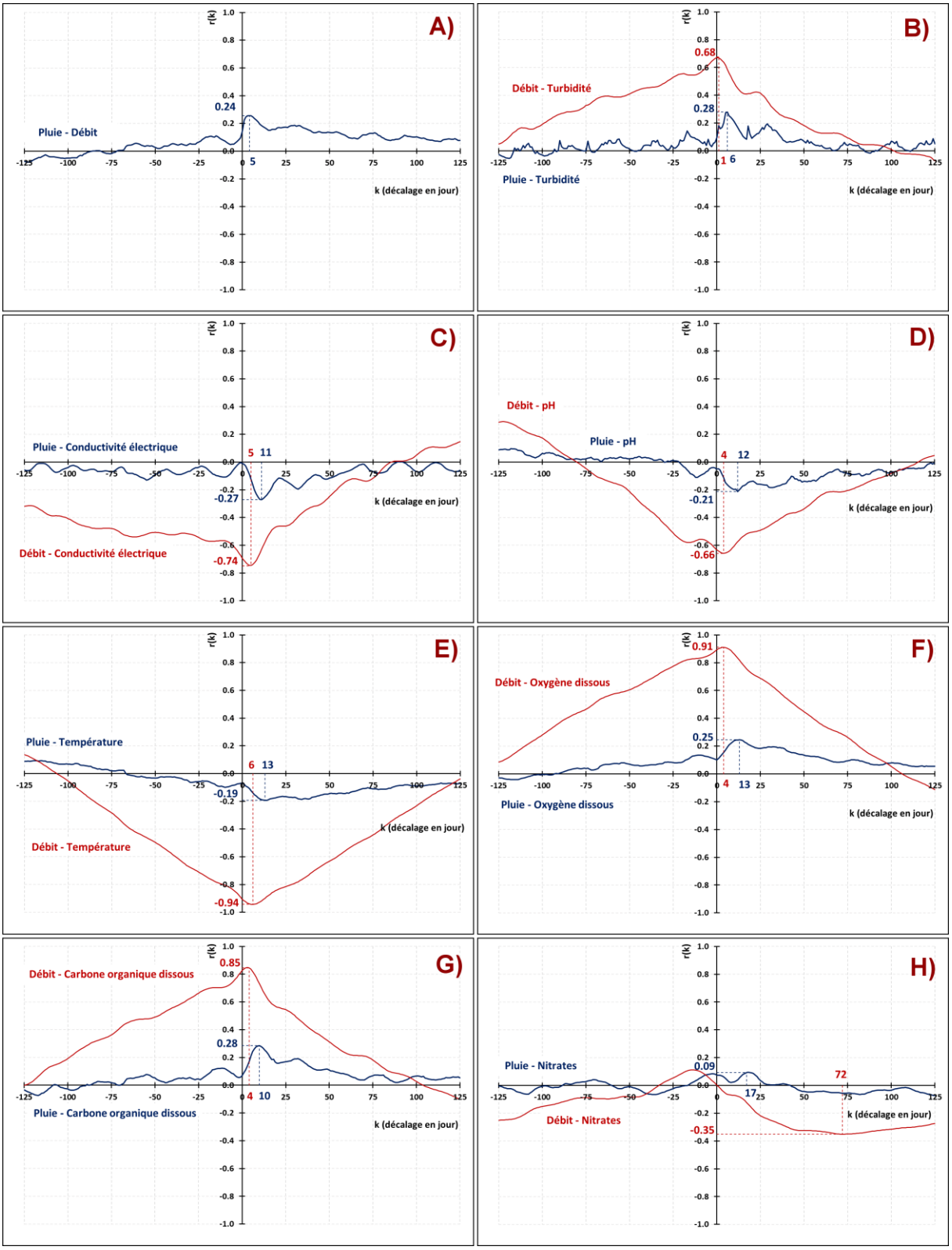


Figure 61 : Corrélogrammes croisés réalisés avec l'ensemble des données enregistrées par le SSERK'ŒIL, en considérant la pluie (bleu) ou le débit (rouge) comme signal d'entrée A) débits, B) turbidité, C) conductivité électrique, D) pH, E) température, F) oxygène dissous, G) carbone organique dissous, H) nitrates.

3.2 Traitement du signal à l'échelle de l'évènement de crue

Dans la même optique que la partie précédente, celle-ci s'attache à réaliser une analyse corrélatoire croisée sur deux crues présentées précédemment traduisant deux fonctionnements hydrogéologique différents : (i) une crue de printemps (avril 2016) ; (ii) une crue de faible intensité engendrée en période d'étiage (juillet 2017). Deux analyses corrélatoires sont réalisées en considérant tout d'abord la pluie comme signal d'entrée (en bleu), puis en considérant le débit comme signal d'entrée (en rouge).

3.2.1 Exemple d'une crue de printemps (avril 2016)

La crue d'avril 2016 est décrite dans la partie précédente (Figure 58). Les valeurs de corrélation pour les différents paramètres sont recensées dans le Tableau 22.

Le décalage des **débits** sur les précipitations caractérise l'arrivée de l'onde de crue (Figure 62A). Pour la crue d'avril 2016, il est beaucoup plus court que pour l'analyse moyenne sur plusieurs cycles hydrologiques. Le décalage calculé de 50 heures illustre la possibilité du système karstique à transférer rapidement un signal d'entrée. Cette valeur se rapproche plus des systèmes karstiques classiques rencontrés dans la littérature (Angelini, 1997 ; Padilla et Pulido-Bosch, 1995 ; Mayaud et *al.*, 2014).

Lorsque la pluie est considérée comme signal d'entrée, l'ensemble des paramètres réagissent de façon similaire que lors de l'analyse sur toute la chronique. Le principal changement par rapport à cette analyse précédente c'est que les valeurs des décalages temporelle sont relativement plus courts, avec des valeurs comprises entre 50 heures et 246 heures ; c'est-à-dire entre un peu plus de 2 jours et un peu plus de 10 jours.

Les corrélogrammes croisés pluie-conductivité électrique (Figure 62C), **pluie-pH** (Figure 62D), **pluie-température** (Figure 62E), et **pluie-oxygène dissous** (Figure 62F), possèdent des allures similaires, avec des valeurs de corrélations quasiment égales, respectivement de -0.17, -0.15, 0.17, et -0.17. Les décalages sont également dans le même ordre de grandeur, avec des valeurs comprises entre 221 et 246 heures.

Le même constat est à réaliser pour les **corrélogrammes croisés pluie-carbone organique dissous** (Figure 62F) et **pluie nitrates** (Figure 62H), avec des décalages temporels similaires plus rapide que précédemment mais compris entre 175 et 188 heures.

Ces résultats confirment l'analyse réalisée dans la partie précédente qui proposait une arrivée synchrone des éléments dissous. Seul le **corrélogramme croisé pluie-turbidité** (Figure 62B) semble différents des autres, avec une allure moins étalée et un décalage plus faible (131 heures). Ce dernier posséde une allure similaire au **corrélogramme croisé pluie-débit** (Figure 62A), mais avec un décalage temporel plus important.

Concernant les corrélogrammes qui considèrent le débit comme signal d'entrée, les corrélations sont plus importantes, avec des valeurs comprises entre -0.52 et 0.89. L'ensemble des corrélogrammes croisés réalisés sur cette crue sont en concordance avec ceux réalisés sur l'ensemble de la chronique avec des décalages temporels compris entre 36 et 136 heures ; c'est-à-dire entre 2.5 jours et 5.5 jours.

La forte corrélation calculée pour le **corrélogramme croisé débit-turbidité** (Figure 62B) confirme la forte dépendance du signal de turbidité pour les débits pendant la crue d'avril 2016, avec une corrélation de 0.89 pour un décalage de 36 h.

Le corrélogramme croisé débit-nitrates (Figure 62H) semble cette fois plus interprétable que sur l'ensemble de la chronique. La simple diminution de la concentration en nitrate pendant cette crue provoque une simplification du signal traité par le corrélogramme. Il en ressort une anti-corrélation de -0.52, pour un décalage de 110 heures, ce qui est en accord avec les autres corrélogrammes croisés des éléments dissous.

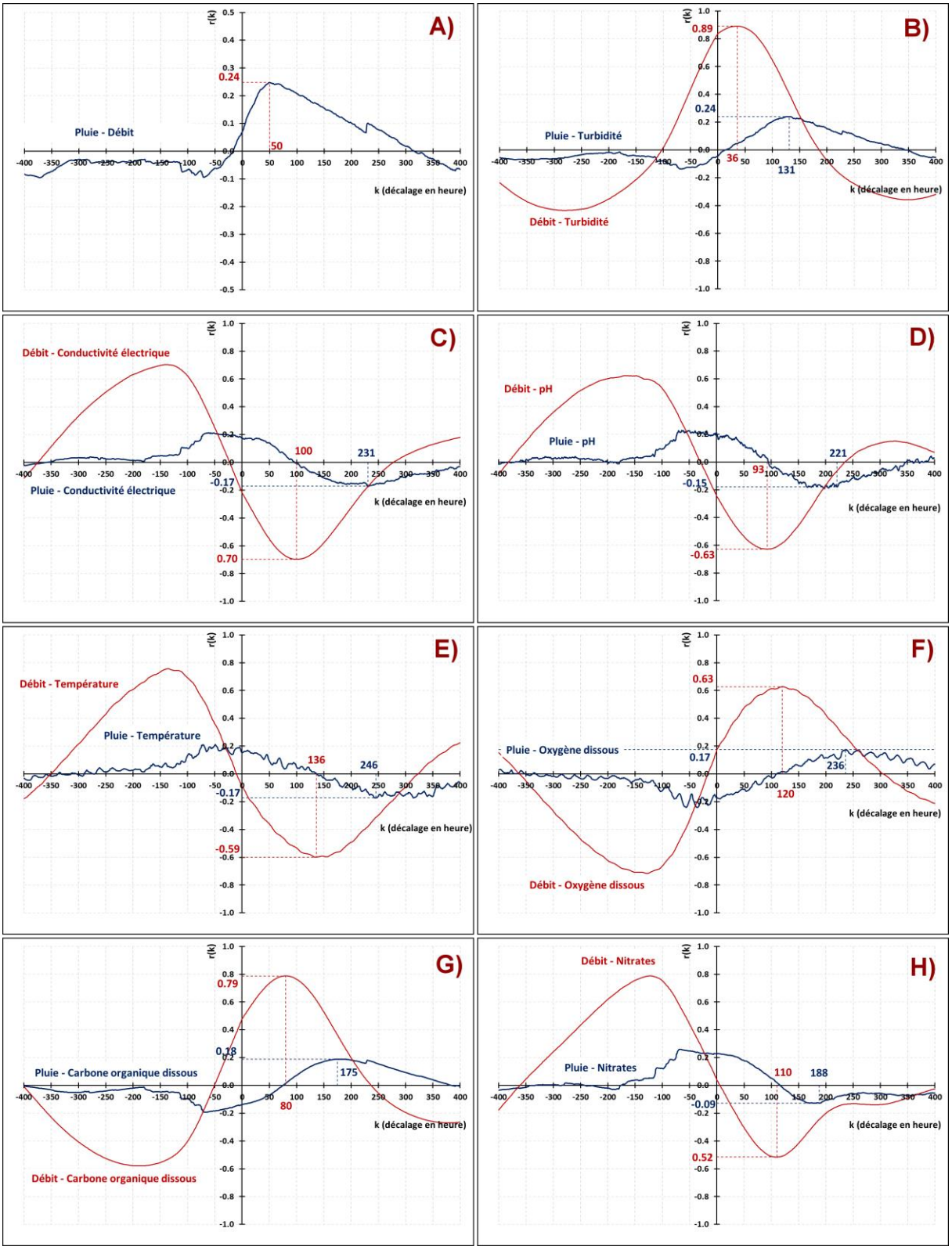


Figure 62 : Corrélogrammes croisés réalisés pendant la crue d'avril 2016, en considérant la pluie (bleu) ou le débit (rouge) comme signal d'entrée A) débits, B) turbidité, C) conductivité électrique, D) pH, E) température, F) oxygène dissous, G) carbone organique dissous, H) nitrates.

Tableau 22 : Synthèse des résultats des analyses corrélatoires croisées réalisées pendant la crue d'avril 2016.

A)

	P-Q	P-T	P-pH	P-EC	P-O_2	P-Turbi	P-NO_3^-	P-COD
k (h)	50	246	221	231	236	131	188	175
r(k)	0.24	-0.17	-0.15	-0.17	0.17	0.24	-0.09	0.18

B)

	Q-T	Q-pH	Q-EC	Q-O_2	Q-Turbi	Q-NO_3^-	Q-COD
k (h)	136	93	100	120	36	110	80
r(k)	-0.59	-0.63	0.70	0.63	0.89	0.52	0.79

3.2.2 Exemple d'une crue de faible intensité engendrée en période d'étiage (juillet 2017)

La crue de juillet 2017 est causée par un fort évènement pluvieux de 30 mm en une journée, impliquant à l'exutoire du système une faible augmentation des débits. Associée à cette augmentation, certains paramètres mesurés par le SSERK'ŒIL évoluent. L'évolution temporelle des paramètres est présentée précédemment en Figure 59. L'intérêt de telles crues se justifie par une dynamique particulière des éléments dissous et particulaires.

Des analyses corrélatoires croisées sont réalisées pendant cet épisode de crue. Seuls les paramètres débit, turbidité, carbone organique dissous, et nitrates subissent ces analyses ; les autres paramètres n'ayant pas montré d'évolution significative.

Le corrélogramme croisé pluie-débit s'illustre par un décalage de 12h, montrant la forte réactivité du système en cas d'événement pluvieux de forte intensité, et cela même en période de basses eaux. Cette valeur traduit un transfert de pression très rapide pour le système karstique du Toulon.

Le corrélogramme croisé pluie-turbidité montre deux pics : un premier à un décalage temporel de 12h, et un deuxième à un décalage temporel de 580 heures (environ 24 jours). Le premier pic, synchrone, est possiblement la conséquence du transfert de pression qui créé un « pulse » de particules à l'exutoire.

Le corrélogramme croisé pluie-carbone organique dissous présente un seul pic à un décalage temporel de 581 heures. Il est en concordance avec le pic de turbidité montré précédemment.

Le corrélogramme croisé pluie-nitrates s'illustre par deux pics disctincts : le premier à un décalage temporel de 150 heures, et le deuxième à 581 heures.

Ces constats confortent les interprétations fournies dans la partie précédente, avec un premier pic de nitrates isolé des autres paramètres physico-chimiques, traduisant une arrivée d'eau plus importante en provenance de la zone saturée du Crétacé supérieur. Le deuxième pic de nitrates, synchrone au signal de turbidité et au carbone organique dissous, est la conséquence d'un deuxième transfert de masse, en provenance d'une origine plus superficielle.

Les corrélogrammes croisés considérant le débit comme signal d'entrée n'apportent pas d'information complémentaire à l'interprétation des corrélogrammes précédents. Il est cependant intéressant de constater que les valeurs de corrélations sont plus faibles que pour la crue de printemps. La valeur de corrélation du premier pic de nitrates est d'ailleurs très proche de celle du corrélogramme pluie-nitrates.

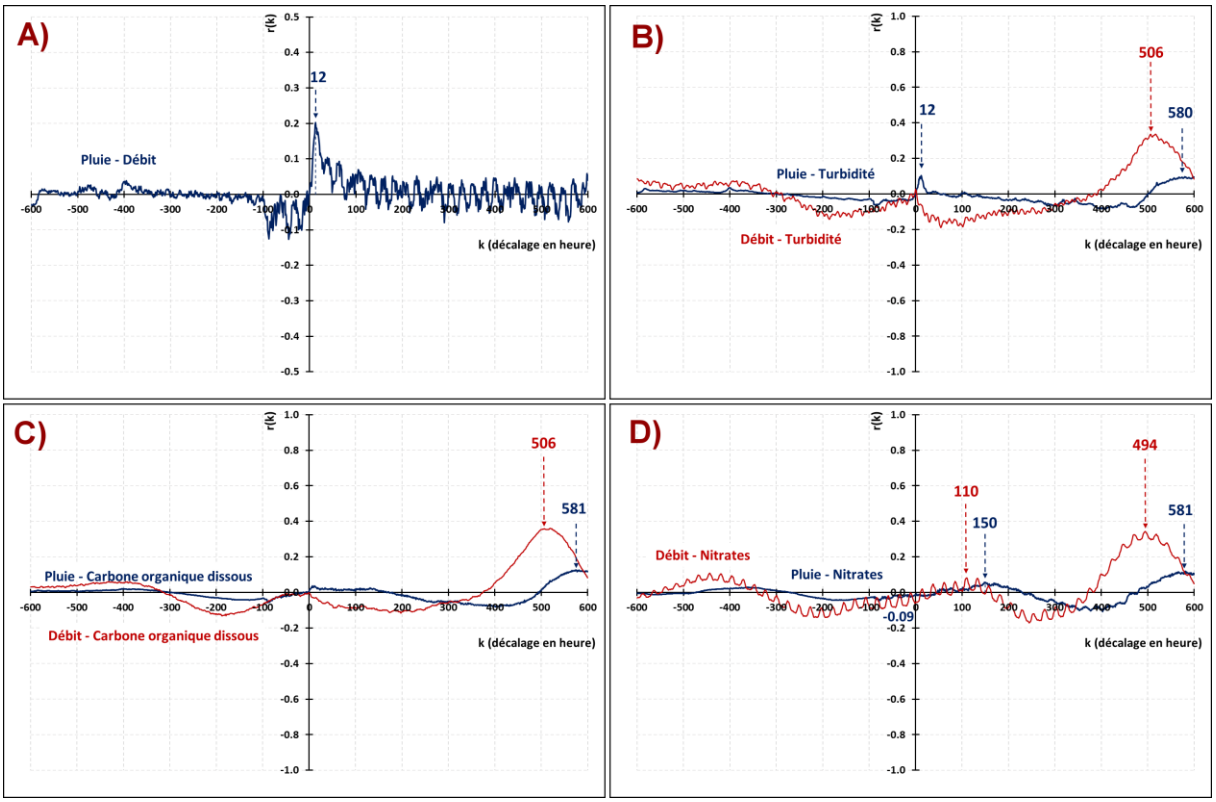


Figure 63 : Corrélogrammes croisés réalisés pendant la crue de juillet 2017, en considérant la pluie (bleu) ou le débit (rouge) comme signal d'entrée A) débits, B) turbidité, C) carbone organique dissous, D) nitrates.

3.2.3 Discussion sur l'apport des analyses corrélatoires

L'apport des analyses corrélatoires simples et croisées sur une chronique de plusieurs années ou à l'échelle d'une crue fournit des éléments pertinents pour l'évaluation de la dynamique des éléments dissous et particulaires dans l'aquifère karstique. Les valeurs de corrélation et de décalage temporels sont une première quantification du fonctionnement complexe des sources karstiques.

Ces valeurs ont permis d'approcher le transfert de masse du système karstique du Toulon, et une comparaison avec les données des traçages artificiels peut être faite. Différentes injections ont été réalisées en hautes eaux, mais aussi en basses eaux (Tableau 3 et Tableau 15). En période de basses eaux, les injections ont montré des temps d'arrivées aux Sources du Toulon compris entre 9 jours et 14 jours, alors qu'en hautes eaux, ces temps sont plus courts, et sont compris entre 3 et 10 jours. Pour la crue d'avril 2016 présentée plus haut, le transfert de masse est approché par les décalages temporels des nitrates et du carbone organique dissous. Leurs valeurs sont comprises entre 3 et 4 jours, ce qui concorde avec les données de traçages. Pour la crue de juillet 2017, considérée comme représentative des transferts pouvant s'opérer pendant les basses eaux, le transfert de masse est approché par le décalage temporel du deuxième pic de NO_3^-, associé à un pic de COD et de turbidité. Sa valeur est d'environ 21 jours. Sa différence avec celles provenant des traçages de basses eaux est peut être liée à une zone d'infiltration plus éloignée lors de la crue de juillet 2017. Ces traçages ont toujours été réalisés à des faibles distances des Sources du Toulon (2.5 km pour le plus éloigné). En considérant des vitesses de transfert comprises entre 5.5 $m.h^{-1}$ et 7.5 $m.h^{-1}$ d'après les données des traçages, la zone d'infiltration théorique lors la crue de juillet 2017

serait comprise entre 3.2 km et 4.4 km. Ces distances sont cohérentes avec la majorité des zones de pertes karstiques temporaires observées en amont du vallon de Foncroze (dans la même zone que la perte temporaire de Michoux colorée en février 2018).

Malgré des réponses hydrodynamiques très inertielles pour un aquifère karstique, les Sources du Toulon peuvent présenter des réponses plus brutales pendant certains épisodes de crue, notamment si l'intensité pluvieuse est forte. Ces réponses peuvent être reliées à du ruissellement qui s'active sur le bassin d'alimentation et qui s'infiltre de manière concentrée dans des pertes temporaires, comme nous avons pu l'observer lors de certains épisodes pluvieux.

Les réponses hydrochimiques des paramètres mesurés par le SSERK'ŒIL sont également complexes et peuvent présenter des disparités d'une crue à une autre. Les analyses corrélatoires croisées mettent en évidence une dépendance plus ou moins importante des paramètres mesurés aux pluies ou aux débits. La température et l'oxygène dissous semblent présenter un comportement relativement simple, dépendant de l'intensité de la crue. Au contraire, certains paramètres comme les nitrates ou la turbidité, qui peuvent posséder plusieurs origines en fonction des mécanismes de transfert, semblent avoir des variations plus difficiles à interpréter, et semblent dépendre d'une part de l'intensité des crues, d'autre part des événements pluvieux, et de l'origine de la masse d'eau déplacée.

Les éléments fournis dans cette partie pourraient permettre d'alimenter des réflexions plus générales sur la mise en place d'une modélisation de transfert de masse, qui reste un verrou dans les modèles hydrogéologiques.

4.Conclusion du Chapitre 4 et perspectives

Le premier objectif du Chapitre 4 de ce manuscrit était de proposer un outil innovant pour la mesure en continu des paramètres hydrodynamiques et hydrochimiques de la ressource en eau souterraine. Le deuxième objectif était d'illustrer l'apport d'un tel suivi haute résolution à l'échelle de plusieurs crues pour la précision du fonctionnement des aquifères karstiques. Enfin le troisième objectif était de réaliser des analyses par traitement du signal à l'échelle du cycle ou de la crue pour évaluer la dynamique des éléments dissous dans l'aquifère karstique du Toulon.

Le SSERK'ŒIL développé pendant ces travaux a permis de faire une avancée significative dans le domaine de la métrologie et de la surveillance de la ressource en eau karstique. Il offre un système de mesure précise, stable, et durable dans le temps. Il est facilement utilisable et réduit considérablement les travaux de maintenance et d'entretien. Sa disposition actuellement offre un potentiel d'évolution important pour être utilisé dans d'autres milieux plus hostiles à la mesure en continu.

L'apport du suivi haute résolution est un vrai atout pour améliorer les connaissances sur le fonctionnement hydrogéologique des Sources du Toulon. L'analyse des signaux acquis pendant les crues entre octobre 2015 et septembre 2018, a permis de préciser les modalités de transfert des éléments dissous et particulaires dans un fonctionnement hydrogéologique global par alimentation multiréservoirs à contribution variable et complexe.

Les crues peuvent être classées en trois grandes catégories : (i) les crues de reprise hydrologique ; (ii) les crues hivernales et printanières ; (iii) les crues de faible intensité engendrées pendant les étiages. Chaque grande catégorie de crues présente des fonctionnements particuliers, justifiant l'intérêt d'un tel suivi haute-résolution, et alimentant la réflexion sur les modalités de transfert dans les aquifères karstiques.

Les crues de reprise hydrologique se caractérisent par des arrivées d'eaux plus minéralisées pendant la montée de crue, puis par des arrivées de plusieurs masses d'eau en provenance des horizons plus superficiels pendant la décrue. L'analyse des signaux est complexe, et les réponses des paramètres physico-chimiques ne sont pas synchrones entre eux. Pendant ces crues, les nitrates stockés dans le sol et la zone non saturée de l'aquifère pendant l'étiage sont mobilisés, entraînant une augmentation de la concentration en nitrate à l'exutoire du système. Les réponses différentes entre les nitrates et le carbone organique dissous montrent différentes modalités d'infiltration en surface. Ces modalités seront précisées dans le Chapitre 6 de ce manuscrit. Les crues de reprise hydrologique permettent de rétablir les connexions hydrauliques dans le continuum sol – zone non saturée – zone noyée – exutoire.

Les crues printanières présentent des modalités de transfert plus simple à interpréter. Ces crues sont engendrées dans des conditions de bonne connexion hydraulique dans le système karstique, favorisant ainsi le transfert des eaux infiltrées en surface. La montée de crue ne présente pas d'augmentation de minéralisation ; cette masse d'eau ayant déjà été mobilisée, et donc remplacé pendant la première crue du cycle. La décrue présente des évolutions synchrones pour la majorité des paramètres témoignant de la facilité du transfert de masse pouvant opérer dans le système. Les concentrations en nitrates diminuent pendant ces crues, illustrant un phénomène de dilution par une eau récente, moins concentrée en nitrates.

Les crues de faible intensité engendrées en étiage présentent un intérêt particulier pour préciser la dynamique de transfert des éléments dissous et particulaires dans le système

karstique du Toulon. La principale caractéristique est la mesure d'une double augmentation en nitrate à l'exutoire du système : (i) une augmentation singulière en nitrates, causée par une mobilisation plus importante des eaux en provenance de l'aquifère karstique libre du Crétacé supérieur ; (ii) une augmentation en nitrates associée à un accroissement en carbone organique dissous et turbidité, expliqué par une eau en provenance des horizons plus superficiels.Celle ci a pu mobiliser et faire transiter des particules d'origine allochtone au système. Le temps transfert de masse causé par ces crues peut être de plusieurs semaines, témoignant de la faible capacité du système à faire transiter les eaux d'infiltration.

Le traitement du signal appliqué aux données mesurées par le SSERK'ŒIL a apporté des informations pertinentes grâce aux analyses corrélatoires simples et croisées réalisées sur l'ensemble de la chronique ou à l'échelle de certaines crues. Les différents paramètres mesurés semblent présenter des dynamiques différentes et complexes d'une crue à une autre. Des premières valeurs de temps de transfert ont pu être proposées mais devront être consolidées par d'autres données.

La poursuite des enregistrements par le SSERK'ŒIL semble être une bonne perspective pour surveiller l'évolution des paramètres dans le futur et ainsi confirmer ou réfuter les hypothèses proposées par ces travaux de thèse.

Malgré de nombreuses interrogations à lever, les éléments fournis par ces travaux sont des préalables intéressants pour alimenter les réflexions vers une modélisation du transfert de masse dans l'aquifère karstique.

CHAPITRE 5
DEVELOPPEMENT METHODOLOGIQUE POUR LA CARACTERISATION DE LA VULNERABILITE VIS-A-VIS DES CONTAMINATIONS PAR LES NITRATES EN UTILISANT LES ISOTOPES DES NITRATES

L'ion nitrate (NO_3^-) est la forme la plus persistante et mobile de l'azote dans les compartiments de surface et souterrains. Depuis plusieurs décennies, l'augmentation des concentrations en nitrates dans les eaux souterraines est responsable de la dégradation de la qualité de l'eau dans de nombreux environnements karstiques à travers le globe (Nolan et Stone, 2000 ; Siliang et *al.*, 2010 ; El Gaouzi et *al.*, 2013 ; Schwientek et *al.*, 2013 ; Alexia et *al.*, 2015 ; Bu et *al.*, 2017 ; Briand et *al.*, 2017). Les quantités de nitrates exportées à l'exutoire des systèmes karstiques peuvent être de plusieurs dizaines de tonnes par an (Eller et *al.*, 2017) et peuvent impliquer une dégradation du milieu récepteur en aval. L'équilibre écologique peut alors être rompu et des développements importants d'algues et de plantes invasives peuvent apparaitre (Stefanowicz et *al.*, 2017 ; Chu et *al.*, 2018 ; Gufu et *al.*, 2018). Chez l'être humain, une exposition continue aux nitrates peut provoquer certains types de cancer (Ward et *al.*, 2005, De Roos et *al.*, 2003), et une augmentation de méthémoglobine dans le sang (Johnson et *al.*, 1987).

Sur les bassins d'alimentation des systèmes karstiques, les apports en nitrates en surface peuvent être de différentes origines. Hormis d'une origine naturelle en provenance de l'azote organique du sol, les nitrates peuvent provenir : (i) des fertilisants synthétiques minéralisés dans les sols agricoles (Panno et *al.*, 2001 ; Liu et *al.*, 2006 ; Siliang et *al.*, 2010 ; El Gaouzi et *al.*, 2013) ; (ii) des nitrates atmosphériques (Panno et *al.*, 2001) ; (iii) des épandages de lisier ou fumier (Siliang et *al.*, 2010 ; Heaton et *al.*, 2012) ; (iv) des rejets des eaux usées (Liu et *al.*, 2006 ; El Gaouzi et *al.*, 2013 ; Briand et *al.*, 2017).

L'identification des sources de nitrates dans les eaux souterraines est un préalable fondamental pour la mise en œuvre de mesure de protection de la ressource en eau et pour éviter la détérioration de sa qualité. Intégrer les outils isotopiques dans un cadre d'étude hydrogéologique peut être une approche complémentaire pour obtenir une meilleure connaissance de la vulnérabilité des aquifères karstiques, et du devenir des nitrates dans le compartiment souterrain.

Le système karstique multicouche du Toulon est un bon exemple de ressource affectée par les nitrates. Le contexte agricole du bassin versant hydrogéologique favorise une contamination azotée récurrente depuis plus de 50 ans. Depuis 1960 les concentrations en nitrates augmentent aux Sources du Toulon. Annuellement c'est en moyenne 40 tonnes d'azote par an qui sont exportées du système karstique du Toulon (calculé depuis 2014). C'est autant d'azote qui est apporté au milieu récepteur. En milieu karstique, le transfert d'azote de l'infiltration en surface jusqu'à son transport à l'exutoire reste encore peu connu. Le questionnement sur le devenir des nitrates dans l'aquifère karstique reste un des questionnements majeurs pour la gestion de la ressource en eau potable. Nos travaux proposent une nouvelle approche pour améliorer ces connaissances.

Ce chapitre est dédié au test de la faisabilité d'une approche pour la caractérisation de la vulnérabilité des hydrosystèmes karstiques vis-à-vis des contaminations par les nitrates. Pour ce faire, les isotopes des nitrates ($\delta^{15}N_{-NO3}^-$ et $\delta^{18}O_{-NO3}^-$) sont utilisés en complément des outils hydrogéologiques classiques.

Ce Chapitre se décline en plusieurs partie, avec tout d'abord une présentation du cycle de l'azote, des isotopes des nitrates, et de la stratégie mise en place pour caractériser leurs origines. Ensuite, les résultats seront décrits pour permettre leur interprétation. S'en suivra une discussion sur : (i) la caractérisation des sources potentielles de nitrates sur la zone d'étude ; (ii) l'identification des sources de nitrates dans les compartiments de surface et souterrains ; (iii) la caractérisation du devenir des nitrates dans l'hydrosystème multicouche des Sources du Toulon. Une ouverture est finalement proposée sur les implications que peut apporter l'approche développée sur la gestion des eaux souterraines en milieu karstique.

1.Les traceurs des origines des nitrates : les isotopes des nitrates

1.1 Le cycle de l'azote et les isotopes de l'azote

L'azote est un élément chimique de la famille des pnictogènes et est symbolisé par la lettre N.

Le cycle de l'azote est un cycle biogéochimique qui décrit les modifications subies par les différentes formes de l'azote neutre en formes réactives, et inversement. C'est l'un des cycles les plus importants pour l'entretien de l'équilibre des milieux terrestres ou des milieux aquatiques. Le cycle de l'azote est dominé par les transformations microbiennes car l'azote est assimilé par la biomasse sous forme minérale (NH_4^+, NO_3^-).

La Figure 64 représente les principaux processus du cycle de l'azote.

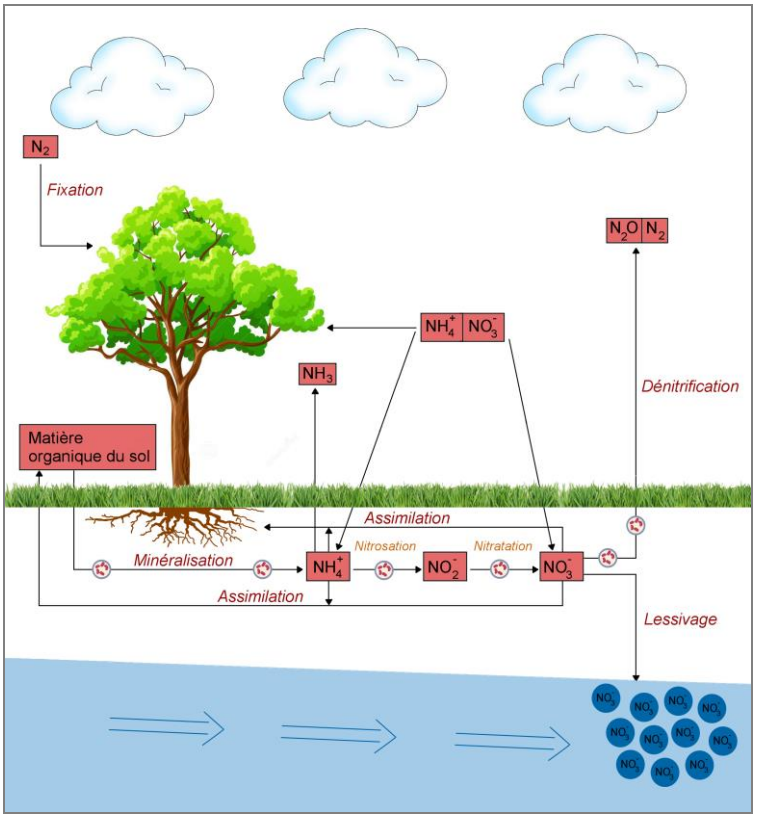


Figure 64 : Principales transformations de l'azote dans les écosystèmes (adapté d'après Kendall, 1998).

Les isotopes d'un élément sont caractérisés par un même numéro atomique (nombre de protons) mais des nombres de masse (nombre de nucléons) différents. Beaucoup d'éléments sont présents dans la nature sous différents isotopes, chimiquement indiscernables. C'est le cas de l'azote ou l'oxygène. L'azote possède 16 isotopes connus, mais seulement deux sont stables et présents dans la nature (^{14}N et ^{15}N). L'azote 14 représente la quasi-totalité de l'azote présent (99.64 %).

Par spectrométrie de masse on peut mesurer un rapport isotopique R qui exprime dans un composé donné, la proportion de l'isotope lourd par rapport à l'isotope léger. On définit la composition isotopique δ comme la différence relative exprimée en ‰ du rapport isotopique d'un échantillon par rapport à celui d'un standard. Pour l'azote, cette composition isotopique est définie par l'équation 9:

$$\delta_{échantillon}(‰) = \left(\frac{R_{échantillon}}{R_{standard}} - 1\right) x\ 1000 \qquad \text{Equation 9}$$

Avec :

$R_{échantillon} = (^{15}N/^{14}N)_{échantillon}$

$R_{standard} = (^{15}N/^{14}N)_{standard}$

Les standards de référence sont propres à chaque élément. Pour l'azote, il s'agit de l'azote atmosphérique N_2 pour lequel $^{15}N/^{14}N = 3.613.10^{-3}$ (Mariotti, 1982).

1.2 Processus entraînant le fractionnement isotopique

1.2.1 La fixation du diazote par les végétaux

La fixation d'azote caractérise le processus qui convertit le diazote atmosphérique neutre en une forme réactive (Kendall, 1998). Bien que ce terme soit couramment utilisé pour traduire la fixation par les bactéries, il inclut aussi la fixation par certains végétaux comme ceux de la famille des légumineuses.

Les travaux de Fogel et Cifuentes (1993) donnent un fractionnement isotopique de l'ordre de -3 ‰ à +1 ‰.

1.2.2 L'ammonification (minéralisation)

L'ammonification est définie comme la production d'ammonium (NH_4^+) à partir de la matière organique du sol (sous forme d'azote à l'état réduit). C'est la première étape de la minéralisation de la matière organique.

$$Azote\ organique \rightarrow NH_4^+$$

Le fractionnement isotopique accompagnant la production d'ammonium à partir d'un pool de matière organique est généralement limité et voisin de -1‰ (Mariotti, 1982 ; Kendall, 1998).

1.2.3 La volatilisation de l'azote ammoniacal

La volatilisation est le processus géochimique qui entraine la transformation de l'ammonium ($NH_4^+{}_{aq}$) en ammoniac gazeux (NH_{3g}). Ce processus s'accompagne d'un important enrichissement isotopique de l'ammonium résiduel. Les travaux de Mariotti (1982) et Cravotta (1997) évaluent le fractionnement isotopique de la volatilisation à -20 ‰.

1.2.4 La nitrification

La nitrification est un processus d'oxydation de l'ammonium qui est régie par des bactéries nitrifiantes. Elle se déroule en plusieurs étapes.

Oxydation par les bactéries nitrosantes (Nitrosation)

$$NH_4^+ + H_2O \rightarrow NH_2OH + 2e^- + H^+$$
$$NH_2OH + O_2 \rightarrow NO_2^- + e^- + H^+$$

Oxydation par des bactéries nitratantes (Nitratation)

$$NO_2^- + H_2O \rightarrow NO_3^- + 2e^-$$

La majorité des études sur le processus de nitrification s'est intéressée à l'étape de nitrosation qui apparaît généralement comme l'étape limitante dans le processus de nitrification, et qui favorise toujours l'apparition de NO_2^- appauvris en ^{15}N. Mariotti (1983) estime l'enrichissement isotopique entre -28 ‰ et -12 ‰.

De nombreuses études se sont intéressées à la source de l'oxygène dans la réaction de nitrification (Andersson et Hooper, 1983 ; Kumar et *al.*, 1983 ; Hollocher, 1984 ; Anderson et Levine, 1986). Le résultat est qu'au cours de la nitrification deux atomes d'oxygène proviennent de l'eau du milieu tandis que le troisième provient de l'O_2 atmosphérique. En négligeant le fractionnement isotopique durant l'incorporation de l'oxygène de l'eau et de l'atmosphère, la composition isotopique de l'oxygène des nitrates, issus strictement du processus de nitrification, se calcule de la façon suivante (Equation 10) :

$$\delta^{18}O_{-NO3^-} = 2/3.\ \delta^{18}O_{-H2O} + 1/3.\ \delta^{18}O_{-O2} \qquad \text{Equation 10}$$

Par conséquent, le $\delta^{18}O\text{-}NO_3^-$ dérivant de la nitrification est compris entre -2 ‰ et +6 ‰ étant donné que le $\delta^{18}O\text{-}H_2O$ est généralement compris entre -15 ‰ et +5 ‰ et que le $\delta^{18}O\text{-}O_2$ est égale à +23.5 ‰ (Kroopnick et Craig, 1972 ; Horibe et *al.*, 1973 ; Mayer et *al.*, 2001).

1.2.5 La dénitrification

La dénitrification correspond au processus de conversion des nitrates en N_2O puis N_2. En fonction des conditions d'oxydoréduction, les microorganismes vont utiliser différentes formes oxydées comme accepteur d'électron. L'ordre général est O_2, NO_3^-, SO_4^{2-}. La dénitrification microbienne apparait dans des conditions anaérobiques où les nitrates servent d'accepteur final d'électrons lors de la dégradation de la matière organique.

Les étapes limitantes de la dénitrification sont les deux premières étapes (NO_3^- → NO_2^- → NO), qui impliquent la rupture de liaisons N-O. Comme les liaisons établies avec l'isotope léger sont plus aisément et plus rapidement brisées que celles faisant intervenir l'isotope lourd, la dénitrification sera le siège d'un enrichissement isotopique en élément lourd. Diverses études (Mariotti, 1982, 1983, 1994 ; Böttcher et *al.*, 1990) ont montré que le fractionnement isotopique total engendré par la dénitrification dans les aquifères peut être caractérisé par un fractionnement de -33 ‰ à -11 ‰.

1.3 Les compositions isotopiques attendues pour les différents pôles potentiels de nitrate

Dans les environnements naturels, et en particulier dans les écosystèmes forestiers, la source dominante d'azote est l'atmosphère ($\delta^{15}N$ = 0 ‰). Dans les environnements anthropisés influencés par les activités agricoles, il est possible d'identifier plusieurs sources d'azote. Deux facteurs contrôlent la valeur du $\delta^{15}N_{-NO3^-}$ dans les environnements de subsurface :

- La source d'azote,
- Les transformations biogéochimiques des composés azotés dans le sol.

Récemment, des techniques d'analyses de la composition isotopique de l'oxygène des nitrates ont été mises au point. Leur utilisation conjointe avec la mesure plus classique de la composition isotopique de l'azote des nitrates permet de bien différencier diverses sources de nitrates. Les différentes sources d'azote sont souvent caractérisées par des compositions isotopiques différentes (Figure 65).

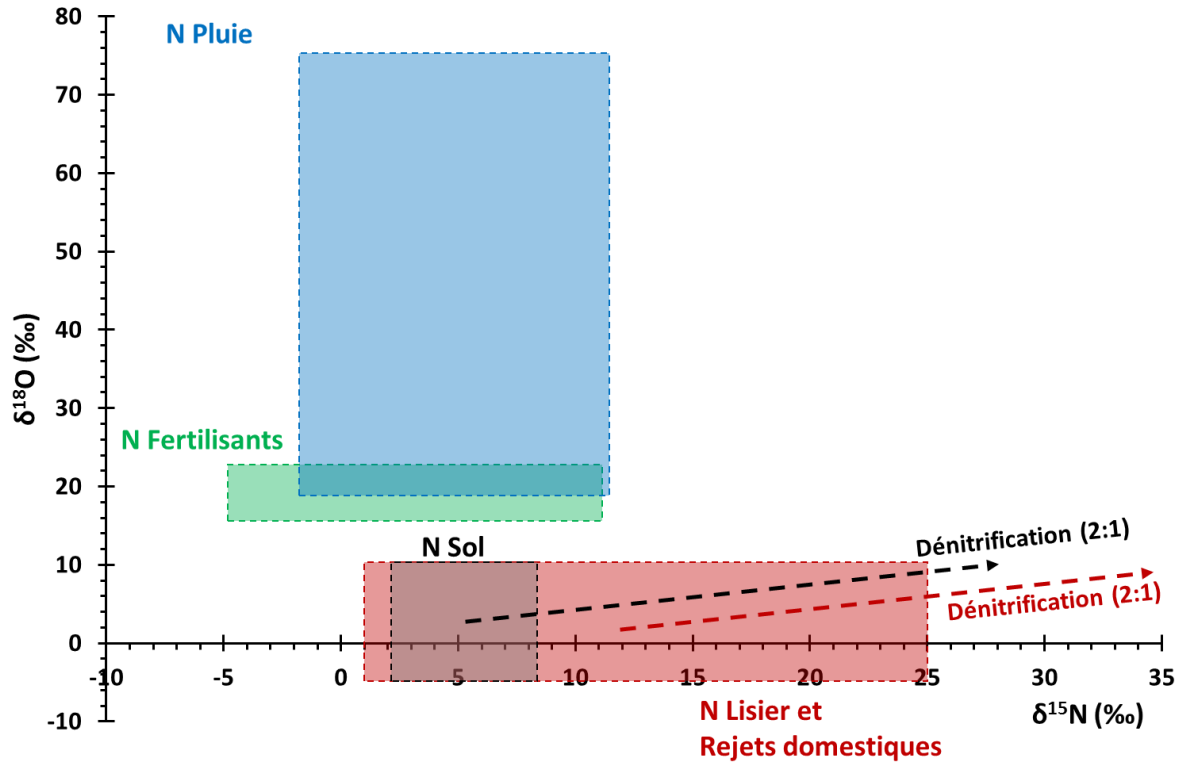


Figure 65 : Compositions isotopiques attendues des $\delta^{15}N$ et $\delta^{18}O$ issus des différents pôles potentiels (modifié d'après Kendall, 1998).

1.3.1 Les sources atmosphériques

Sans influence anthropique (agriculte, industrie, automobiles), les nitrates des pluies sont produits à partir de l'azote de l'air. Par conséquent, le $\delta^{15}N_{-NO3^-}$ est généralment proche de 0 ‰. Cependant, localement, ces nitrates peuvent provenir en proportion parfois importante des fertilisants, des rejets industriels ou des rejets automobiles, élargissant ainsi les compositions isotopiques en $\delta^{15}N_{-NO3^-}$ et $\delta^{18}O_{-NO3^-}$ (Figure 65).

Les premières données publiées sur la composition isotopique de l'oxygène des nitrates venaient des forêts de Bavière en Allemagne (Durka et *al.*, 1994). Ces travaux ont montré un groupe assez restreint de valeur de $\delta^{18}O_{-NO3^-}$ (+55 ‰ à +75 ‰). Plus tard, une plus grande gamme de valeur a été mise en évidence lors d'une étude sur 3 forêts américaines (+18 ‰ à +70 ‰). Les nitrates issus du dépôt atmosphérique ont une large gamme de valeurs de $\delta^{18}O_{-NO3^-}$, résultant des réactions dans la haute atmosphère et des fractionnements isotopiques accompagnant ces réactions.

1.3.2 Les fertilisants

Les analyses effectuées sur un grand nombre de fertilisants ont démontré que les nitrates synthétiques sont créés avec l'oxygène et l'azote de l'atmosphère. Les 3 oxygènes des nitrates sont ainsi issus de l'O_2 atmosphérique et l'azote est issu du N_2. Ceci confère aux fertilisants synthétiques une signature similaire à celle l'atmosphère ($\delta^{18}O_{-NO3^-}$ proche de + 23.5 ‰ ; $\delta^{15}N_{-NO3^-}$ compris entre -5 ‰ et +10 ‰) (Mariotti, 1982).

1.3.3 Le lisier et les rejets domestiques

Les nitrates des lisiers et des rejets domestiques sont caractérisés par un $\delta^{15}N_{-NO3^-}$ élevé (entre 0 ‰ et +25 ‰) en raison de la volatilisation de l'ammoniac qui se produit lors de la minéralisation de ces effluents. Ces effluents présentent un $\delta^{18}O_{-NO3^-}$ pouvant être compris entre -5 ‰ et +10 ‰ (Aravena et *al.*, 1993).

1.4 Les limites de l'utilisation des isotopes des nitrates

Dans la majorité des cas, plusieurs facteurs rendent difficile la détermination précise de l'origine des nitrates dans les eaux superficielles et souterraines :

- l'existence de sources multiples dont les gammes de compositions isotopiques se recouvrent (Figure 65) ;
- les variations spatiales et temporelles des compositions isotopiques de ces sources ;
- l'existence de processus biogéochimiques qui modifient le signal isotopique initial,

Dans les environnements karstiques, la combinaison de pollutions diffuses et ponctuelles augmente la complexité de la détermination de l'origine des nitrates. Ces difficultés peuvent être levées par une bonne connaissance des sources potentielles (Heaton et *al.*, 2012), ou une approche multi-isotopes et multi-traceurs (Briand et *al.*, 2017).

1.5 Stratégie d'échantillonnage pour l'identification des sources d'azote sur le bassin versant karstique des Sources du Toulon

La stratégie mise en œuvre dans ce travail vise à caractériser la vulnérabilité de la ressource en eau en milieu karstique vis-à-vis des contaminations par les nitrates. Des analyses géochimiques et isotopiques sont réalisées dans le but de caractériser l'origine et le devenir des nitrates dans l'aquifère multicouche du système karstique du Toulon. Des prélèvements sont réalisés dans : (i) les eaux de surface ; (ii) les eaux souterraines ; (ii) les sources potentielles de nitrates. La Figure 66 positionne l'ensemble des points échantillonnés. L'ensemble des sources, forages, et rivières échantillonnés dans ce travail sont appelés et par leur nom d'échantillon (Tableau 23) et non pas par leur dénomination usuelle.

4 campagnes de prélèvements sont réalisées dans différentes conditions hydrologiques (Tableau 23) : (i) novembre 2015, représentatif des conditions de basses eaux ; (ii) janvier 2016, représentatif de la première crue du cycle hydrologique ; (iii) mai 2016, représentatif d'une crue de printemps ; (iv) septembre 2017, pour prélever 4 forages suplémentaires et certaines sources potentielles de nitrates complémentaires. Toutes les campagnes de prélèvements ont été réalisées dans des conditions climatiques calmes, au minimum quelques jours après des précipitations, pour éviter toute contamination des eaux de surface par une signature géochimique atmosphérique. La synthèse des points échantillonnés lors de chaque campagne est fournie dans le Tableau 23.

Les protocoles d'échantillonnage, de conditionnement et d'analyse sont donnés dans le Chapitre 2.

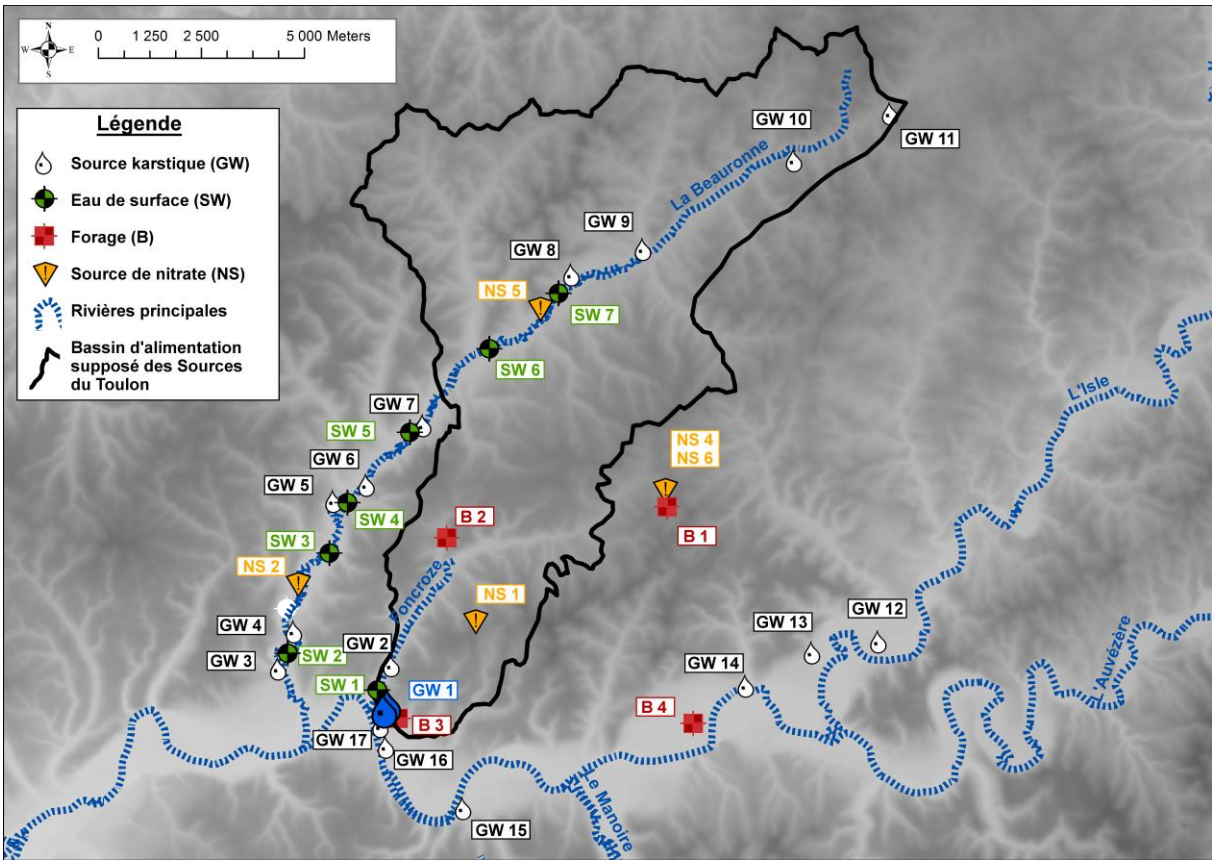


Figure 66 : Localisation des sources karstiques (GW), eaux de surface (SW), forages (B) et sources potentielles de nitrates (NS) échantilonnés.

Tableau 23 : Synthèse des sources karstiques, forages et rivières prélevés dans ce travail.

Nom du point de mesure	Nom de l'échantillon	Type de ressource	Novembre 2015	Janvier 2016	Mai 2016	Septembre 2017
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	Source karstique	x	x	x	
Source de Monzie	GW 2	Source karstique	x	x	x	
Fontaine de l'Abbaye de Chancelade	GW 3	Source karstique		x	x	
Source de Lavaure	GW 4	Source karstique	x	x	x	
Source de Rouchou	GW 5	Source karstique	x	x	x	
Fontaine du Godet	GW 6	Source karstique	x	x	x	
Source de la Bayolle	GW 7	Source karstique	x	x	x	
Source de Bezan	GW 8	Source karstique	x	x	x	
Source de la Roche Pontissac	GW 9	Source karstique		x	x	
Source de Fontamiel	GW 10	Source karstique	x	x	x	
Source de Fongou	GW 11	Source karstique		x	x	
Source des Bories	GW 12	Source karstique	x	x	x	
Source du bourg d'Antonne	GW 13	Source karstique	x	x	x	
Source de la Clavelie	GW 14	Source karstique	x	x	x	
Fontaine des Malades	GW 15	Source karstique	x	x	x	
Source du stade CAP	GW 16	Source karstique	x	x	x	
Source du stade COPO	GW 17	Source karstique	x	x	x	
Beauronne - Reymondens	SW 1	Rivière	x			
Beauronne - le Cros	SW 2	Rivière	x			
Beauronne - Château l'Evêque	SW 3	Rivière		x	x	
Beauronne - Preyssac	SW 4	Rivière		x	x	
Beauronne - Borie des Cailloux	SW 5	Rivière		x	x	
Beauronne - Agonac	SW 6	Rivière		x	x	
Foncroze - Monzie	SW 7	Rivière	x	x	x	
Forage de Cornille	B 1	Forage	x			x
Forage de Champcevinel	B 2	Forage	x			x
P1P	B 3	Forage			x	x
Forage de Trélissac - La rivière	B 4	Forage				x

2. Caractérisation spatiale des contaminations par les nitrates dans les eaux de surface et dans les eaux souterraines

L'ensemble des données géochimiques est donné dans les Tableau 24, Tableau 25, Tableau 26, Tableau 27, et Tableau 28.

2.1 Campagne de novembre 2015

La campagne de novembre 2015 (Figure 67) est réalisée dans des conditions de fin d'étiage.

Concernant le compartiment de surface, la rivière Beauronne est tarie jusqu'à la commune de Château l'Evêque. Le ruisseau Foncroze est lui alimenté par les quelques sources émergeant dans le quartier de Monzie, à quelques centaines de mètres au Nord des Sources du Toulon. Les débits de ces deux cours d'eaux sont faibles, de l'ordre de quelques dizaines de $L.s^{-1}$ pour la rivière Beauronne et d'environ 2 à 3 $L.s^{-1}$ pour le ruisseau Foncroze. Tous les échantillons prélevés dans le compartiment de surface lors de la campagne de novembre 2015 possèdent des concentrations en nitrates inférieures à 10 $mg.L^{-1}$.

Concernant le compartiment souterrain, les concentrations en nitrates mesurées dans les sources karstiques et les forages de la zone d'étude sont plus importantes que dans les rivières. A l'exception de la source de Rouchou (GW 5), toutes les sources karstiques ont des concentrations en nitrates supérieures à 10 $mg.L^{-1}$, ce qui est concordant avec la concentration moyenne annuelle en nitrates mesurée aux Sources du Toulon (environ 13 $mg.L^{-1}$). Les concentrations les plus importantes sont mesurées dans la partie Nord de la zone d'étude, généralement supérieurs à 20 $mg.L^{-1}$ (GW8, GW 10), et peuvent même dépasser les 40 $mg.L^{-1}$ (GW 7).

Les eaux prélevées dans les forages (B1 et B2) montrent des concentrations en nitrates également supérieures à 10 $mg.L^{-1}$. Le forage B1 capte les aquifères du Jurassique supérieur (Oxfordien) et du Turonien. Le prélèvement a été réalisé après 1h30 de pompage, et les résultats ne semblent pas représentatifs du faciès géochimique de l'Oxfordien, mais plutôt d'un mélange important avec les eaux de l'aquifère du Turonien. Le forage B2 capte l'aquifère du Turonien-Coniacien.

Dans les conditions de basses eaux, la campagne de novembre 2015 montre des teneurs en nitrates représentatives de la concentration moyenne mesurée dans l'aquifère. Cette contamination est généralisée dans les compartiments de surface et souterrain.

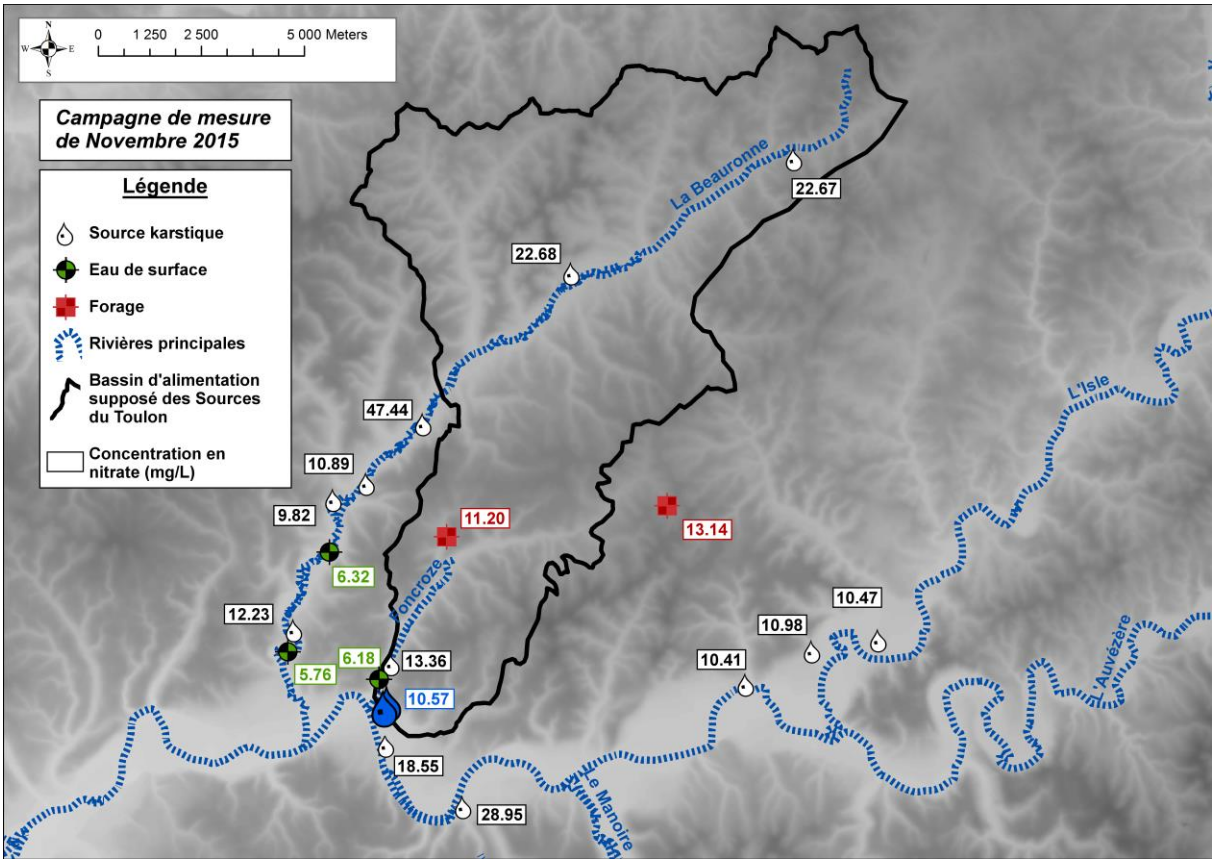


Figure 67 : Concentration en nitrates mesurée sur les points de mesure de la campagne de novembre 2015.

2.2 Campagne de janvier 2016

La campagne de janvier 2016 (Figure 68) est réalisée après les premières précipitations qui ont causé une augmentation des débits des sources et des rivières. Cette campagne est représentative des premières crues des cycles hydrologiques.

Concernant le compartiment de surface, la rivière Beauronne s'écoule depuis sa source au niveau du lieu-dit La Patourie sur la commune de Négrondes. L'ensemble de la rivière se perd au niveau du lieu-dit Fontamiel sur la commune de Ligueux. Elle est de nouveau alimentée par la source GW 9 et ne se perd plus jusqu'à l'aval. Le ruisseau Foncroze coule depuis sa source au niveau du lieu-dit La petite Sibérie sur la commune de Champcevinel. La qualité de l'eau de la rivière Beauronne vis-à-vis des nitrates présente des différences par rapport à la campagne de novembre 2015, avec des teneurs plus importantes. Au niveau de la source GW9, la concentration en nitrates est de 42.18 $mg.L^{-1}$, les concentrations diminuent progressivement dans le sens d'écoulement de la rivière, jusqu'à atteindre 23.49 $mg.L^{-1}$ au niveau du lieu-dit Le Cros sur la commune de Château-l'Evêque. Le ruisseau Foncroze présente lui aussi une concentration en nitrates plus importante avec une teneur à 11.19 $mg.L^{-1}$ mesurée pendant cette campagne.

Concernant le compartiment souterrain, l'ensemble des sources karstiques, à l'exception de GW 10 et GW 14, possèdent des concentrations en nitrates plus importantes. Sur certaines sources (GW 7, GW 8, GW 9, GW 11) les concentrations dépassent 40 $mg.L^{-1}$ et peuvent atteindre plus de 60 $mg.L^{-1}$, témoignant du caractère vulnérable de la ressource en eau karstique de la zone d'étude et du transfert rapide qui peut opérer de la surface jusqu'aux

exutoires. Ces sources particulièrement contaminées sont localisées dans la partie Nord de la zone d'étude.

La campagne de janvier 2016 illustre bien le phénomène de mobilisation des nitrates stockés dans le sol et dans la zone non saturée de l'aquifère pendant l'étiage, avec une augmentation généralisée des teneurs en nitrate dans les compartiments de surface et souterrains. Comme pendant la campagne de novembre 2015, les concentrations les plus importantes sont mesurées dans la partie Nord de la zone d'étude.

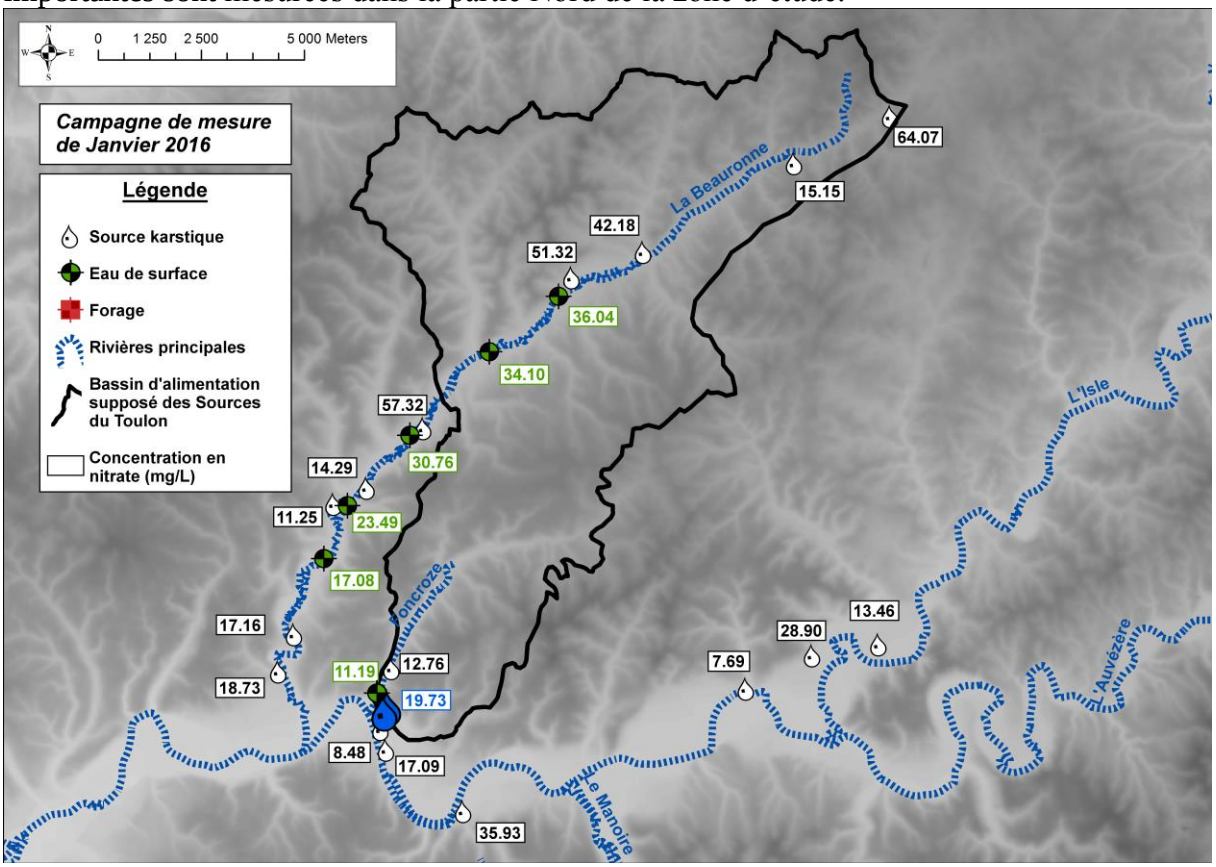


Figure 68 : Concentration en nitrates mesurée sur les points de mesure de la campagne de janvier 2016.

2.3 Campagne de mai 2016

La campagne de mai 2016 (Figure 69) est représentative des crues de printemps.

Concernant le compartiment de surface, les rivières Beauronne et Foncroze possèdent les mêmes configurations d'écoulement que pendant la campagne de janvier 2016. Du point de vue qualité des eaux, les concentrations en nitrates mesurées dans la rivière Beauronne sont plus faibles que pendant la campagne précédente, et sont comprises entre 24.44 $mg.L^{-1}$ et 15.77 $mg.L^{-1}$. Les eaux semblent subir un phénomène de dilution dans le sens de l'écoulement avec une diminution progressive des teneurs en nitrates.

Concernant le compartiment souterrain. Les teneurs en nitrates mesurées dans les sources karstiques sont plus faibles que pendant la campagne de janvier 2016, mais globalement plus importantes que pendant celle de novembre 2015, à l'exception de GW 5 et GW 6. Les concentrations les plus importantes sont de nouveau mesurées dans la partie Nord de la zone d'étude.

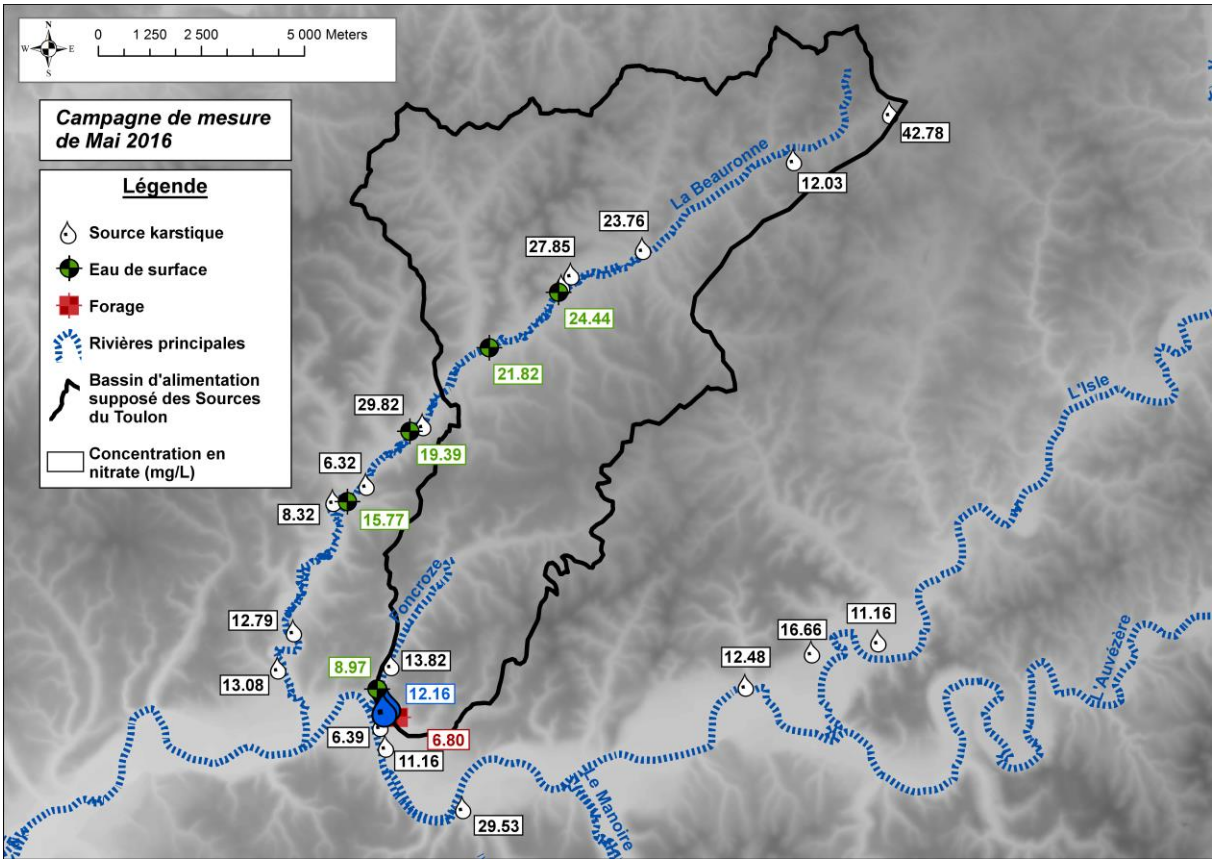


Figure 69 : Concentration en nitrates mesurée sur les points de la campagne de mai 2016.

Les campagnes de mesure étendues à une zone plus importante que le bassin d'alimentation des sources du Toulon ont mis en évidence de fortes teneurs généralisées sur l'ensemble de la zone d'étude. Suivant les conditions hydrologiques, les concentrations en nitrates peuvent varier, et certaines sources karstiques ont montré des concentrations parfois alarmantes, jusqu'à 64 $mg.L^{-1}$.

Les concentrations les plus importantes sont mesurées dans la partie Nord de la zone d'étude. Cette zone est particulièrement vulnérable car elle correspond à la localisation des zones de pertes de la rivière Beauronne. La mise en évidence des relations hydrauliques entre la nappe d'accompagnement de la Beauronne et l'aquifère karstique sous-jacent reste encore à prouver, mais une surveillance particulière de cette partie de la zone d'étude est à conseiller pour veiller au maintien de la qualité des eaux du compartiment de surface et souterrain.

3. Caractérisation des sources de nitrates sur le bassin versant karstique des Sources du Toulon

3.1 Rappels sur les principes gouvernant les compositions isotopiques des nitrates

L'ensemble des sources d'azote apportées en surface est sous forme inorganique ou organique. La minéralisation de la matière organique pour former de l'ammonium est généralement accompagnée d'un faible fractionnement isotopique. Le $\delta^{15}N_{-NH4}^{+}$ résiduel aura une signature isotopique proche de celle de l'azote organique. Concernant le $\delta^{15}N_{-NO3}^{-}$, plusieurs facteurs peuvent influencer sa composition isotopique issue de la nitrification (Mariotti et *al.*, 1981; Heaton et *al.*, 2005; Kendall et *al.*, 2007) :

(i) Si l'ammonium est complètement nitrifié, le nitrate résultant aura un $\delta^{15}N_{-NO3}^{-}$ similaire au $\delta^{15}N_{-NH4}^{+}$ de la source initiale,

(ii) Si l'ammonium est partiellement nitrifié, associé au processus de volatilisation de l'ammonium, le nitrate résultant aura un $\delta^{15}N_{-NO3}^{-}$ appauvrie par rapport au $\delta^{15}N_{-NH4}^{+}$ de la source initiale,

(iii) Sous conditions anoxiques, le processus de dénitrification partielle peut apparaître dans lequel la production de N_2 au ^{15}N appauvri engendre un nitrate résiduel au $\delta^{15}N_{-NO3}^{-}$ enrichi. La dénitrification partielle n'implique pas seulement un enrichissement isotopique du $\delta^{15}N_{-NO3}^{-}$ mais aussi du $\delta^{18}O_{-NO3}^{-}$.

Concernant le $\delta^{18}O$, le processus de nitrification contrôle encore sa signature. Dans le cas le plus simple, la nitrification autotrophe produit un nitrate avec deux atomes d'oxygène provenant de l'eau, et un provenant de l'oxygène atmosphérique. La valeur attendue en $\delta^{18}O$ des nitrates est :

$$\delta^{18}O_{-NO3}^{-} = 2/3.\ \delta^{18}O_{-H2O} + 1/3.\ \delta^{18}O_{-O2} \quad (1)$$

Des travaux passés ont mesuré un $\delta^{18}O_{O2}$ entre +23.5 ‰ et +24 ‰ (Kendall et *al.*, 2007 ; Luz and Barkan, 2011). La valeur moyenne du $\delta^{18}O_{-H2O}$ dans les eaux souterraines du système karstique du Toulon est de -6.60 ‰, pour des valeurs minimales et maximales mesurées respectivement à -7.33 ‰ et + -5.81‰. La valeur théorique pour le $\delta^{18}O$ des nitrates d'après l'équation 1 serait comprise entre +2.95 ‰ et +3.96 ‰.

3.2 Les données isotopiques

Les compositions isotopiques des isotopes des nitrates et de $\delta^{18}O$ de la molécule d'eau mesurées dans les eaux de surface, les eaux souterraines et dans les sources potentielles de nitrate sont fournies dans les Tableau 24, Tableau 25, Tableau 26, Tableau 27, et Tableau 28.

Tableau 24 : Description du prélèvement, compositions chimiques (mg.L^{-1}) et composition isotopique (‰) des échantillons d'eaux souterraines.

Nom du point de mesure	Nom de l'échantillon	Date de prélèvement	Aquifère	T (°C)	pH (u.pH)	CE (µS/cm)	O2 (mg/L)	Ca^{2+} (mg/L)	Mg^{2+} (mg/L)	Na^{+} (mg/L)	K^{+} (mg/L)	HCO_3^{-} (mg/L)	Cl^{-} (mg/L)	SO_4^{2-} (mg/L)	NO_3^{-} (mg/L)	SiO_2 (mg/L)	$\delta^{18}O_{-H2O}$ (‰)	$\delta^{15}N_{-NO3}^{-}$ (‰)	$\delta^{18}O_{-NO3}^{-}$ (‰)	Balance (%)
Source de Monzie	GW 2	03/11/2015	Crétacé	13.30	6.984	675	8.61	138.98	3.09	9.79	1.01	396.50	15.98	16.19	13.36	14.50	-6.26	8.10	3.90	1.02
Source de Monzie	GW 2	19/01/2016	Crétacé	13.20	6.984	620	9.01	124.06	2.94	9.40	1.31	342.82	14.51	16.61	12.76	12.80	-6.32	7.50	3.20	2.30
Source de Monzie	GW 2	23/05/2016	Crétacé	13.20	7.064	645	9.41	135.48	3.19	9.47	1.37	364.78	14.48	21.23	13.82	12.58	-6.01	8.20	4.00	2.98
Fontaine de l'Abbaye de Chancelade	GW 3	19/01/2016	Crétacé	12.80	7.007	643	9.45	136.53	2.46	10.87	0.87	378.20	15.49	16.17	18.73	17.16	-	9.70	3.00	2.11
Fontaine de l'Abbaye de Chancelade	GW 3	25/05/2016	Crétacé	12.70	6.907	651	9.07	122.85	2.21	9.77	0.76	387.96	14.53	11.88	13.08	17.34	-	9.60	3.40	-3.38
Source de Lavaure	GW 4	03/11/2015	Crétacé	12.90	7.370	442	9.97	84.52	2.37	9.15	0.92	252.54	13.10	6.20	12.23	14.55	-5.81	5.40	3.10	0.10
Source de Lavaure	GW 4	18/01/2016	Crétacé	12.70	7.591	419	10.06	79.98	2.46	8.18	1.15	209.84	11.67	9.19	17.16	13.17	-6.43	5.40	2.90	3.99
Source de Lavaure	GW 4	25/05/2016	Crétacé	12.60	7.417	456	10.2	78.99	2.26	8.90	0.89	249.25	12.85	6.65	12.79	14.25	-6.11	5.90	3.90	-2.62
Source de Rouchou	GW 5	03/11/2015	Crétacé	13.8	7.08	563	7.29	118.67	2.48	7.10	0.91	357.46	10.46	6.03	9.82	17.60	-	4.30	2.00	0.26
Source de Rouchou	GW 5	18/01/2016	Crétacé	13.2	7.027	590	7.86	119.38	2.45	6.89	1.07	355.01	10.01	5.95	11.25	14.81	-	4.10	2.70	0.72
Source de Rouchou	GW 5	25/05/2016	Crétacé	13.1	6.901	596	7.37	110.95	2.55	7.07	0.84	339.16	11.65	7.67	8.32	14.27	-	5.40	3.00	-0.76
Fontaine du Godet	GW 6	03/11/2015	Crétacé	12.50	6.856	600	7.95	124.11	2.73	7.99	1.28	359.90	11.62	8.99	10.89	17.91	-6.42	7.00	4.60	1.82
Fontaine du Godet	GW 6	19/01/2016	Crétacé	12.40	6.805	562	7.63	112.20	2.62	8.13	1.24	313.54	10.63	10.77	14.29	15.08	-6.30	4.50	2.50	3.08
Fontaine du Godet	GW 6	23/05/2016	Crétacé	12.10	6.853	442	7.95	81.78	1.92	6.30	0.88	259.86	8.85	8.21	6.32	12.96	-5.97	6.10	4.10	-2.54
Source de la Bayolle	GW 7	04/11/2015	Crétacé	14.90	7.374	620	7.62	122.24	3.36	8.37	3.63	323.30	17.11	12.77	47.44	15.90	-	7.80	4.50	0.26
Source de la Bayolle	GW 7	18/01/2016	Crétacé	12.40	6.871	601	8.07	116.20	2.44	7.29	1.62	301.34	11.52	9.31	57.32	16.54	-	5.51	2.39	-0.08
Source de la Bayolle	GW 7	23/05/2016	Crétacé	12.30	6.914	605	7.37	114.62	2.54	7.66	0.94	318.42	12.84	9.50	29.82	16.85	-	5.60	4.20	0.32
Source de Bezan	GW 8	04/11/2015	Crétacé	13.70	7.010	655	8.94	136.43	2.69	7.93	2.50	372.10	12.66	9.14	22.68	22.40	-	6.70	4.10	3.05
Source de Bezan	GW 8	18/01/2016	Crétacé	13.00	6.979	637	8.14	136.19	1.93	6.19	1.62	356.24	10.14	9.88	51.32	19.01	-	3.80	2.50	0.84
Source de Bezan	GW 8	23/05/2016	Crétacé	12.80	6.917	585	7.87	110.32	1.66	4.90	1.02	325.74	8.06	8.29	27.85	17.66	-	3.50	2.30	-2.45
Source de la Roche Pontissac	GW 9	18/01/2016	Crétacé	13.00	7.018	646	6..10	137.60	2.00	5.80	2.20	362.34	23.47	7.87	42.18	12.83	-	4.20	2.10	1.32
Source de la Roche Pontissac	GW 9	23/05/2016	Crétacé	12.10	6.999	589	6.67	112.96	1.66	4.57	0.74	320.86	9.28	6.77	23.76	11.18	-	3.40	2.60	-0.34
Source de Fontamiel	GW 10	05/11/2015	Crétacé	13.70	7.052	540	8.97	102.38	2.45	10.10	1.55	301.34	14.04	4.49	22.67	10.40	-	10.00	6.50	0.06
Source de Fontamiel	GW 10	18/01/2016	Crétacé	12.60	7.741	482	9.77	89.38	2.05	12.47	1.42	264.74	17.87	6.72	15.15	8.64	-	8.00	4.20	-0.09
Source de Fontamiel	GW 10	23/05/2016	Crétacé	12.50	7.118	495	9.70	82.03	1.88	16.51	1.22	258.64	21.35	6.93	12.03	8.31	-	7.10	3.30	-1.70
Source de Fongou	GW 11	18/01/2016	Crétacé	12.6	6.900	686	6.10	145.20	2.12	7.26	0.74	372.10	12.34	4.68	64.07	7.60	-	5.78	2.73	-1.26
Source de Fongou	GW 11	23/05/2016	Crétacé	12.50	6.835	662	5.58	130.27	1.85	6.55	1.38	337.47	10.77	5.76	42.78	6.65	-	6.10	4.00	-2.51
Source des Bories	GW 12	04/11/2015	Crétacé - Jurassique	14.1	7.115	558	5.91	105.11	10.17	4.93	0.84	341.60	8.82	6.50	10.47	7.38		3.70	2.70	1.59
Source des Bories	GW 12	20/01/2016	Crétacé - Jurassique	13.00	7.046	548	6.57	106.27	5.71	6.52	0.86	312.32	10.53	7.46	13.46	11.62		5.00	2.70	2.89
Source des Bories	GW 12	24/05/2016	Crétacé - Jurassique	13.40	7.053	598	5.90	105.29	6.94	6.10	0.90	340.38	10.91	7.21	11.16	10.67		5.60	3.80	-0.70
Source du bourg d'Antonne	GW 13	04/11/2015	Crétacé	14.7	7.200	696	6.16	130.40	3.69	16.14	7.20	374.54	34.68	11.75	10.41	16.70	-	7.40	0.50	1.21
Source du bourg d'Antonne	GW 13	20/01/2016	Crétacé	13.6	7.160	615	6.53	113.44	3.01	17.45	7.16	326.96	29.36	11.42	7.69	16.83	-	6.80	-0.10	2.36
Source du bourg d'Antonne	GW 13	24/05/2016	Crétacé	13.40	7.244	638	8.46	108.42	3.21	15.59	5.86	353.80	22.19	11.44	12.48	14.81	-	7.90	2.30	-2.60
Source de la Clavelie	GW 14	04/11/2015	Crétacé	14.20	6.953	646	2.94	124.42	5.47	6.66	1.04	368.44	11.29	8.35	10.98	23.05	-6.26	5.60	4.30	2.17
Source de la Clavelie	GW 14	19/01/2016	Crétacé	13.40	6.935	572	6.79	115.48	2.08	6.33	0.85	322.08	12.10	11.15	28.90	22.47	-6.40	3.49	1.95	-0.17
Source de la Clavelie	GW 14	24/05/2016	Crétacé	13.50	6.960	660	4.88	124.50	3.51	6.98	1.03	363.56	13.14	9.26	16.66	21.89	-6.09	5.00	3.90	0.41
Fontaine des Malades	GW 15	04/11/2015	Crétacé	14.40	7.125	643	7.41	126.02	3.38	13.18	1.98	329.40	20.56	23.10	28.95	14.10	-	10.20	4.00	1.98
Fontaine des Malades	GW 15	20/01/2016	Crétacé	14.20	7.040	653	7.91	126.99	3.70	15.35	2.40	324.52	20.84	26.67	35.93	14.20	-	8.60	2.30	2.39
Fontaine des Malades	GW 15	24/05/2016	Crétacé	14.00	6.970	621	7.37	105.60	3.23	12.97	2.21	329.40	16.87	24.37	29.53	12.79	-	8.40	1.60	-5.29
Source du stade CAP	GW 16	04/11/2015	Crétacé - Jurassique	19.00	7.100	640	4.41	93.36	19.98	10.68	2.05	364.78	16.25	13.18	18.55	14.20	-	10.80	3.80	-1.16
Source du stade CAP	GW 16	19/01/2016	Crétacé - Jurassique	18.60	7.140	618	3.40	89.53	19.78	11.26	1.56	333.06	16.18	11.55	17.09	14.03	-	10.50	3.90	1.70
Source du stade CAP	GW 16	23/05/2016	Crétacé - Jurassique	20.00	7.10	605	3.32	84.01	20.89	10.60	1.35	333.06	15.62	14.33	16.41	13.34	-	10.30	4.80	-0.20
Source du stade COPO	GW 17	19/01/2016	Crétacé - Jurassique	20.40	7.160	530	1.54	80.47	22.74	8.02	0.97	325.74	12.50	11.03	8.48	14.36	-6.56	9.70	3.70	2.43
Source du stade COPO	GW 17	24/05/2016	Crétacé - Jurassique	20.60	7.143	542	1.53	82.05	23.22	8.27	0.77	328.18	12.50	9.58	6.39	13.57	-6.60	9.49	3.90	3.07
Source du stade COPO	GW 17	16/08/2016	Crétacé - Jurassique	20.40	7.182	555	1.58	82.51	21.54	7.96	0.79	333.58	12.71	8.39	7.15	13.42	-6.52	9.80	4.30	1.38

Tableau 25 : Description du prélèvement, compositions chimiques (mg.L^{-1}) et composition isotopique (‰) des échantillons d'eau de surface.

Nom du point de mesure	Nom de l'échantillon	Date de prélèvement	T (°C)	pH (u. pH)	CE (µS/cm)	O2 (mg/L)	Ca^{2+} (mg/L)	Mg^{2+} (mg/L)	Na^{+} (mg/L)	K^{+} (mg/L)	HCO_3^{-} (mg/L)	Cl^{-} (mg/L)	SO_4^{2-} (mg/L)	NO_3^{-} (mg/L)	SiO_2 (mg/L)	$\delta^{18}O_{-H2O}$ (‰)	$\delta^{15}N_{-NO3}^{-}$ (‰)	$\delta^{18}O_{-NO3}^{-}$ (‰)	Balance (%)
Beauronne - Reymondens	SW 1	03/11/2015	11.9	7.667	566	4.25	109.41	3.30	11.21	3.67	334.28	16.93	5.61	5.76	14.90	-	8.10	7.60	1.29
Beauronne - le Cros	SW 2	25/01/2016	9.4	8.030	625	10.99	118.45	2.40	7.06	1.21	347.70	12.23	8.81	17.08	13.32	-	5.90	5.90	-0.33
Beauronne - Château l'Evêque	SW 3	25/01/2016	9.7	7.979	633	11.29	127.59	2.56	6.95	1.14	345.26	12.52	10.66	23.49	14.88	-	6.00	4.10	2.30
Beauronne - Château l'Evêque	SW 3	26/05/2016	14.7	7.858	594	10.20	114.60	2.28	5.80	1.03	318.42	10.07	8.32	15.77	14.00	-	6.50	5.50	2.21
Beauronne - Preyssac	SW 4	22/01/2016	7.4	7.957	639	11.01	127.42	2.32	6.79	1.19	341.60	12.10	11.22	30.76	15.25	-	7.10	5.10	1.62
Beauronne - Preyssac	SW 4	26/05/2016	14.1	7.825	605	9.84	116.89	2.18	5.80	1.04	334.28	10.25	8.78	19.39	13.67	-	6.60	4.70	0.32
Beauronne - Borie des Cailloux	SW 5	22/01/2016	8.1	7.961	646	10.50	129.12	2.21	6.94	1.21	342.82	12.38	11.65	34.10	14.91	-	5.90	5.10	1.54
Beauronne - Borie des Cailloux	SW 5	26/05/2016	14.1	7.769	613	9.60	115.80	2.30	5.88	1.09	330.62	10.74	9.01	21.82	13.29	-	7.00	5.80	0.03
Beauronne - Agonac	SW 6	22/01/2016	8.5	7.741	645	10.08	132.43	2.13	6.33	1.24	335.50	11.93	12.63	36.04	15.29	-	5.90	4.20	3.09
Beauronne - Agonac	SW 6	26/05/2016	14.1	7.571	617	9.87	115.80	2.30	5.88	1.09	328.18	10.91	9.59	24.44	13.07	-	6.00	4.50	-0.12
Foncroze - Monzie	SW 7	03/11/2015	14.4	7.801	616	7.08	126.32	2.80	10.15	1.66	364.78	15.25	12.64	6.18	14.10	-	9.50	4.80	1.89
Foncroze - Monzie	SW 7	22/01/2016	8	7.875	634	10.94	128.04	2.49	9.59	0.96	374.54	15.36	20.71	11.19	12.68	-	8.20	4.50	-0.94
Foncroze - Monzie	SW 7	26/05/2016	14.5	7.705	622	8.93	124.15	2.71	9.35	1.00	352.58	13.72	18.57	8.97	11.78	-	7.70	4.00	1.24

Tableau 26 : Description du prélèvement, compositions chimiques (mg.L^{-1}) et composition isotopique (‰) des échantillons de la source de l'Abîme du Toulon.

Nom du point de mesure	Nom de l'échantillon	Date de prélèvement	T (°C)	pH (u. pH)	CE (µS/cm)	O2 (mg/L)	Ca^{2+} (mg/L)	Mg^{2+} (mg/L)	Na^{+} (mg/L)	K^{+} (mg/L)	HCO_3^- (mg/L)	Cl^- (mg/L)	SO_4^{2-} (mg/L)	NO_3^- (mg/L)	SiO_2 (mg/L)	$\delta^{18}O_{-H2O}$ (‰)	$\delta^{15}N_{-NO3}^-$ (‰)	$\delta^{18}O_{-NO3}^-$ (‰)	Débit (L/s)	Balance (%)
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	06/10/2015	14.40	7.040	594	4.09	104.47	11.85	6.54	1.11	344.04	10.83	8.62	10.57	13.59	-6.93	4.80	2.50	289	3.66
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	20/10/2015	14.20	7.056	594	4.29	103.59	12.12	6.35	0.96	341.60	10.74	8.61	10.41	13.65	-7.05	3.99	3.50	286	3.78
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	03/11/2015	14.20	7.049	593	4.28	101.87	12.21	6.22	0.91	342.82	11.02	8.25	10.57	13.50	-7.05	5.30	5.10	294	1.82
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	25/11/2015	14.20	7.034	593	4.33	101.32	12.72	6.40	1.00	339.16	11.36	9.26	9.99	13.41	-7.26	5.00	4.20	302	3.45
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	22/12/2015	14.40	7.095	586	4.29	100.82	12.62	6.41	1.06	347.70	10.80	9.33	10.63	12.70	-7.23	4.60	2.20	297	2.14
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	30/12/2015	14.40	7.080	583	4.09	99.37	12.29	6.29	0.91	342.82	11.02	9.88	10.78	12.62	-7.09	3.87	3.10	281	1.78
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	05/01/2016	14.40	7.104	586	4.02	99.26	12.39	6.91	0.71	348.92	10.97	9.93	10.83	12.10	-6.70	5.30	3.30	404	1.19
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	08/01/2016	14.26	7.025	597	4.51	107.09	11.43	6.36	0.94	351.36	11.26	10.61	12.44	13.15	-	4.63	3.55	565	0.83
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	11/01/2016	14.00	7.012	591	4.90	110.27	9.32	6.64	1.13	342.82	12.02	11.51	14.46	13.89	-	5.60	2.20	733	1.35
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	12/01/2016	14.00	7.008	581	5.08	108.23	8.84	6.67	1.16	339.16	11.76	11.22	13.64	14.43	-7.16	5.70	3.00	763	0.96
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	13/01/2016	13.82	6.998	574	5.55	107.84	7.91	6.78	1.25	315.98	11.74	11.07	14.81	14.53	-7.02	4.64	3.98	778	3.22
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	14/01/2016	13.72	6.988	567	5.89	107.21	7.01	6.76	1.24	311.10	11.72	10.88	16.27	15.15	-7.07	5.60	3.30	751	2.88
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	15/01/2016	13.6	6.978	559	6.25	108.45	6.01	6.56	1.27	309.88	11.26	10.48	16.44	15.22	-6.31	5.50	3.40	748	2.98
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	18/01/2016	13.40	6.972	543	6.71	106.62	4.31	6.39	1.33	308.66	10.80	11.09	19.73	15.42	-5.87	4.59	4.06	709	0.74
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	19/01/2016	13.40	6.971	546	6.67	108.89	4.14	7.35	1.32	309.88	10.79	11.38	19.02	15.62	-7.01	5.00	5.00	670	1.78
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	22/01/2016	13.30	6.964	550	6.62	109.14	4.04	6.34	1.32	317.20	10.57	11.43	19.37	15.43	-7.31	4.80	2.90	635	0.46
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	25/01/2016	13.30	6.964	574	6.58	110.26	4.36	6.22	1.21	320.86	10.91	11.02	18.06	15.52	-6.74	4.30	3.90	600	0.73
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	27/01/2016	13.40	6.964	578	6.27	110.69	4.79	6.16	1.10	335.60	10.90	10.88	18.43	15.52	-7.00	5.40	3.80	560	-0.82
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	29/01/2016	13.40	6.967	581	6.45	112.76	5.36	6.17	1.24	339.16	10.52	8.84	17.23	14.95	-7.19	5.00	2.50	557	0.52
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	03/02/2016	13.70	6.991	600	6.02	113.77	6.44	6.20	1.20	351.36	11.38	9.47	16.93	15.29	-6.55	5.40	3.90	695	-0.20
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	05/02/2016	13.5	6.990	-	-	112.76	6.45	6.36	1.25	342.82	11.12	9.39	16.98	15.07	-7.16	5.60	3.40	574	0.64
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	09/02/2016	13.40	6.984	-	-	110.89	6.07	6.33	1.18	345.26	11.08	9.19	16.65	15.95	-7.09	4.81	4.05	695	-0.60
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	11/02/2016	13.40	6.967	580	6.50	110.86	5.69	6.37	1.30	328.66	11.14	9.14	16.48	15.70	-7.10	4.80	2.80	831	1.36
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	17/02/2016	13.10	6.960	515	6.91	104.96	3.47	5.98	1.30	295.83	10.42	8.66	14.72	16.67	-6.82	3.80	3.30	870	2.37
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	24/02/2016	12.90	6.900	528	7.02	110.44	3.20	6.18	1.25	305.33	10.95	9.28	13.80	16.67	-7.21	5.30	4.50	779	3.04
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	03/03/2016	13.10	6.930	557	6.31	109.82	4.45	6.07	1.05	321.78	10.81	8.67	13.04	17.07	-6.45	4.90	3.20	678	1.50
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	09/03/2016	13.10	6.926	565	6.19	107.27	4.42	5.75	0.98	327.57	10.94	8.41	12.50	17.02	-6.91	4.43	5.35	755	-0.40
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	16/03/2016	13.20	6.913	559	6.74	107.26	3.96	6.63	0.92	320.48	11.07	8.82	12.62	16.88	-6.31	5.50	3.10	707	0.43
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	29/03/2016	13.40	6.968	582	5.68	110.12	5.68	6.58	0.71	338.92	11.29	8.96	12.05	17.25	-6.35	4.94	4.15	536	0.23
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	06/04/2016	13.50	6.966	585	5.45	109.93	6.65	6.10	0.76	341.90	11.21	9.07	12.56	17.05	-6.87	5.00	3.00	516	0.18
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	20/04/2016	13.50	6.916	571	5.77	106.92	5.56	5.90	1.00	332.83	10.97	8.95	11.50	16.52	-6.88	5.90	3.20	725	-0.38
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	27/04/2016	13.20	6.943	568	6.38	106.73	4.05	5.69	0.96	334.46	10.75	9.13	11.29	17.07	-6.59	4.90	2.29	655	-1.75
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	04/05/2016	13.40	6.881	580	5.94	107.89	5.86	5.71	0.91	345.58	11.04	8.96	11.24	16.91	-6.25	5.00	2.60	527	-1.52
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	11/05/2016	13.50	6.874	594	5.75	108.27	6.54	5.91	0.83	355.38	11.23	9.13	11.77	16.47	-6.18	4.40	3.30	512	-2.24
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	17/05/2016	13.70	6.896	598	5.23	104.26	7.93	6.36	0.93	356.06	11.28	9.04	11.84	16.46	-6.74	5.90	3.40	455	-2.84
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	23/05/2016	13.80	6.991	600	5.10	106.34	8.30	6.50	0.89	346.48	11.05	9.08	12.16	16.08	-6.43	5.50	3.20	575	-0.50
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	01/06/2016	13.6	6.943	577	5.23	104.88	7.19	6.74	0.98	338.96	11.42	9.16	12.25	16.26	-6.53	5.36	2.43	544	-0.85
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	07/06/2016	13.60	6.983	576	5.28	112.81	7.05	6.38	0.97	330.62	10.73	9.09	12.21	16.06	-6.39	5.50	3.40	504	3.33
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	21/06/2016	13.60	6.955	580	5.10	103.63	7.39	6.36	1.01	344.72	10.39	7.99	11.71	15.34	-6.41	5.40	4.70	573	-1.60
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	29/06/2016	13.60	6.966	579	5.44	106.04	7.14	6.40	1.02	349.70	10.26	7.96	11.73	15.73	-6.42	5.28	2.89	472	-1.39
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	13/07/2016	13.80	6.940	587	4.65	105.93	8.44	6.07	0.79	352.59	10.73	7.43	12.58	15.82	-6.14	5.50	3.20	417	-1.23
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	20/07/2016	13.90	6.965	591	4.65	104.49	8.80	6.41	0.67	352.02	10.56	7.38	12.66	15.51	-6.36	5.60	4.30	394	-1.36
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	03/08/2016	14.00	6.978	590	4.42	104.18	8.94	6.31	0.79	353.96	10.75	7.46	12.97	14.76	-6.41	5.80	4.70	391	-1.74
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	16/08/2016	14.00	6.966	590	4.15	103.44	9.11	6.26	0.83	352.32	10.86	7.52	12.86	14.90	-6.46	5.20	2.70	351	-1.74
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	14/09/2016	14.10	6.976	587	3.77	101.61	9.84	6.18	0.88	348.61	10.98	7.45	12.30	14.28	-6.49	5.24	2.48	352	-1.48
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	03/10/2016	14.10	7.028	585	4.04	100.38	10.60	6.10	0.82	349.02	10.95	7.48	11.52	13.50	-6.48	5.60	4.90	341	-1.46
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	09/11/2016	14.10	7.083	582	4.01	101.19	11.39	6.20	0.96	346.99	11.00	7.50	10.57	13.74	-6.51	5.00	2.90	327	-0.18
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	22/11/2016	14.10	7.046	584	4.05	102.31	11.46	6.25	0.87	348.11	11.03	7.52	10.20	13.81	-6.53	4.58	2.17	350	0.20
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	16/12/2016	14.00	7.130	589	4.50	103.72	10.37	6.24	1.02	348.74	11.31	7.96	13.60	13.90	-6.47	4.64	2.24	317	-0.57
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	21/12/2016	14.10	7.022	588	4.50	101.88	10.63	6.25	0.94	346.56	11.20	7.99	13.29	13.95	-6.51	5.90	3.30	313	-0.81
Source de l'Abîme du Toulon	GW 1	04/01/2017	14.00	7.096	586	4.31	100.55	11.24	6.13	0.91	349.58	11.10	7.73	11.95	13.98	-6.49	6.20	3.70	310	-1.13

Tableau 27 : Description du prélèvement, compositions chimiques (mg.L^{-1}) et composition isotopique (‰) des échantillons d'eau des forages.

Nom du point de mesure	Nom de l'échantillon	Date de prélèvement	Aquifère	T (°C)	pH (u. pH)	CE (µS/cm)	O2 (mg/L)	Ca^{2+} (mg/L)	Mg^{2+} (mg/L)	Na^{+} (mg/L)	K^{+} (mg/L)	HCO_3^{-} (mg/L)	Cl^{-} (mg/L)	SO_4^{2-} (mg/L)	NO_3^{-} (mg/L)	SiO_2 (mg/L)	$\delta^{18}O_{-H2O}$ (‰)	$\delta^{15}N_{-NO3}^{-}$ (‰)	$\delta^{18}O_{-NO3}^{-}$ (‰)	Balance (%)
Forage de Cornille	B1	05/11/2015	Jurassique supérieur - Turonien	15.3	6.873	676	2.29	132.84	5.69	7.04	1.79	414.80	13.14	9.24	13.14	15.09	-	7.29	5.03	-0.73
Forage de Cornille	B1	18/09/2017	Jurassique supérieur - Turonien	17.3	7.079	609	1.21	97.82	21.12	5.20	0.61	395.28	8.88	7.00	1.32	10.56	-	10.30	8.30	-0.03
Forage de Champcevinel	B2	06/11/2015	Turonien - Coniacien	15	7.123	590	6.9	118.94	3.16	6.72	1.49	341.60	10.60	7.16	11.20	25.03	-	1.70	1.30	2.44
Forage de Champcevinel	B2	18/09/2017	Turonien - Coniacien	14.3	7.205	577	6.65	121.16	2.59	6.15	0.38	359.67	9.44	6.27	11.69	24.90	-	2.90	2.90	0.53
P1P	B3	23/05/2016	Turonien	14.70	7.13	572	1.59	94.54	13.70	6.48	0.73	350.30	10.53	9.58	6.80	15.72	-	5.80	4.70	-1.44
P1P	B3	20/07/2016	Turonien	15	7.084	568	1.85	91.34	13.23	6.24	0.51	345.60	10.58	8.14	6.34	14.82	-	5.52	3.67	-2.31
Forage de Trélissac - La rivière	B4	18/09/2017	Jurassique moyen	20.8	7.129	562	0.06	85.52	22.09	6.29	0.40	361.38	9.16	7.84	0.00	9.00	-	-	-	0.43

Tableau 28 : Description de l'échantillon, compositions chimiques (mg.L^{-1}) et composition isotopique (‰) des échantillons des sources potentielles de nitrates.

Nom du point de mesure	Nom de l'échantillon	Date de prélèvement	NO_2^{-} (mg/L)	NO_3^{-} (mg/L)	NH_4^{+} (mg/L)	$\delta^{18}O_{-H2O}$ (‰)	$\delta^{15}N_{-NO3}^{-}$ (‰)	$\delta^{18}O_{-NO3}^{-}$ (‰)
Pluie Champcevinel	NS 1	23/05/2016	0.00	1.42	0.62	-4.79	-5.44	61.29
Rejet assainissement	NS 2	22/03/2017	0.05	171.80	0.03	-	6.26	-2.87
Rejet assainissement	NS 2	19/09/2017	0.09	169.90	0.08	-	6.27	-4.17
Rejet assainissement	NS 2	18/11/2017	1.09	179.65	2.25	-	-1.89	-4.77
Fertilisant	NS 3	15/11/2017	-	-	-	-	1.12	23.50
Fertilisant	NS 3	15/05/2016	-	-	-	-	0.92	23.50
Sol cultivé	NS 4	19/09/2017	1.57	0.68	1.25	-	-1.88	0.17
Sol cultivé	NS 4	18/11/2017	1.07	2.20	0.10	-	1.25	2.78
Sol sous boues de STEP	NS 5	19/09/2017	0.89	0.31	0.45	-	10.90	26.99
Sol sous boues de STEP	NS 5	18/11/2017	0.50	0.12	0.39	-	33.83	57.54
N_{Tot} du sol	NS6	19/09/2017	-	-	-	-	6.83	-
N_{Tot} du Sol	NS6	18/11/2017	-	-	-	-	6.77	-

Les compositions isotopiques des isotopes des nitrates mesurées dans les eaux de surface (SW1 à SW7) et dans les eaux souterraines (GW1 à GW17) sont similaires et sont toutes comprises entre 3.40 ‰ et 10.80 ‰ pour $\delta^{15}N_{-NO3}^{-}$ et entre -0.10 ‰ et +7.60 ‰ pour $\delta^{18}O_{-NO3}^{-}$. Dans les forages (B1 to B3), les valeurs sont comprises entre +1.70 ‰ et +10.30 ‰ pour $\delta^{15}N_{-NO3}^{-}$ et entre +1.30 ‰ et +9.30 ‰ pour $\delta^{18}O_{-NO3}^{-}$. Les compositions les plus appauvries et les plus enrichies sont observées respectivement dans les forages B1 et B2. Les points s'alignent bien suivant une droite de pente 0.5. C'est généralement une caractéristique témoignant d'une dénitrification partielle (Kendall et *al.*, 2007 ; Singleton et *al.*, 2007). Dans le cas de B2 et B3 ces valeurs plus enrichies sont à relier avec : (i) les faibles concentrations en nitrates mesurées, (ii) les faibles concentrations en oxygène dissous mesurées. Pour les Sources du Toulon, les compositions isotopiques mesurées sont comprises entre +3.80 ‰ et +6.20 ‰ pour $\delta^{15}N_{-NO3}^{-}$ et entre +2.17 ‰ et +5.35 ‰ pour $\delta^{18}O_{-NO3}^{-}$.

Les valeurs en $\delta^{15}N_{-NO3}^{-}$ et $\delta^{18}O_{-NO3}^{-}$ mesurées dans les eaux de pluie sont respectivement de -5.44 ‰ et +61.29 ‰.

Les valeurs $\delta^{15}N$ mesurées dans les fertilisants azotés de synthèse utilisés classiquement sur la zone d'étude (ammonitrate, perle d'urée) sont fournies dans Tableau 28. Les valeurs en $\delta^{15}N$ mesurées sont de +1.12 ‰ et +0.95 ‰, et sont dans la gamme des valeurs rencontrées dans les fertilisants utilisés dans d'autres pays (Vitoria et *al.*, 2004 ; Bateman and Kelly 2007 ; Heaton et *al.*, 2012 ; Briand et *al.*, 2017).

Les valeurs en $\delta^{15}N_{-NO3}^{-}$ et $\delta^{18}O_{-NO3}^{-}$ mesurées dans les sols cultivés de la zone d'étude sur lesquels des fertilisants azotés de synthèse sont apportés, sont comprises entre -1.88 ‰ et +1.25 ‰ pour $\delta^{15}N_{-NO3}^{-}$, et entre +0.17 ‰ et +2.18 ‰ pour $\delta^{18}O_{-NO3}^{-}$, ce qui est similaire avec les valeurs retrouvées dans la littérature (Panno et *al.*, 2001 ; Mayer et *al.*, 2002 ; Sebilo, 2003 ; Liu et *al.*, 2006 ; Xue et *al.*, 2009 ; Puig et *al.*, 2013 ; Briand et *al.*, 2017).

Les valeurs en $\delta^{15}N_{-NO3}^{-}$ et $\delta^{18}O_{-NO3}^{-}$ pour les sols agricoles où les boues de STEP sont utilisées comme fertilisants sont comprises entre +10.90 ‰ et +33.83 ‰ pour $\delta^{15}N_{-NO3}^{-}$, et entre +26.99 ‰ et +57.54 ‰ pour $\delta^{18}O_{-NO3}^{-}$.

Les valeurs en $\delta^{15}N_{-NO3}^{-}$ et $\delta^{18}O_{-NO3}^{-}$ des rejets d'assainissement individuels sont comprises entre -1.89 ‰ et +6.27 ‰ pour $\delta^{15}N_{-NO3}^{-}$, et entre -4.17 ‰ et -2.00 ‰ pour $\delta^{18}O_{-NO3}^{-}$.

Les isotopes stables de la molécule d'eau ($\delta^{18}O_{-H2O}$) sont récoltés dans les eaux souterraines (GW1, GW2, GW4, GW6, GW14, GW17) et dans l'eau de pluie (NS 1). Sur la zone d'étude, les eaux souterraines ont des compositions isotopiques en $\delta^{18}O_{-H2O}$ très proches, comprises entre -5.81 ‰ et -7.32 ‰. A partir de cette gamme de variation, il est possible de calculer la gamme théorique de $\delta^{18}O_{-NO3}^{-}$ issue de la nitrification bactérienne. En utilisant l'équation (1), la gamme théorique de $\delta^{18}O_{-NO3}^{-}$ est comprise entre +2.95 ‰ et + 3.96 ‰. Une valeur en $\delta^{18}O_{-NO3}^{-}$ comprise dans cette gamme de variation laissera supposer une nitrification complète. Si la valeur mesurée est inférieure à +2.95 ‰, on supposera une nitrification incomplète. Si la valeur mesurée est supérieure à +3.96 ‰, on supposera qu'un processus de dénitrification est la cause de l'enrichissement isotopique.

3.3 Caractérisation des pôles de nitrates

Les sources potentielles de nitrates peuvent être classées en trois groupes : (i) les apports atmosphériques, (ii) les fertilisants azotés de synthèse, (iii) la nitrification des différentes formes d'azote : N organique des sols, des fertilisants azotés de synthèse, ou des déchets organiques.

Les gammes de $\delta^{15}N$ et $\delta^{18}O$ des nitrates caractérisant ces différentes sources peuvent être très larges (Kendall et *al.*, 2007) car elles regroupent des environnements variés, soumis à des conditions climatiques et hydrologiques différentes qui ont un impact important sur la nature des nitrates produits. La Figure 65 présente cette gamme de $\delta^{15}N$ et $\delta^{18}O$ retrouvée dans la littérature.

La caractérisation isotopique des différentes sources potentielles de nitrates collectées dans la zone d'étude est fondamentale pour mieux contraindre les gammes attendues pour ces nitrates.

Les résultats des compositions isotopiques des sources potentielles de la zone d'étude sont synthétisés dans le Tableau 28, et sont présentés dans la Figure 70.

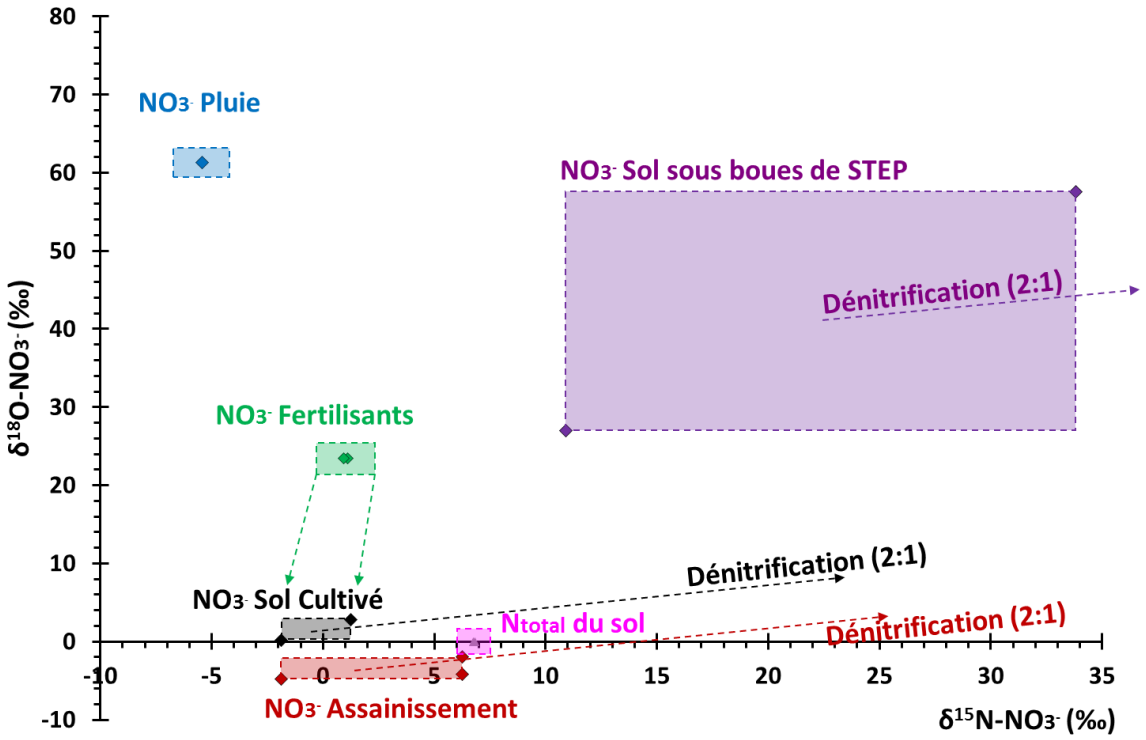


Figure 70 : Compositions isotopiques des sources potentielles de nitrates mesurées sur la zone d'étude.

3.3.1 Les apports atmosphériques

Malgré des concentrations en nitrate faibles (1.42 $mg.L^{-1}$), la quantité annuelle apportée par les précipitations est importante. Le suivi géochimique des précipitations sur la zone d'étude depuis janvier 2016 permet d'estimer un apport en azote atmosphérique d'environ 49 TN/an sur l'ensemble du bassin d'alimentation supposé. Malgré cette quantité importante, l'azote apporté par les pluies est très affecté par les processus biogéochimiques qui s'opèrent dans le sol. Des travaux précédents (Katz et *al.*, 2009 ; Lombardo Associates, 2011) ont montré, qu'en contexte karstique, la quantité d'azote apportée par les précipitations est largement réduite dans le sol (entre 85 % et 95 %). Par conséquent, seule une infiltration concentrée importante via des pertes pourrait permettre la mise en évidence d'une telle signature isotopique à l'exutoire des systèmes karstiques (Panno et *al.*, 2001).

3.3.2 L'azote total des sols

Les échantillons de sols montrent des $\delta^{15}N_{Total}$ de 6.73 ‰ et 6.83 ‰. Ces valeurs sont cohérentes avec les mesures de Briand (2014), qui a mesuré des compositions moyennes d'environ 6.8 ‰ dans des sols du département des Landes. Cet azote total est présent principalement sous forme organique et les nitrates issus de la minéralisation/nitrification de cet azote ne sont pas forcément caractérisés par des compositions isotopiques proches du pool de départ.

3.3.3 Les fertilisants azotés de synthèse

Les fertilisants azotés de synthèse sont apportés en surface du bassin d'alimentation des Sources du Toulon pour la fertilisation des parcelles agricoles. L'épandage de fertilisants inorganique est réalisé plusieurs fois par an. Le procédé de fabrication de ces fertilisants utilise l'azote atmosphérique. La composition isotopique attendue pour ces fertilisants est proche des compositions de l'azote atmosphérique ($\delta^{15}N$ = 0 ‰). Sans la présence du processus de volatilisation de l'ammonium, le nitrate résultant de la minéralisation des fertilisants devrait posséder une signature en $\delta^{15}N_{-NO3^-}$ similaire à la signature initiale, c'est à dire une signature proche de celle mesurée dans ces travaux entre +0.92 ‰ et +1.12 ‰. Dans le cas d'un apport important de fertilisants, la volatilisation de l'ammonium peut engendrer un enrichissement du $\delta^{15}N_{-NO3^-}$ résiduel (Nômmik et *al.*, 1994 ; Högberg, 1997).

Le $\delta^{18}O_{-NO3^-}$ est également contrôlé par le procédé de fabrication qui utilise l'oxygène atmosphérique. La composition isotopique attendue est donc similaire à celle de l'atmosphère ($\delta^{18}O_{-O2}$ = +23.5 ‰). Certains travaux ont confirmé des valeurs similaires, comprises entre +23 ‰ et +25 ‰ (Heaton et *al.*, 2012). Le $\delta^{18}O_{-NO3^-}$ résiduel sera dépendant du processus de nitrification qui va s'opérer dans le sol.

3.3.4 Les sols cultivés avec apport de fertilisants azotés de synthèse

Les gammes de valeurs en $\delta^{15}N_{-NO3^-}$ (entre -1.88 ‰ et -1.25 ‰) et $\delta^{18}O_{-NO3^-}$ (entre +0.17 ‰ et +2.18 ‰) mesurées sont typiques des sols intensément influencés par des apports importants en fertilisants azotés de synthèse ayant un $\delta^{15}N$ initial proche de 0 ‰ (Mariotti, 1982 ; Panno et *al.*, 2001 ; Mayer et *al.*, 2002 ; Sebilo, 2003 ; Liu et *al.*, 2006 ; Xue et *al.*, 2009 ; Puig et *al.*, 2013 ; Briand et *al.*, 2017). Les faibles valeurs en $\delta^{18}O_{-NO3^-}$ mesurées dérivent de la minéralisation de la matière organique et de la minéralisation des fertilisants. La gamme de valeurs mesurée (entre -1.88 ‰ et -1.25 ‰) est inférieure à la valeur théorique minimum attendue dans le cas d'une nitrification bactérienne totale (+2.95 ‰). Ceci implique une nitrification incomplète.

3.3.5 Les sols agricoles avec apport de boues de STEP

Les gammes de valeurs en $\delta^{15}N_{-NO3^-}$ (entre +10.90 ‰ et +33.83 ‰) et $\delta^{18}O_{-NO3^-}$ (entre +26.99 ‰ et +57.54 ‰) mesurées sont plus élevées que pour les autres sources potentielles, permettant une différenciation plus facile de cette source de nitrate. Le processus de traitement des eaux usées par boues activées est basé sur des cycles de nitrification-dénitrification. Ces gammes de valeurs élevées sont caractéristiques des nitrates ayant subi une nitrification ou dénitrification partielle pendant le processus de traitement (Kendall, 1998

; Derse et *al.*, 2007). L'azote organique contenu dans les eaux usées produit de l'ammonium. Une partie de cet ammonium est volatilisée en NH_3. L'ammonium résiduel est alors enrichi en ^{15}N. Après la nitrification de cet ammonium, le nitrate produit est alors enrichi en ^{15}N. Le processus de dénitrification qui opère dans le traitement s'accompagne d'une diminution du taux de nitrates et ainsi d'une augmentation du ^{15}N et ^{18}O dans le nitrate résiduel des boues.

Lorsque ces boues de STEP sont apportées pour fertiliser un sol agricole, un nouveau cycle de nitrification-dénitrification commence, pouvant mener à des valeurs en $\delta^{15}N_{-NO3^-}$ et $\delta^{18}O_{-NO3^-}$ plus enrichies. Ainsi, suivant les processus de traitement des eaux usées et les processus biogéochimiques s'opérant dans le sol, la source « Boue de STEP » peut avoir une large plage de composition isotopique, comme indiquée par la Figure 70, et marque bien les signatures des sols sur lesquels elles sont épandues.

3.3.6 Les rejets d'assainissements individuels

Les concentrations en nitrates sont importantes dans les rejets d'assainissements individuels. Les mesures effectuées sur la zone d'étude montrent des concentrations comprises entre 169.90 $mg.L^{-1}$ et 179.65 $mg.L^{-1}$. Le processus de nitrification est quasiment total comme le montre les faibles concentrations en NO_2^- et NH_4^+ du 22/03/2017, respectivement de 0.047 $mg.L^{-1}$ et 0.026 $mg.L^{-1}$. A cette date, l'échantillon prélevé possède les valeurs en $\delta^{15}N_{-NO3^-}$ et $\delta^{18}O_{-NO3^-}$ les plus enrichies, respectivement de +6.26 ‰ et -2.87 ‰. Pour l'échantillon du 18/11/2017, les concentrations plus importantes en NO_2^- et NH_4^+ (respectivement de 1.08 $mg.L^{-1}$ and 2.25 $mg.L^{-1}$), témoignent d'une nitrification incomplète. A cette date, l'échantillon prélevé possède les valeurs en $\delta^{15}N_{-NO3^-}$ et $\delta^{18}O_{-NO3^-}$ les plus appauvries, respectivement de -1.89 ‰ et -4.77 ‰.

La gamme de valeur obtenue par nos mesures est représentative des rejets d'assainissements individuels et de sa nitrification associée pendant les processus de traitement des eaux usées.

3.4 Origines des sources de nitrates dans les eaux de surface et souterraines

Les compositions isotopiques des eaux de surface et des eaux souterraines sont présentées sur les Figure 71 et Figure 73, puis comparées avec celles des sources potentielles de nitrates. Des flèches, de pente 2:1, illustrant le processus de dénitrification dans le graphique $\delta^{15}N_{-NO3^-}$ - $\delta^{18}O_{-NO3^-}$ sont tracées à chaque extrémité des pôles identifiés de façon à prolonger les zones correspondant à la source initiale de nitrates.

3.4.1 Quelles sources des nitrates dans le compartiment de surface ?

Dans les environnements karstiques, les eaux de surface peuvent participer au soutien du débit des sources via l'infiltration d'eau dans des pertes localisées dans les rivières (Rey et *al.*, 2006 ; Huneau et *al.*, 2013 ; Cholet et *al.*, 2018). L'identification des sources de nitrates est ainsi fortement recommandée dans les eaux de surface et sont à comparer avec celles des eaux souterraines.

Comme montré par la Figure 71, les compositions isotopiques des eaux des rivières Beauronne et Foncroze sont situées entre les deux flèches de dénitrification du pôle « Sol cultivé ». Par conséquent, le compartiment de surface est marqué par une seule source de

nitrates provenant de la nitrification des fertilisants synthétiques dans les sols cultivés. Le décalage des points dans la partie droite du graphique, suivant une droite de pente 0.5, souligne un processus de dénitrification. Ces nitrates mesurés dans le compartiment de surface ont subi une dénitrification plus ou moins avancée. Les valeurs les plus enrichies sont mesurées pendant novembre 2015 (Tableau 25, Figure 72), alors que les valeurs les plus appauvries sont mesurées pendant les crues (Tableau 25, Figure 72). Les nitrates provenant du sol, plus appauvris sont exportés vers les eaux de surface pendant les évènements pluvieux.

Les compositions en $\delta^{18}O_{-NO3^-}$ sont toujours supérieures à 4.00 ‰, ce qui est supérieur à la valeur théorique attendue pour une nitrification totale (3.96 ‰). Cet enrichissement illustre le processus de dénitrification qui affecte les nitrates avant d'être prélevés.

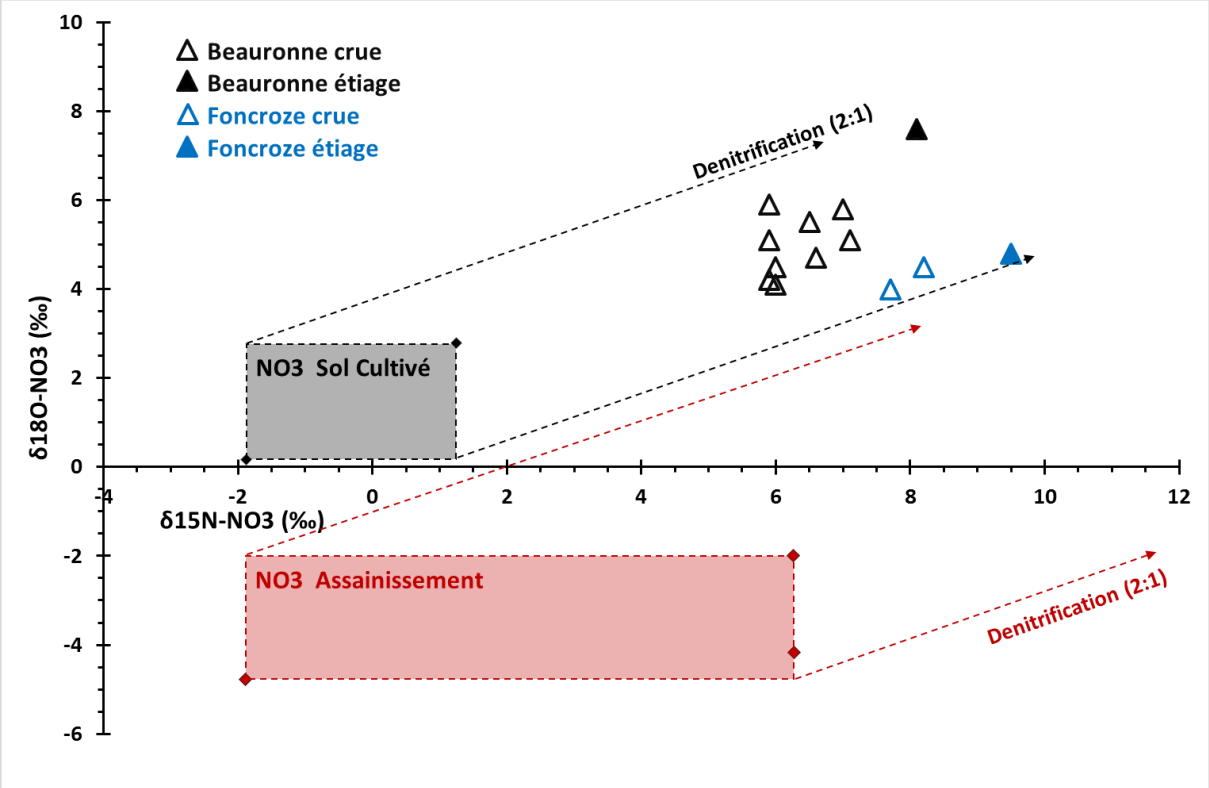


Figure 71 : $\delta^{15}N_{-NO3^-}$ et $\delta^{18}O_{-NO3^-}$ mesurés dans les eaux de surface de la zone d'étude.

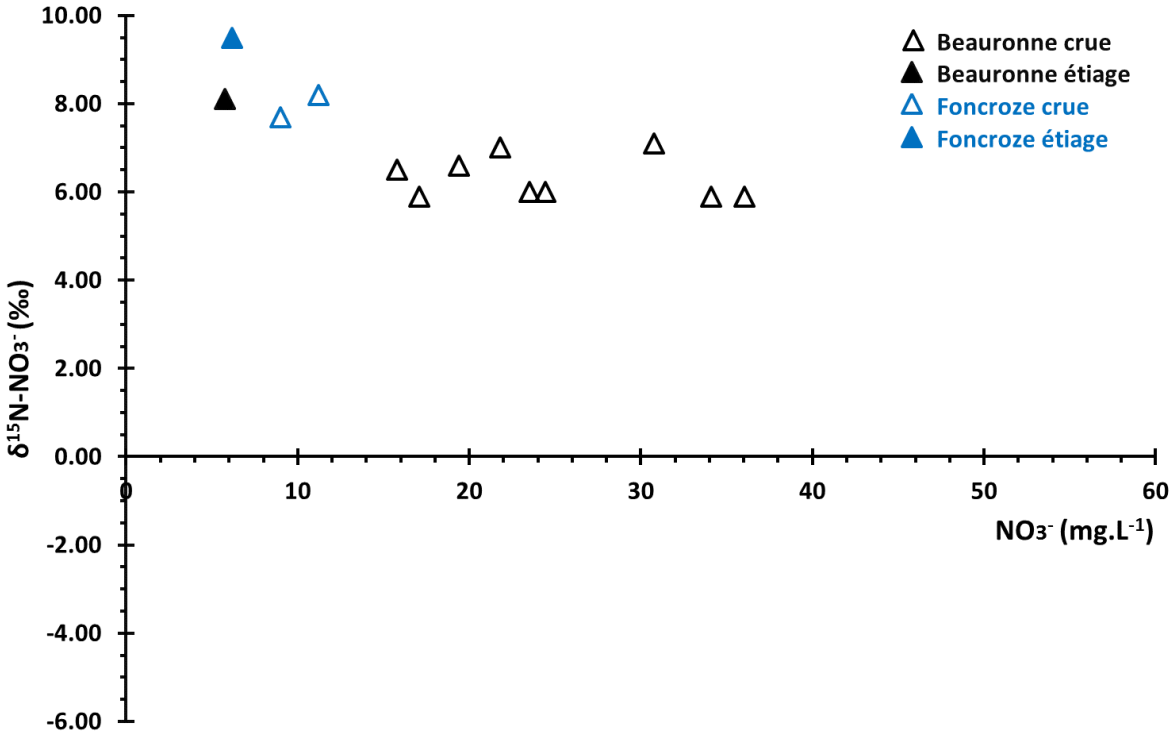


Figure 72 :Concentrations en nitrates et compositions isotopiques de l'azote 15 des nitrates des échantillons du compatiment de surface.

3.4.2 Quelles sources de nitrates dans le compartiment souterrain ?

Les sources prélevées dans le compartiment souterrain proviennent des aquifères karstiques libres du Crétacé supérieur (Turonien, Coniacien, Santonien). Les données du compartiment souterrain sont présentées dans la Figure 73. Les données sont séparées en : (i) les sources localisées en zones rurales, (ii) les sources localisées en zones urbaines.

Pour les sources localisées en zone rurale, les nitrates mesurés semblent provenir de la minéralisation des fertilisants apportés sur les sols cultivés. Un processus de dénitrification plus ou moins poussé est identifié à l'image des valeurs en $\delta^{15}N_{-NO3}^{-}$ et en $\delta^{18}O_{-NO3}^{-}$ s'alignant sur une droite de pente 0.5. Les compositions isotopiques les plus enrichies sont pour la majorité des échantillons mesurées pendant l'étiage (Tableau 24, Figure 73), et les plus appauvries sont mesurées pendant les crues (Tableau 24, Figure 73). Les nitrates provenant du sol, plus appauvris sont exportés vers le compartiment souterrain pendant les évènements pluvieux. Les eaux de crue de janvier 2016 ont pour la majorité des valeurs en $\delta^{18}O_{-NO3}^{-}$ plus appauvries que la valeur théorique attendue pour une nitrification complète (+3.96 ‰), témoignant du transfert rapide des eaux dans le compartiment souterrain.

Concernant les sources localisées en zone urbaine, des signatures isotopiques différentes sont identifiées, indiquant une autre source de nitrates. La signature assainissement semble être la source des nitrates présents dans les émergences localisées en zone urbaine. Comme précédemment, un processus de dénitrification est identifié dans la Figure 73, avec des points qui s'alignent bien le long de la droite de pente 0.5.

La majorité des sources présente la même contamination en fonction des périodes de hautes eaux ou de basses eaux, facilitant considérablement l'interprétation. Deux sources montrent cependant des contaminations différentes : la source de la Roche Pontissac (GW 9) et la source de Fontamiel (GW 10). En période de basses eaux, la signature isotopique des nitrates mesurés sur source de Fontamiel est plus influencé par le pôle « sol cultivé ». Au contraire, pendant les hautes eaux, la signature isotopique des nitrates se modifie, et s'oriente vers un pôle « Rejet domestique » (Figure 73). Le constat est similaire pour la source de la Roche Pontissac, avec pendant la crue de janvier 2016, des compositions isotopiques en $\delta^{15}N\text{-}_{NO3^-}$ et en $\delta^{18}O\text{-}_{NO3^-}$ caractéristique d'une influence de rejet d'assainissement, alors que pendant la crue de mai 2016, ces compositions isotopiques se rapprochent plus du pôle sol cultivé. Ces observations confirment les sources multiples pouvant être mesurées dans l'aquifère, et les potentiels mélanges qui peuvent se réaliser sur une masse d'eau plus importante.

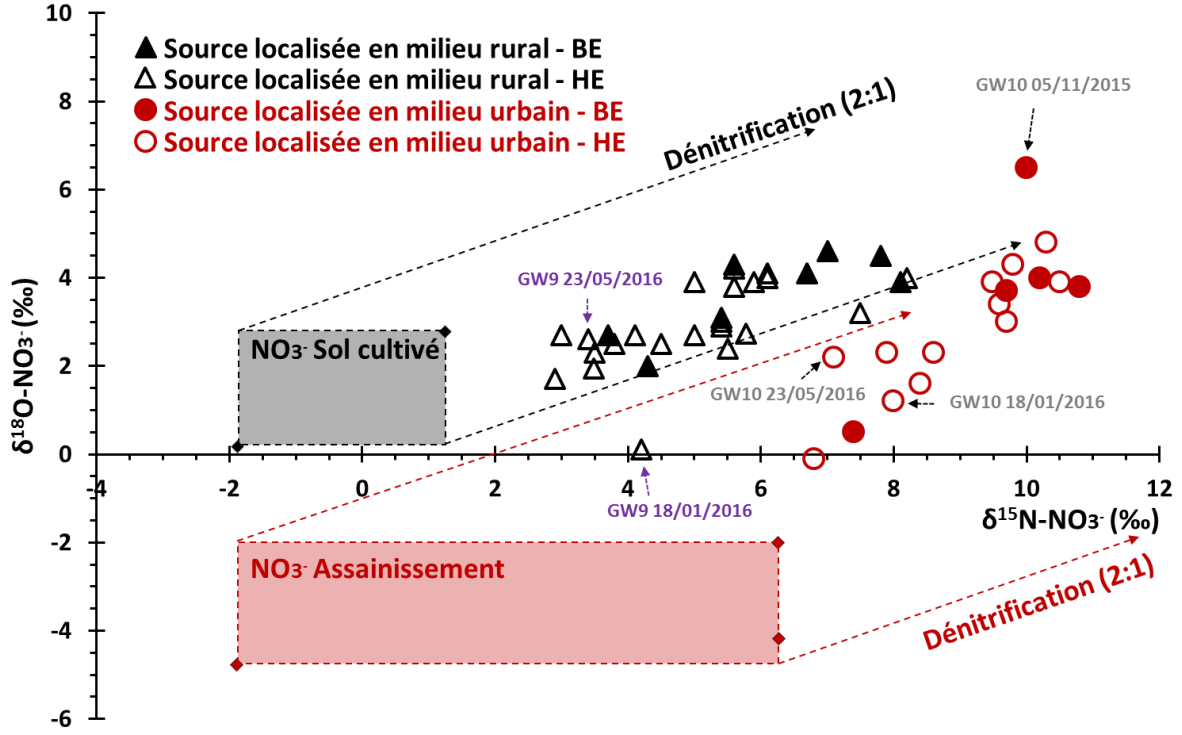


Figure 73 : $\delta^{15}N\text{-}_{NO3^-}$ et $\delta^{18}O\text{-}_{NO3^-}$ mesurés dans les eaux souterraines de la zone d'étude. BE : basses eaux. HE : hautes eaux.

Pour poursuivre le raisonnement, les données sont observées dans le repère NO_3^-/Cl^- = f(Cl^-) (Figure 74). Le comportement chimique des chlorures (Cl^-) dans les eaux naturelles est conservatif car il n'est pas sujet aux procesus physiques, chimiques, ou biologiques. Le rapport NO_3^-/Cl^- peut alors être utilisé pour mettre en évidence des phénomènes de mélanges ou de processus biologiques responsables de la distribution des concentrations en nitrates (Mengis et *al.*, 1999 ; Vitoria et *al.*, 2004 ; Li et *al.*, 2013).

Les engrais chimiques sont généralement caractérisés par des teneurs élevées en azote et faibles en chlorures. Les effluents domestiques et animaux présentent au contraire des concentrations en Cl^- plus élevées et des rapport NO_3^-/Cl^- plus faibles (Liu et *al.*, 2006 ; Li et *al.*, 2013). Le rapprot NO_3^-/Cl^- diminue en cas de dénitrification ou de consommation des nitrates sans modification des concentrations en chlorures.

La Figure 74 confirme les résultats mis en évidence par confrontation des isotopes des nitrates (Figure 73). En effet, les échantillons qui vont tendre vers la partie en bas à droite vont caractériser des contaminations par les nitrates provenant des rejets domestiques alors que ceux localisés dans la partie gauche du graphique vont suggérer une origine des nitrates provenant des engrais minéraux synthétiques.

Les observations faites sur les sources de la Roche Pontissac et de Fontamiel sont également réalisées dans ce graphique. Pour la source de la Roche Pontissac (GW 9), l'échantillon prélevé pendant la crue de janvier 2016 se rapproche du pôle déchets humains, comme ça a pu être mis en évidence dans la Figure 74. Au contraire, l'échantillon de mai 2016 est plus proche du pôle engrais. Les constats sont similaires pour la source de Fontamiel, avec des eaux qui semblent évoluer au fil du cycle hydrologique. En période d'étiage, la signature prépondérante semble être les fertilisants de synthèse alors qu'elle montre une évolution vers le pôle d'assainisement en janvier 2016 et mai 2016.

L'observation des données dans le repère NO_3^-/Cl^- = f(Cl^-) consolide d'une part la validité de l'utilisation des isotopes des nitrates pour identifier les origines des contaminations azotées, mais également la bonne définition des signatures isotopiques des pôles potentiels de nitrates sur le bassin versant du Toulon.

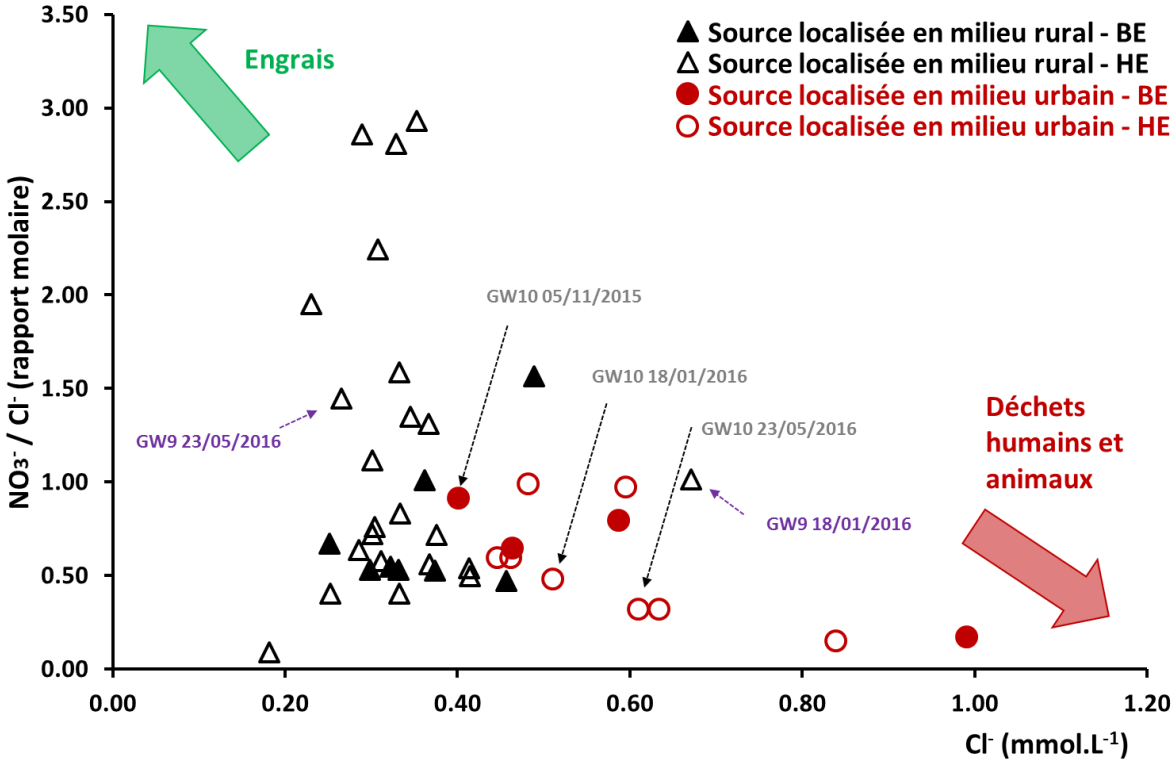


Figure 74 : Concentrations en chlorures et rapports molaires NO_3^- / Cl^- pour les échantillons ds eaux souterraines prélevés pendant ces travaux. BE : basses eaux. HE : hautes eaux.

4. Devenir des nitrates dans l'aquifère karstique multicouche des sources du Toulon

Cette dernière partie s'attache à analyser les compositions isotopiques des nitrates mesurées dans les différents compartiments de l'aquifère : (i) dans l'aquifère karstique du Crétacé supérieur ; (ii) dans l'aquifère karstique du Jurassique supérieur ; (iii) dans les sources du Toulon ; (iv) dans une eau issue d'un mélange de ces deux aquifères. L'aquifère du Jurassique moyen n'est pas analysé car il est encore protégé des impacts anthropiques et présente des concentrations en nitrates nulles.

Cette partie vise à coupler les outils isotopiques et hydrogéologiques pour d'une part préciser le fonctionnement hydrogéologique de l'aquifère karstique multicouche du Toulon, et d'autre part pour évaluer la vulnérabilité de la ressource en eau dans les différents compartiments de l'aquifère.

4.1 Utilisation des isotopes des nitrates pour la précision du fonctionnement hydrogéologique de l'aquifère multicouche du Toulon

A l'instar des sources prélevées dans la partie précédente, les Sources du Toulon intègrent probablement l'ensemble des signatures isotopiques des nitrates mesurés sur leur bassin d'alimentation. Cependant, après analyse, les fertilisants de synthèse, minéralisés dans les sols cultivés, influence de façon prépondérante la signature isotopique mesurée à l'exutoire. (Figure 75). Les compositions isotopiques indiquent que les nitrates ont subi une dénitrification plus ou moins importante. Les autres signatures, telles que celles provenant de l'assainissement individuel ou des boues de station d'épuration, ne semblent pas influencer le signal à l'exutoire, mais sont probablement présentes en proportion plus faible.

Aucune relation avec le débit des sources n'est mise en évidence. Le caractère complexe de l'infiltration en surface, associé aux différentes compositions isotopiques de la source de nitrates, et aux différents pourcentages de contribution des aquifères du Jurassique et du Crétacé supérieur est probablement responsable des difficultés d'interprétation des signaux isotopiques des nitrates.

Les eaux analysées dans l'aquifère du Crétacé supérieur au niveau du forage de la Roussie (B2), présentées dans le Tableau 27 possèdent une signature isotopique proche de la source de nitrates provenant des sols cultivés (Figure 75). La proximité avec la source de nitrates témoigne de la faible dénitrification subie par les nitrates dans ce compartiment souterrain, en lien avec le caractère oxique de l'aquifère du Crétacé supérieur.

Les eaux analysées au niveau du forage de Cornille (B1) présentent un intérêt majeur pour ces travaux. Pour rappel, ce forage est utilisé pour l'agriculture, et capte les aquifères du Turonien et du Jurassique supérieur (Oxfordien). Lors du pompage il est alors possible d'identifier différentes signatures géochimiques en fonction du temps de vidange. Une vidange courte permettra de mobiliser majoritairement des eaux du Turonien, et une vidange plus longue permettra d'accéder à des eaux représentatives de l'aquifère du Jurassique supérieur.

Les deux prélèvements réalisés dans ce forage (le premier après une vidange de 1h30 et le deuxième après une vidange de 3 jours) sont ainsi représentatifs des deux aquifères (Tableau 27). Le premier prélèvement du 05/11/2015 montre des signatures plus importante du Turonien par rapport au Jurasique supérieur, caractérisées par des concentrations en Mg^{2+} faibles (5.69 $mg.L^{-1}$) et des teneurs en nitrates élevées (13.14 $mg.L^{-1}$). Le deuxième, réalisé après une vidange de longue durée, montre une chimie des eaux différente du premier, et est plus représentatif des eaux du Jurassique supérieur. La concentration en Mg^{2+} est cette fois de 21.12 $mg.L^{-1}$ et les nitrates ne sont quasiment plus présents (1.32 $mg.L^{-1}$).Les analyses isotopiques des nitrates mesurées pour ces deux échantillons proviennent d'une même origine (fertilisants de synthèse minéralisés sur un sol cultivé) mais possèdent des signatures différentes. L'eau issue du signal Turonien majoritaire possède des compositions isotopiques plus appauvries que celle issue du signal Jurassique supérieur.

Les eaux du mélange entre les deux aquifères (Figure 75), illustrées par le forage piézomètre P1P localisé sur le site de l'usine de pompage du Toulon (B3) possèdent une signature similaire à celle des Sources du Toulon (GW1).

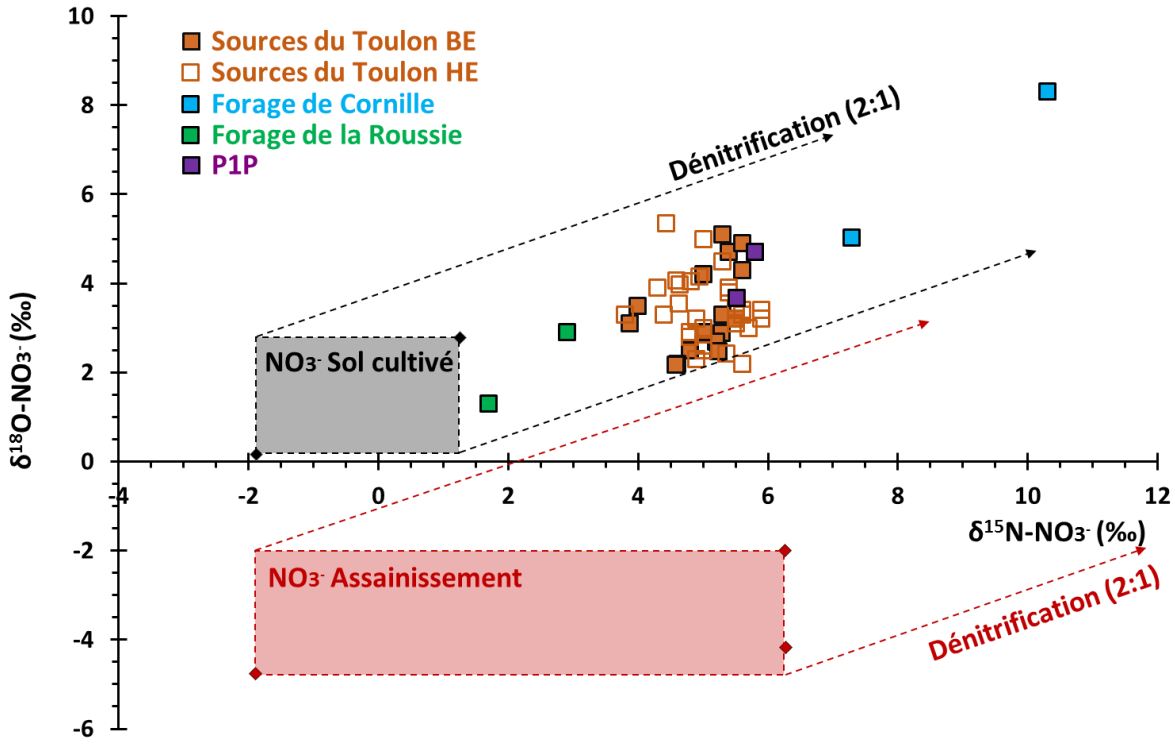


Figure 75 : $\delta^{15}N_{-NO_3^-}$ et $\delta^{18}O_{-NO_3^-}$ mesurés aux Sources du Toulon et dans les forages. BE : basses eaux. HE : hautes eaux.

Les informations apportées par le forage de Cornille (B1) sont importantes pour la compréhension du fonctionnement hydrogéologique de la zone d'étude. Malgré des eaux datées à environ 2800 ans dans l'aquifère du Jurassique supérieur (SHE, 2001), les analyses isotopiques soulignent un impact des fertilisants épandus depuis plusieurs dizaines d'années. L'origine commune des nitrates retrouvés dans le Crétacé supérieur et dans le Jurassique supérieur questionne encore sur le caractère imperméable du Cénomanien et ainsi sur la notion de captivité du Jurassique supérieur. Il est fortement probable que les nitrates retrouvés dans ce dernier proviennent directement du Crétacé supérieur. Des travaux supplémentaires seraient à réaliser pour valider cette hypothèse. Un suivi géochimique en

cours de pompage longue durée pourrait apporter des informations pertinentes sur l'identification des pôles de mélange du Turonien et du Jurassique supérieur, et mieux identifier leur signature isotopique. D'autres forages départementaux captant le Jurassique supérieur pourraient également être investigués pour confirmer ces hypothèses.

Un schéma conceptuel de fonctionnement associé aux transferts d'azote dans l'aquifère multicouche du Toulon est présenté en Figure 76. Il souligne le caractère dénitrifiant de l'aquifère du Jurassique supérieur, et le mélange qui opère entre les différents aquifères. Sur l'aspect quantification 84.3 % des apports azotés proviennent des fertilisants synthétiques (348.53 $T.an^{-1}$ d'après traitement SIG en accord avec les données fournies par la chambre d'agriculture du département de Dordogne), alors que seulement 2.1 % et 1.8 % proviennent des boues de STEP et des rejets d'assainissement. 11.8 % des apports proviennent des précipitations, mais la quasi-totalité est rapidement dégradée dans les premiers cm de sol (Katz et *al.*, 2009 ; Lombardo Associates, 2011). A l'exutoire, les quantités d'azote mesurées annuellement sont assez homogènes d'une année sur l'autre malgré les différences de volumes d'eau mesurés. 40 $T.an^{-1}$ sont exportées en moyenne à travers le système karstique du Toulon (Figure 76), d'après les données fournies par le SSERK'OEIL. La différence de quantité d'azote estimée en surface (413.66 $T.an^{-1}$) et en sortie (40 $T.an^{-1}$) peut être expliquée par la consommation d'azote par les plantes pour leur croissance, et par le processus de dénitrification partiel qui s'opère dans le sol, et qui dégrade une partie des nitrates en N_2.

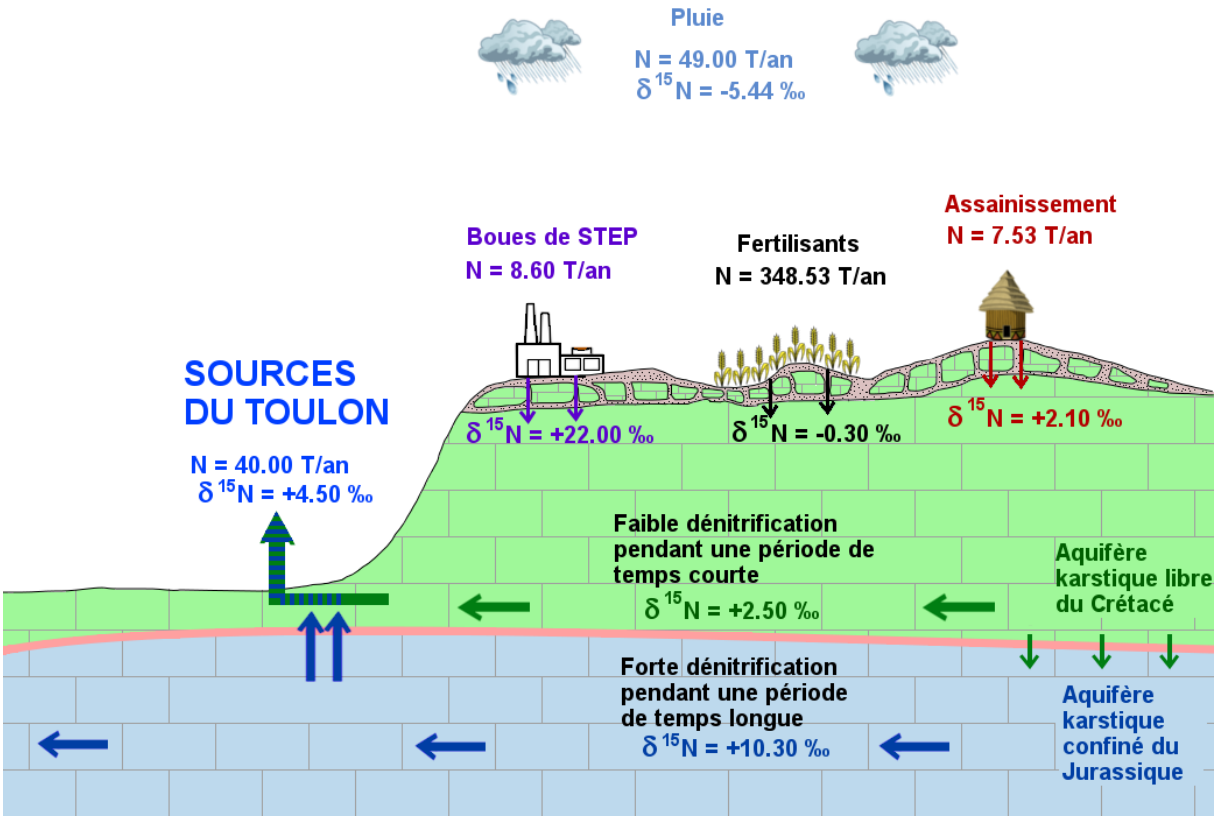


Figure 76 : Schéma conceptuel de fonctionnement du système karstique multicouche du Toulon en lien avec le transfert d'azote, et estimation quantitative des flux d'azote moyens annuels dans l'hydrosystème.

4.2 Utilisation des isotopes des nitrates pour la gestion de la ressource en eau

L'occupation du sol en surface, associé au caractère karstique du massif carbonaté induit une gestion de la ressource en eau adaptée. La présence de formes géomorphologiques typiquement karstiques (dolines, pertes, écoulement en conduit) induit un transfert rapide des eaux et des contaminants de la surface à l'exutoire. Les traçages hydrogéologiques menés sur le terrain (Figure 46) ont montré des vitesses de transit comprises entre 6.4 et 130 $m.h^{-1}$, confirmant le caractère vulnérable des Sources du Toulon.

Les Sources du Toulon sont une ressource en eau potable stratégique et l'évolution croissante des concentrations en nitrates de cet aquifère multicouche en fait une ressource de plus en plus vulnérable. Pour cela, il est nécessaire de surveiller l'évolution des pratiques agricoles et de l'urbanisation. Pour les pratiques agricoles, la surveillance doit s'axer sur : (i) l'implantation des parcelles en lien avec le paysage karstique, (ii) une régulation des apports de fertilisants azotés de synthèse pour minimiser la quantité d'azote exportée vers l'aquifère sous-jacent. Pour l'urbanisation, l'évolution du territoire doit subir une réflexion adéquate en lien avec le paysage karstique. Il serait pertinent d'éviter les zones présentant des points d'infiltrations concentrés.

Du point de vue de la vulnérabilité de la ressource en eau, l'aquifère libre multicouche du Crétacé supérieur possède une faible capacité de dénitrification comme l'ont montré les compositions isotopiques des eaux souterraines. Il correspond à une ressource plus vulnérable aux contaminations de surface.

Les eaux du Jurassique supérieur sont plus anciennes que les premiers apports d'azote anthropique, et pourtant possèdent une signature isotopique des nitrates qui est typique des fertilisants azotés de synthèse. Cependant, le temps de résidence important et les conditions d'écoulement anoxiques permettent une atténuation des concentrations en nitrates par processus de dénitrification. L'aquifère du jurassique supérieur est ainsi moins vulnérable aux contaminations de surface, et possède un rôle épurateur naturel des contaminations azotés. Malgré cela, une surveillance raisonnée doit être mise en place sur cet aquifère pour éviter la dégradation de la qualité de la ressource en eau. En effet, même s'il semble moins vulnérable que l'aquifère du Crétacé supérieur, l'historique des forages de la zone d'étude et ces travaux sur l'isotopie des nitrates ont montré que de l'eau en provenance du Crétacé supérieur pouvait s'infiltrer dans le Jurassique supérieur à travers le Cénomanien. Ainsi, sa notion de protection serait remise en cause, justifiant une foration plus profonde pour capter les eaux du Jurassique moyen.

L'aquifère du Jurassique moyen (Bajocien, Bathonien) ne présente pour le moment pas de trace de nitrates, témoignant de son confinement vis-à-vis des eaux d'infiltration en surface. Une attention particulière doit se faire vis-à-vis de cette masse d'eau. Depuis 25 ans, la multiplication des ouvrages à destination de cet aquifère, et sa possible surexploitation pourrait mettre en péril sa qualité encore protégée, et conduire à une drainance descendante. Par conséquent, une surveillance importante doit également être réalisée par les organismes de santé publique pour veiller au maintien de la qualité de l'eau du Jurassique moyen.

Sur la zone d'étude, les concentrations en nitrates les plus importantes sont mesurées dans la partie Nord là où la rivière Beauronne se perd dans des pertes karstiques ponctuelles et diffuses. Une surveillance particulière devra être mise en place dans ce secteur, tant sur la qualité de l'eau de la Beauronne, que sur la qualité de l'eau des sources karstiques alimentant la Beauronne. Des efforts devront être réalisés sur l'identification du rôle de la Beauronne dans le fonctionnement hydrogéologique des Sources du Toulon.

Les quantités d'azote exportées annuellement à l'exutoire de l'aquifère multicouche du Toulon (Figure 76) sont d'environ 40 $T.an^{-1}$. De par sa faible capacité d'épuration naturelle des contaminations en azote, l'aquifère karstique permet le transfert d'azote anthropique épandu en surface. D'un point de vue du transfert d'azote, les sources karstiques ne doivent ainsi plus être vues comme la fin du continuum. Au contraire, au vu de leur capacité de transfert et des quantités qu'elles exportent de façon concentrée, elles deviennent une source d'azote pour le milieu récepteur. Elles peuvent ainsi causer une dégradation de la qualité de l'eau des rivières, s'illustrant généralement par le développement d'algues et/ou de plantes invasives. Par conséquent, la surveillance de l'évolution des quantités d'azote exportés par les hydrosystèmes karstiques devient un enjeu important pour l'environnement.

5. Conclusion du Chapitre 5 et perspectives

Le premier objectif était d'évaluer la vulnérabilité vis-à-vis des nitrates sur un bassin karstique, tant dans le compartiment de surface que dans le compartiment souterrain. Le deuxième objectif était de combiner les outils isotopiques et hydrogéologiques pour mieux comprendre le transfert et l'évolution des nitrates dans un système karstique multicouche pour une gestion durable de la ressource en eau.

L'analyse des compositions isotopiques des nitrates, couplée aux connaissances du système karstique du Toulon suggèrent deux sources de nitrates sur la zone d'étude : (i) les fertilisants synthétiques minéralisés dans les sols cultivés, (ii) les rejets d'assainissements. Toutes ces sources ont subi une dénitrification plus ou moins poussée avant d'atteindre les points de prélèvements. Sur le bassin d'alimentation des Sources du Toulon, les eaux de surface sont exclusivement contaminés par des nitrates provenant des fertilisants de synthèse. La majorité des sources de la zone d'étude sont également contaminés par des nitrates provenant de la même source, mais certaines sources localisées dans des zones urbaines présentent une signature isotopique d'une contamination par les nitrates par les rejets d'assainissements. Les Sources du Toulon présentent une signature isotopique typique d'une contamination de fertilisants synthétiques.

Nous proposons une réflexion ciblée sur le devenir des nitrates sur un hydrosystème possédant des relations hydrogéologiques complexes, et sur le potentiel de dénitrification dans les différents aquifères. Les analyses réalisées dans les différents compartiments de l'aquifère multicouche du Toulon a permis d'une part de préciser son fonctionnement hydrogéologique via l'identification des communications par drainance descendante à travers le Cénomanien. L'approche proposée dans ce chapitre permet d'apporter des informations pertinentes pour contribuer à la protection et à la gestion durable de la ressource en eau de la zone d'étude. La facilité d'application de l'approche encourage son utilisation dans d'autres systèmes karstiques aux problématiques semblables, permettant ainsi une facilité de comparaison.

L'Annexe 6 : Poster présenté à la conférence Eurokarst sur l'utilisation des isotopes des nitrates présente le poster présenté à la conférence Eurokarst 2018 (Lorette et *al.*, 2018b).

La thématique de la vulnérabilité de la ressource en eau vis-à-vis des contaminations azotées est actuellement au cœur des réflexions internationales. La caractérisation de ces contaminations et de ses origines a permis le développement de méthodologies spécifiques aux aquifères karstiques.

La prochaine étape des réflexions à mettre en œuvre est la mise en commun des connaissances et des compétences des différents acteurs environnementaux pour une meilleure caractérisation de la vulnérabilité de la ressource en eau vis-à-vis des contaminations par les nitrates. Pour la recherche scientifique, cela passe par l'estimation plus précise de bilans d'azote à l'échelle des hydrosystèmes karstiques afin de préciser le rôle du karst dans le transfert d'azote. En complément, les outils isotopiques pourront être mis en application dans le but d'apporter des informations sur le fonctionnement hydrogéologique des systèmes karstiques : infiltration rapide, relation nappe-rivière, vitesse de transfert, etc.

Pour le gestionnaire de la ressource, une méthodologie permettant de caractériser la cartographie de la vulnérabilité des aquifères karstiques vis-à-vis des contaminations par les nitrates est à développer en lien avec les différents acteurs de l'environnement et les scientifiques.

CHAPITRE 6
DEVELOPPEMENT D'UNE APPROCHE POUR LA DETERMINATION DES PERIODES DE VULNERABILITE DU KARST PAR ANALYSE DES SIGNAUX DE TURBIDITE, COD, ET NO_3^-

Le modelé karstique, couplé à l'occupation du sol influencé par les activités anthropiques, est une préoccupation majeure pour la vulnérabilité de la ressource en eau karstique vis-à-vis des contaminations. Les vitesses rapides d'écoulement et le faible temps de résidence dans ces aquifères engendrent une faible capacité d'épuration des contaminants lors de leur transfert vers l'exutoire. Depuis la fin des années 1980, les recherches sur la vulnérabilité des aquifères karstiques ont significativement augmentées. Elles traitent généralement de la vulnérabilité intrinsèque globale par approche cartographique multidisciplinaire, et plusieurs méthodes telles que DRASTIC, GOD, EPIK, RISK, PaPRIKa, COP, ou COP+K ont été développées (Aller et *al.*, 1985 ; Foster, 1987 ; Doerfliger et *al.*, 1999 ; Vias et *al.*, 2006 ; Andreo et *al.*, 2009 ; Kavouri et *al.*, 2011 ; Butscher et Huggenberger, 2009 ; Huneau et *al.*, 2013 ; Marin et *al.*, 2015 ; Ollivier et *al.*, 2019). D'autres travaux utilisent l'analyse des réponses de certains marqueurs de contamination (turbidité, COD, bactériologie) pour évaluer la vulnérabilité spécifique des aquifères karstiques.

Dans les environnements karstiques, les réponses en particules en suspension sont complexes, avec des origines autochtone ou allochtone au système (Massei et *al.*, 2003 ; Valdes et *al.*, 2005 ; Fournier, 2006 ; Fournier et *al.*, 2007 ; Schiperski *al.*, 2015b). Ces origines ont été associées à des processus de transfert dans l'aquifère karstique : (i) une turbidité autochtone indique une remise en suspension des sédiments déposés dans les conduits et les fractures, (ii) une turbidité allochtone est le témoin d'une infiltration provenant depuis la surface.

Les réponses hydrochimiques et particulaires des systèmes karstiques aux évènements pluvieux sont étudiées pour identifier les relations entre l'évolution du signal de turbidité et des arrivées de marqueurs bactériologiques, tels que E.Coli, entérocoques et coliformes totaux. Le signal de turbidité, en lien avec les contaminations fécales est utilisé pour illustrer la vulnérabilité de la ressource (Pronk et *al.*, 2006 ; Pronk et *al.*, 2009 ; Goldscheider et *al.*, 2010). Malgré cette utilisation, une augmentation du signal de turbidité n'est pas toujours accompagnée de contaminations de surface (Dussart-Baptista et *al.*, 2003 ; Pronk et *al.*, 2007, 2009 ; Heinz et *al.*, 2009).

Les traceurs de l'infiltration, tels que les nitrates (NO_3^-) et le carbone organique dissous (COD), sont utilisés pour mettre en évidence l'arrivée d'eau provenant du sol et de la zone non saturée (Batiot et *al.*, 2003a ; Celle-Jeanton et *al.*, 2003 ; Mudarra and Andreo, 2011 ; Mudarra et *al.*, 2011). Dans le cas d'un apport anthropique de nitrates en surface, l'évolution des concentrations de ces deux traceurs à l'exutoire des systèmes karstiques pourrait ne pas être synchrone. Il en découlerait alors une nouvelle information pour la compréhension du fonctionnement de l'aquifère karstique.

L'apport du suivi haute-résolution des paramètres physico-chimiques réalisé aux Sources du Toulon devrait permettre une meilleure identification des variations des paramètres à l'échelle des crues pour préciser le transfert des masses d'eau au sein du système karstique.

Ce chapitre traite de l'analyse de la vulnérabilité spécifique des aquifères karstiques en évaluant les relations et les dynamiques de certains marqueurs de contamination tels que les particules, les nitrates, le carbone organique dissous et les éléments bactériologiques. En milieu karstique, identifier la vulnérabilité temporelle d'une source est fortement lié aux mouvements des différentes masses d'eau l'alimentant.

Dans un premier temps, un rappel de la stratégie mise en place est réalisé. Ensuite, les résultats seront décrits pour identifier temporellement la vulnérabilité de la ressource en eau pour proposer un schéma conceptuel de transfert de particules NO_3^- et COD pendant les crues aux Sources du Toulon. La dernière partie présentera l'implication de l'approche testée en termes de recherche fondamentale et appliquée sur : (i) la caractérisation des relations entre les nitrates et le carbone organique dissous, (ii) la précision des périodes de vulnérabilité vis-à-vis de certains marqueurs de contamination (particules, COD, NO_3^-, bactéries).

1.Les traceurs particulaires

1.1 Définition de la turbidité

La turbidité est un paramètre qui caractérise le « trouble » de l'eau. Ce n'est pas une grandeur physique, comme la salinité, la concentration d'un élément dans l'eau, ou encore la température, mais plutôt une variable qui est plus ou moins directement liée à la concentration en matières en suspension (MES). C'est une mesure optique dont l'unité est le NTU, pour « Nephelometric Turbidity Unit » (unité de turbidité néphélométrique, en français). La mesure de turbidité est très utilisée pour des raisons de commodités, les concentrations des matières en suspension ne pouvant que difficilement être obtenues à un pas de temps fin sur de longues périodes (Massei, 2001).

Les matériaux en suspension peuvent être séparés en deux grands ensembles : les colloïdes, de taille inférieure au micromètre, et les particules (MES) de taille supérieure à 1 µm (allant jusqu'à plusieurs dizaines de µm).

Les matières en suspension (particules diverses, flocs, colloïdes…) jouent un rôle déterminant dans la contamination des eaux potables en raison de la capacité d'adsorption de certains éléments sur le matériel particulaire. Des études ont montré une survie accrue des micro-organismes adsorbés sur les particules (Pommepuy et *al.*, 1992 ; Palmateer et *al.*, 1993), qui se comportent donc comme des vecteurs potentiels de la contamination.

1.1.1 Etude du signal de la turbidité

La présence de sédiments mobiles dans les aquifères karstiques a été reconnu depuis plusieurs décennies (Bretz, 1942). Ils peuvent être utilisés par certains composants peu solubles comme les métaux (Vesper et White, 2003a, 2003b ; Gutierez et *al.*, 2004), les composés organiques hydrophobes (Mahler et *al.*, 1999 ; Sharpe et *al.*, 2004), les bactéries (Mahler et *al.*, 2000 ; Dussart-baptista et *al.*, 2003), ou encore les pesticides (McCarty et *al.*, 1981), pour facilier leur transport en souterrain. Contrairement aux aquifères poreux ou fissurés où l'autofiltration naturelle des sédiments est importante, ils sont mobiles dans l'aquifère karstique et le transport de particules ne se limite pas aux colloïdes. En effet, les vitesses rapides d'écoulement au sein du système induisent un large panel de taille des particules (Gale, 1984 ; Thrailkill, 1989 ; White et White, 1968).

Certaines études se sont intéressées au temps de transport des sédiments jusqu'à l'exutoire pendant les périodes de crue en utilisant la concentration de particules en suspension et la distribution des tailles des particules (Ryan et Meiman, 1996 ; Currens, 1999 ; Atteia et Kozel, 1997 ; Mahler et Lynch, 1999 ; Lacroix et *al.*, 1998 ; Lacroix et *al.*, 2000 ; Drysdale et *al.*, 2001 ; Massei et *al.*, 2001 ; Massei et *al.*, 2003 ; Pronk et *al.*, 2006, 2007 ; Reed et *al.*, 2009 ; Goldscheider et *al.*, 2010). Ces études ont mis en évidence que la concentration en éléments particulaire était corrélée avec l'intensité des crues. Elles ont également permis de montrer l'intérêt de l'analyse des courbes de distribution de la taille des particules permettant ainsi d'approcher le comportement hydrodynamique des colloïdes et des sédiments au sein de l'aquifère karstique.

D'autres études se sont focalisées sur la composition chimique et sur l'origine des sédiments dans les eaux émergeantes à l'exutoire (Atteia et *al.*, 1998 ; McCarthy et Shevenell, 1998 ; Mahler et *al.*, 1998a ; Mahler et *al.*, 1998b ; Mahler et *al.*, 1999 ; Shevenell et McCarthy, 2001 ; Vesper et White, 2003a, 2003b ; Gutierez et *al.*, 2004 ; Herman et *al.*, 2006). Ces recherches ont permis de préciser l'origine des sédiments (exokarstique ou endokarstique) en comparant les particules des exutoires avec celles au niveau des points d'infiltration préférentielle (dolines, pertes).

Un autre champ de recherche s'est intéressé aux transport de bactéries adsorbées sur les sédiments ou les colloïdes (Mahler et *al.*, 2000 ; Dussart-Baptista et *al.*, 2003). Ces études ont montré que les bactéries pouvaient survivre longtemps dans l'environnement et que même pendant les périodes sèches il était possible de retrouver des contaminants transportés par les sédiments. Les échantillons prélevés pendant des évènements pluvieux montrent une augmentation rapide de la concentration en bactéries atteignant parfois celle mesurée en surface. Ceci met en évidence la vulnérabilité des aquifères karstiques. Cependant l'étude de Dussart-Baptista (2003) a prouvé que certains agents bactériens ne répondent pas aux évènements pluvieux et sont toujours présents en concentration non négligeable dans l'aquifère.

Un dernier type d'étude sur la turbidité correspond à l'application des analyses corrélatoires et spectrales initiées par Mangin (1981a, 1981b). Ces recherches ont montré que l'application du traitement du signal aux données de turbidité, conductivité, débit et précipitations permettait d'apporter des informations supplémentaires sur le fonctionnement hydrodynamique des aquifères karstiques (Bouchaou et *al.*, 2002 ; Amraoui et *al.*, 2003 ; Mathevet et *al.*, 2004 ; Valdes et *al.*, 2005 ; Massei et *al.*, 2006, Fournier et *al.*, 2007). En effet, lorsque l'effet mémoire en conductivité est important, il y a stockage et donc baisse de l'énergie, ce qui implique un dépôt de particules. Au contraire, un court effet mémoire en conductivité électrique indique qu'il n'y a pas (ou peu) de stockage, conservation de l'énergie et donc pas de dépôt.

1.2 Stratégie mise en place

La stratégie d'échantillonnage a pour but d'évaluer la vulnérabilité temporelle des Sources du Toulon en lien avec les mouvements des différentes masses d'eau l'alimentant. Pour cela, la stratégie mise en place se base sur le suivi haute-résolution des paramètres physico-chimiques couplé à l'analyse des particules et des éléments bactériologiques. Ces analyses sont réalisées sur les premières crues des cycles hydrologiques : (i) février 2017 pour le cycle hydrologique 2016-2017, (ii) décembre 2017 pour le cycle hydrologique 2017-2018. Les premières crues sont identifiables car elles sont causées par des évènements pluvieux intenses après une longue période d'étiage. Le signal de turbidité, et les concentrations en nitrates et COD sont suivis sur chaque crue et montrent des dynamiques d'évolution semblables sur les premières crues du cycle. La crue de février 2017 est choisie pour évaluer le lien entre les bactéries et les autres paramètres suivis. Du 08/02/2017 au 24/02/2017, 12 échantillons sont prélevés pour analyser la bactériologie et les particules dans l'eau. Une fois le lien établi, il est utilisé pour développer une approche simple et innovante pour déterminer les origines des masses eaux identifiées à l'exutoire des systèmes karstiques, et ainsi préciser les évolutions temporelles de la vulnérabilité de la ressource en eau.

Les données haute-résolution des signaux de NO_3^- et COD des crues étudiées sont normalisées entre 0 et 1 (Equation 11 et 12), puis analysées en les comparant les unes par

rapport aux autres. L'utilisation des données normalisées permet d'étudier les évolutions relatives d'un paramètre en s'affranchissant des unités.

$$NO_{3\ norm}^{-} = \frac{(NO_3^- - NO_{3\ min}^-)}{(NO_{3\ max}^- - NO_{3\ min}^-)}$$

Equation 11

$$COD_{norm} = \frac{(COD - COD_{\min})}{(COD_{max} - COD_{\min})}$$

Equation 12

En comparant les données normalisées de débits et de concentration en sédiment sur un épisode de crue dans une rivière, Williams (1989) décrit différents scénarios de transport des phases solides et dissoutes. Valdes et *al.*, (2005), Fournier et *al.*, (2007), et Schiperski et *al.*, (2015b) utilisent des données normalisées sur des chroniques de turbidité et de conductivité électrique en milieu karstique pour mettre en évidence des processus hydrosédimentaires : (i) dépôts de sédiments dans les conduits karstiques, (ii) remise en suspension de particules déposées précédemment liés au transfert de pression dans l'aquifère karstique, (iii) des transferts directs depuis la surface.

L'application sur des traceurs de l'infiltration (NO_3^-, COD) doit permettre de décrire différents processus d'infiltration et d'écoulement en milieu karstique sur un bassin versant à influence agricole.

2. Analyse des éléments particulaires et des traceurs de l'infiltration pour la caractérisation de la vulnérabilité de la ressource en eau

2.1 Variabilité géochimique

Le suivi haute-résolution des paramètres hydrodynamiques (débit, pluie) et hydrochimiques (turbidité, carbone organique dissous, nitrate) permet d'extraire les données des crues de février 2017 et décembre 2017 (Figure 77). Le Tableau 29 synthétise les données enregistrées.

Tableau 29 : Statistiques descriptives des paramètres hydrodynamiques, hydrochimiques et bactériologiques mesurées pendant les crues de février 2017 et de décembre 2017. n correspond au nombre de valeurs mesurées. σ correspond à l'écart type. CV correspond au coefficient de variation, exprimé en %.

Crue		Q ($L.s^{-1}$)	Turbidité (NTU)	NO_3^- ($mg.L^{-1}$)	COD ($mg.L^{-1}$)	E.Coli (UFC / 100 mL)	Coliformes totaux (UFC / 100 mL)	Entérocoques (UFC / 100 mL)
Février 2017	n	3600	2592	4388	4388	12	12	12
	Mean	386	1.89	14.93	0.70	80	147	21
	Min	277	0.70	12.06	0.18	10	20	2
	Max	511	3.95	20.03	1.30	300	600	54
	σ	51	0.51	2.88	0.39	88	155	16
	CV (%)	13	27	19	55	110	105	73
Décembre 2017	n	2592	2592	4320	4320	-	-	-
	Mean	496	5.15	14.58	1.66	-	-	-
	Min	317	0.36	10.84	0.17	-	-	-
	Max	617	8.37	19.12	2.30	-	-	-
	σ	73	1.78	2.19	0.74	-	-	-
	CV (%)	15	35	15	45	-	-	-

2.1.1 Crue de février 2017

Du 1er février 2017 au 8 février 2017, un évènement pluvieux de 51.4 mm engendre une augmentation de débit aux Sources du Toulon (Figure 77A). Le débit précédent la crue était d'environ 300 $L.s^{-1}$, ce qui est caractéristique d'un débit de basses eaux sur ce système. La faible intensité pluvieuse de l'évènement engendre une augmentation lente du débit (temps de montée de crue de 6 jours).

Le débit maximum est mesuré à 511 $L.s^{-1}$ le 08/02/2017. Associée à cette augmentation de débits, les paramètres hydrochimiques et particulaires évoluent (Figure 77A). La turbidité présente une faible variation, avec des minimum et maximum respectifs de 0.70 NTU et 2.95 NTU. Quatre augmentations sont observées pendant cette crue : trois pendant la montée de crue, et une pendant la décrue.

Les concentrations en NO_3^- et le COD augmentent pendant la crue de février 2017 (Figure 77A). Les concentrations moyennes en NO_3^- et COD sont respectivement de 14.93 $mg.L^{-1}$ et 0.70 $mg.L^{-1}$, avec des minimum respectifs de 12.06 $mg.L^{-1}$ et 0.18 $mg.L^{-1}$; et des maximum respectifs de 20.03 $mg.L^{-1}$ et 1.30 $mg.L^{-1}$. Ces paramètres ne présentent pas la même dynamique d'évolution sur l'évènement de crue de février 2017.

Le COD présente une évolution en trois étapes : (i) une augmentation lente du 04/02/2017 au 10/02/2017, une augmentation rapide du 10/02/2017 au 13/02/2017, (iii) une augmentation lente du 13/02/2017 au 20/02/2017.

L'évolution des concentrations en NO_3^- est également caractérisée par 3 étapes : (i) une augmentation lente du 04/02/2017 au 10/02/2017, (ii) une stabilisation des concentrations entre le 10/02/2017 et le 15/02/2017, (iii) une augmentation rapide du 15/02/2017 au 20/02/2017.

2.1.2 Crue de décembre 2017

La crue de décembre 2017 (Figure 77B) est un bon exemple de crue de reprise hydrologique. Du 10 décembre 2017 au 15 décembre 2017, deux évènements pluvieux répartis sur 6 jours engendrent deux augmentations de débit à l'exutoire du système karstique du Toulon (Figure 77B). Le premier pic est associé au premier évènement pluvieux de 50.4 mm sur 2 jours. Ces précipitations intenses entrainent un temps de montée de 2 jours des débits. Ils augmentent de 315 $L.s^{-1}$ le 10/12/2017 à 590 $L.s^{-1}$ le 12/12/2017. La deuxième augmentation de débits est consécutive à des précipitations moins intenses, avec un cumul total de 30.2 mm étalé sur 4 jours. Elle présente une augmentation de 90 $L.s^{-1}$ entre le 14/12/2017 et le 15/12/2017, pour atteindre un débit maximal de 615 $L.s^{-1}$. L'arrêt des précipitations permet d'initier la décrue avec une stabilisation des débits à environ 400 $L.s^{-1}$.

Associé à ces augmentations de débits, le signal de turbidité croit également avec deux principaux pics observés. Le premier pic est mesuré pendant la montée de crue. Les valeurs évoluent de 0.36 NTU le 10/12/2017 à 3.88 NTU le 11/12/2017. Une deuxième augmentation plus importante est mesurée entre le 13/12/2017 et le 16/12/2017, avec des valeurs respectives de 2.58 NTU et 8.37 NTU (Figure 77B).

Les concentrations moyennes en NO_3^- et COD sont respectivement de 14.58 $mg.L^{-1}$ et 1.66 $mg.L^{-1}$, avec des minimum respectifs de 10.84 $mg.L^{-1}$ et 0.17 $mg.L^{-1}$; et des maximums respectifs de 19.12 $mg.L^{-1}$ et 2.30 $mg.L^{-1}$. Comme pour la crue de février 2017 (Figure 77BA), les évolutions des concentrations en COD et NO_3^- sont complexes pour la crue de décembre 2017 (Figure 77B) et présentent trois pentes distinctes.

Pour les concentrations en COD, trois évolutions se distinguent (Figure 77B) : (i) une augmentation lente du 11/12/2017 au 15/12/2017, (ii) une augmentation rapide du 15/12/2017 au 17/12/2017, (iii) une augmentation lente du 17/12/2017 au 22/12/2017.

Pour les concentrations en NO_3^-, trois évolutions se remarquent également (Figure 77B) : (i) une augmentation rapide du 11/12/2017 au 15/12/2017, (ii) une quasi-stabilisation des concentrations entre le 15/12/2017 et le 22/12/2017, (iii) une augmentation rapide du 22/12/2017 au 27/12/2017.

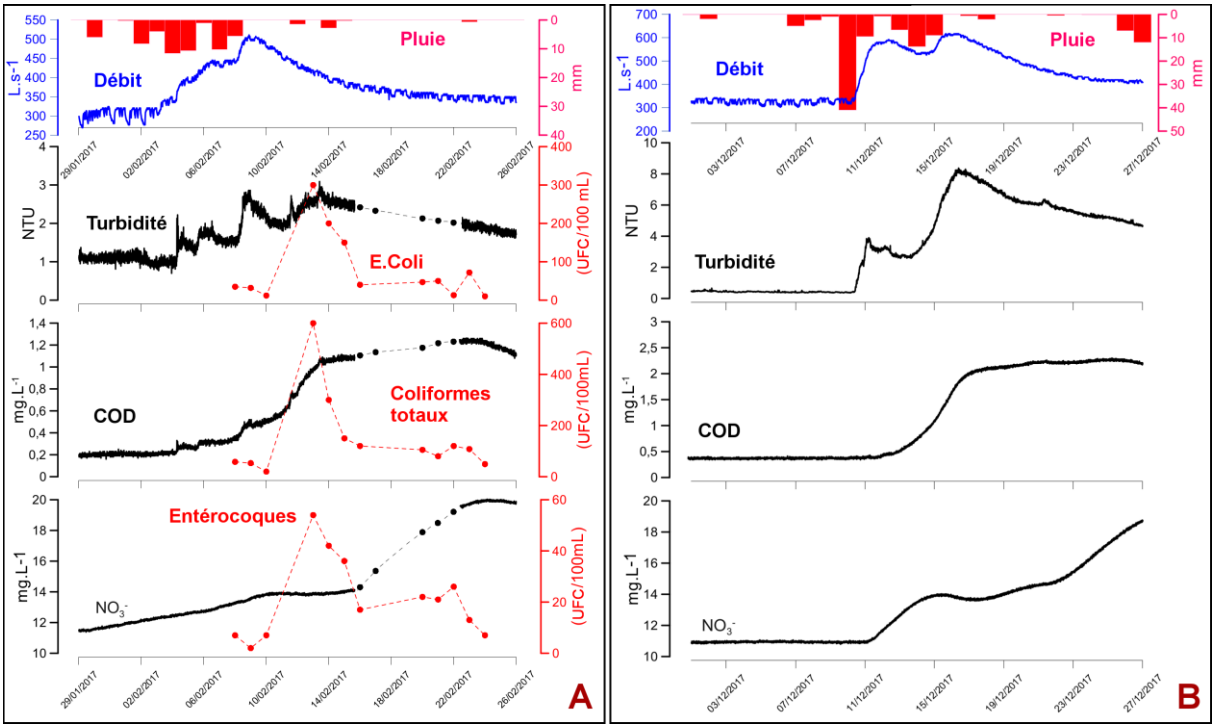


Figure 77 : A) Evolution temporelle des débits, des paramètres hydrochimiques, et des éléments bactériens pendant la crue de février 2017. B) Evolution temporelle des débits, et des paramètres hydrochimiques pendant la crue de décembre 2017.

2.2 Analyse des données normalisées

Les données normalisées entre 0 et 1 sont utilisées pour étudier l'évolution relative d'un paramètre. L'analyse des données normalisées est réalisée sur les données de $NO_3^-{}_{norm}$ et COD_{norm} pour les deux crues présentées précédemment.

Les crues de février 2017 et décembre 2017 présentent une tendance similaire vis-à-vis de la comparaison des données de $NO_3^-{}_{norm}$ vs COD_{norm} (Figure 78A, Figure 78B). Le début de la crue se caractérise par une pente inférieure à 1 ($\alpha<1$). Cela signifie que l'augmentation relative de NO_3^- est plus importante que celle du COD. Un changement de pente opère plus tard pendant la crue, avec une pente qui devient supérieure à 1 ($\alpha>1$). Cela signifie que l'augmentation relative de COD est plus importante que celle de NO_3^-. Enfin, la pente redevient inférieure à 1.

Les différentes pentes mises en évidence à partir de l'étude des données normalisées de $NO_3^-{}_{norm}$ et COD_{norm} illustrent la dynamique différente de ces deux paramètres. Elles témoignent de deux masses d'eaux distinctes, toutes deux à relier avec des processus d'infiltration. Les analyses complémentaires sur les éléments bactériens et sur les éléments particulaires, menées pendant la crue de février 2017, doivent permettre de préciser l'origine des masses d'eau identifiées.

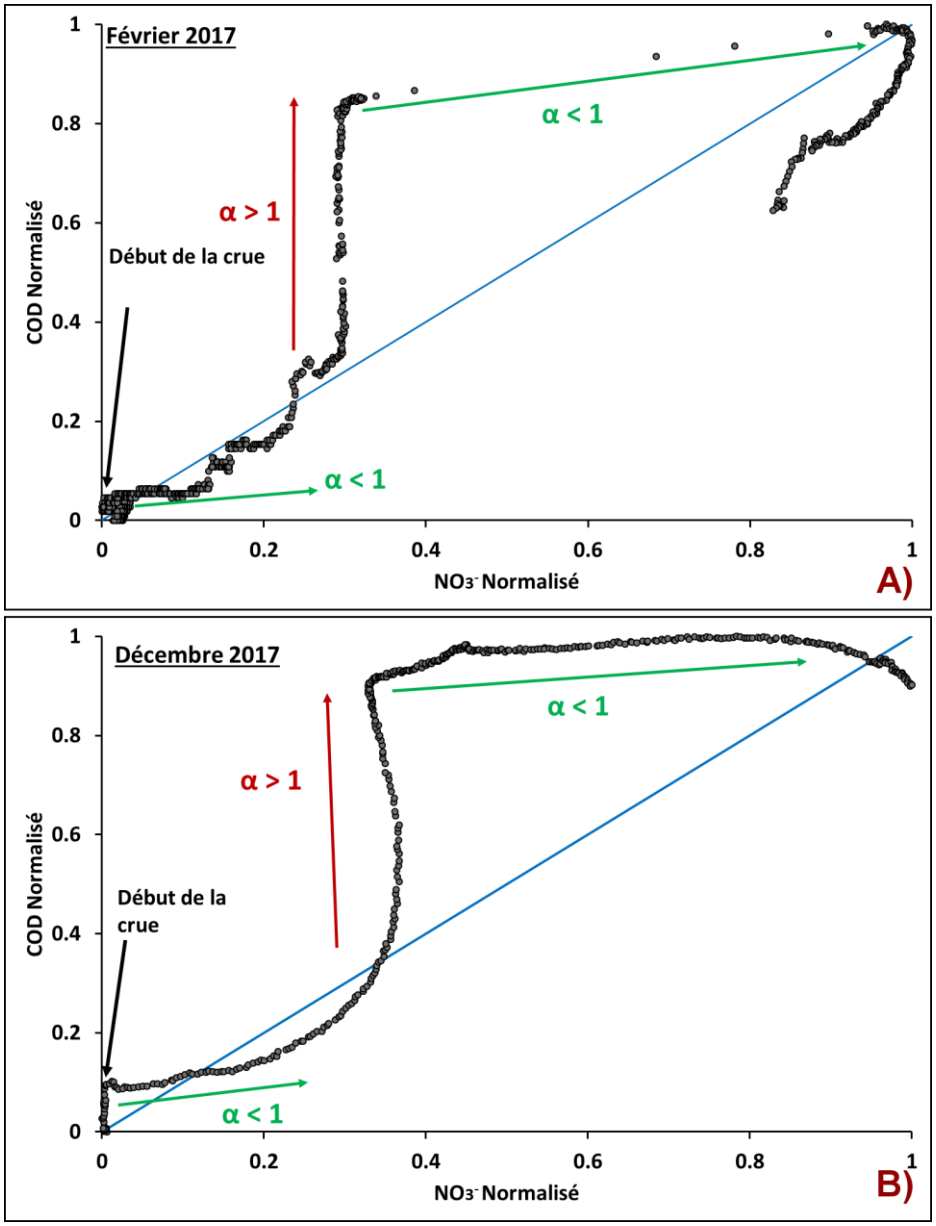


Figure 78 : A) $NO_3^-{}_{norm}$ vs COD_{norm} pendant la crue de février 2017. B) pendant la crue de décembre 2017.

2.3 Analyse des particules en suspension et des éléments bactériens

2.3.1 Distribution de taille des particules

Lors de la crue de février 2017, les particules de taille supérieures à 100 µm dominent de 91 % le 14/02/2017 à 48 % le 23/02/2017 (Figure 79). Pendant la montée de crue, le pourcentage de particules inférieures à 100 µm est très faible. Après le pic de crue, le pourcentage de particules de cette taille en faveur des particules plus fines.

A partir du 14 février 2017, l'échantillon prélevé témoigne du transfert d'une nouvelle masse d'eau. Cette masse d'eau est caractérisée par une augmentation de la proportion des particules fines vis-à-vis des particules grossières. L'arrivée de cette nouvelle masse d'eau est

confirmée par l'augmentation du signal de turbidité et de la concentration en COD, et de la stagnation de la concentration en NO_3^- (Figure 77).

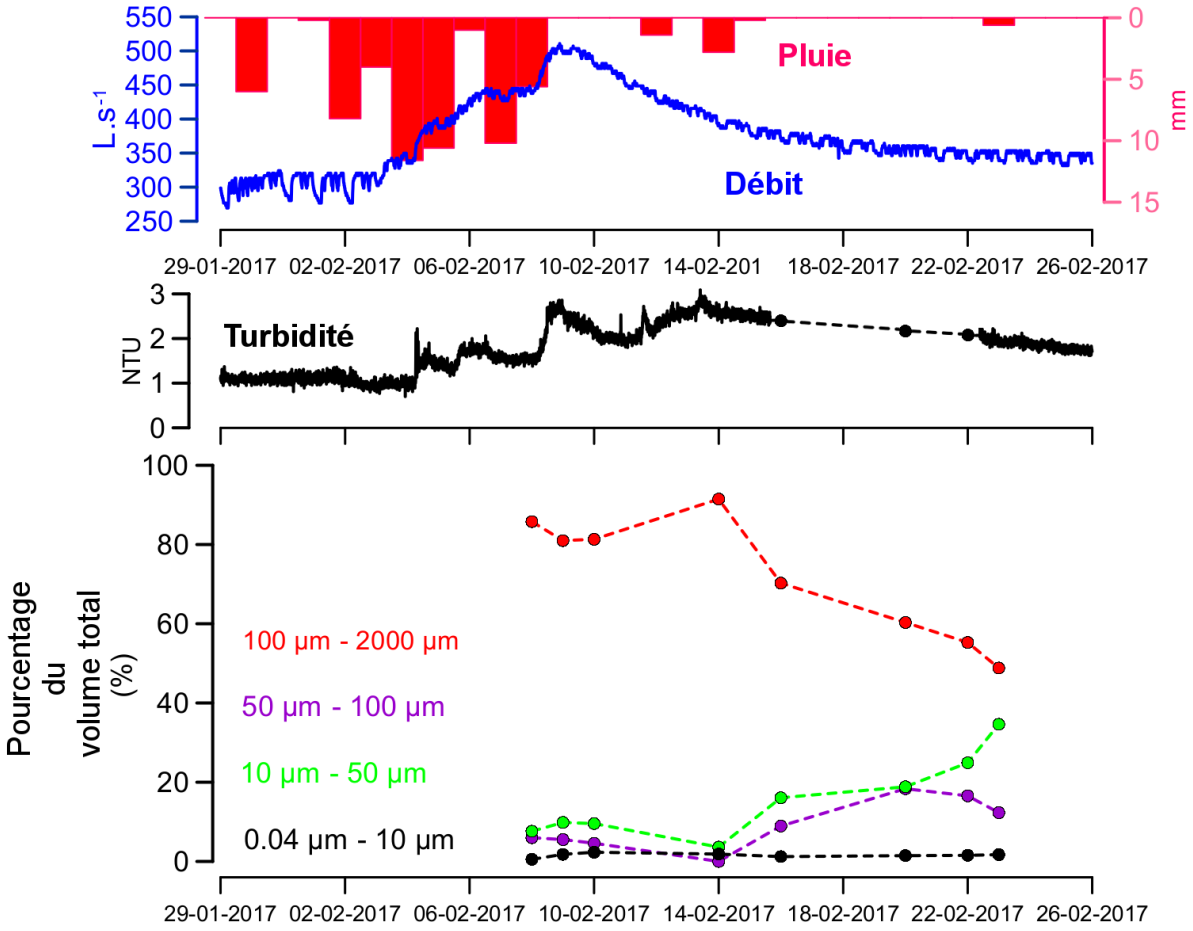


Figure 79 : Evolution du débit, de la turbidité et de 4 classes de distribution de taille de particules aux Sources du Toulon pendant la crue de février 2017.

2.3.2 Caractérisation des particules au microscope électronique à balayage

La caractérisation de la nature des particules aide à distinguer les particules autochtones des particules allochtones. Un microscope électronique à balayage couplé à une microsonde est utilisé pour visualiser les particules et définir leur nature.

Pendant la crue de février 2017, les particules s'écoulant pendant la montée de crue sont de taille supérieure à 100 µm et principalement composées de particules minérales comme du quartz (Figure 80a) et de la calcite (Figure 80b, Figure 80c). Cela correspond à la composition de la roche encaissante et témoigne d'une origine autochtone des particules.

Les particules de taille inférieure à 100 µm sont principalement composées de particules organiques telles que des débris végétaux (Figure 80f), des flocs organo-minéraux (Figure 80d), ou des colonies bactériennes adsorbées sur des débris végétaux (Figure 80e). La nature organique des particules témoigne de l'origine allochtone des particules identifiées pendant l'arrivée de la nouvelle masse d'eau.

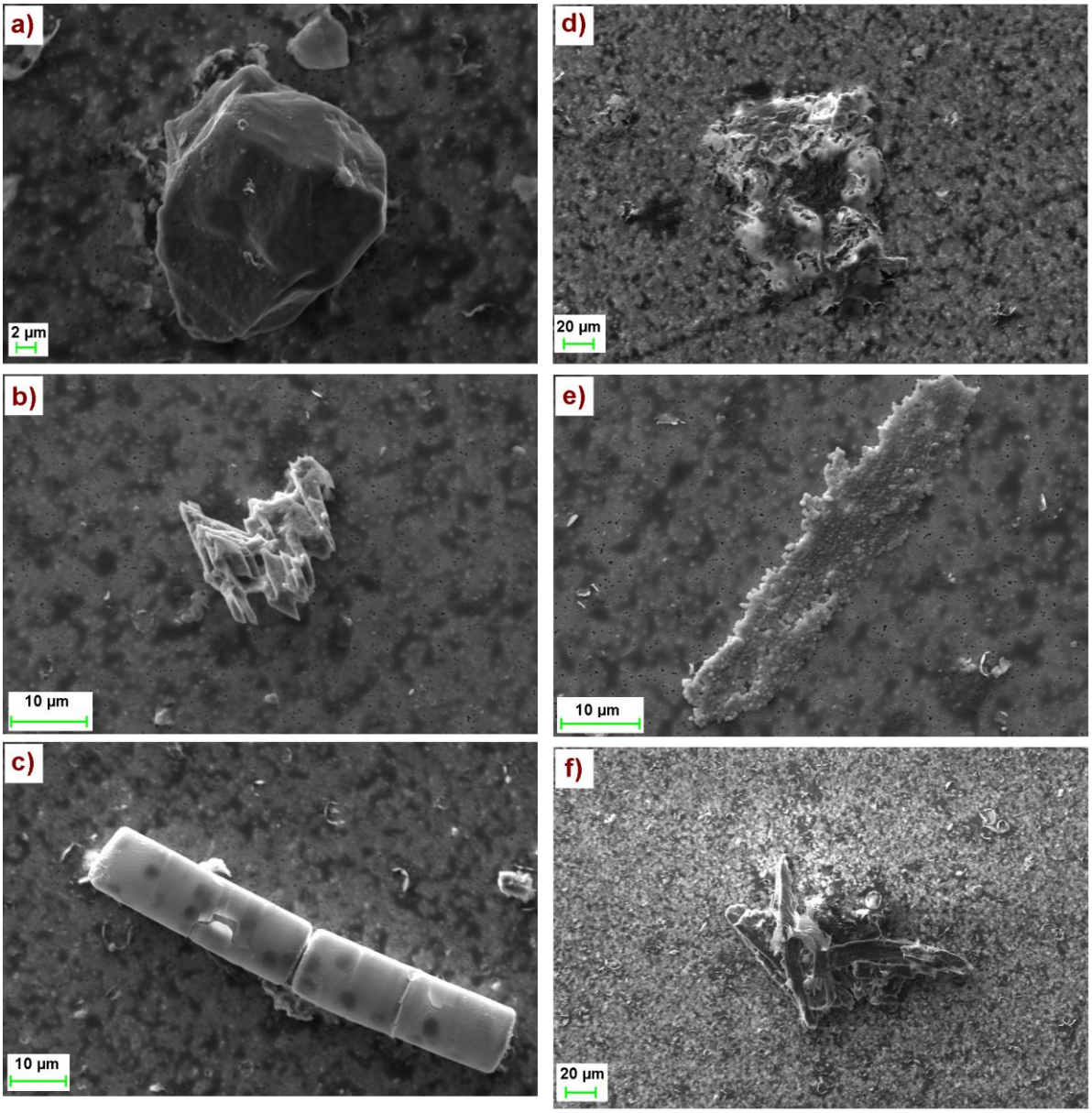


Figure 80 : Images obtenues après analyse au microscope electronique à balayage des échantillons prélevés aux Sources du Toulon pendant la crue de février 2017. a,b,c : particules minérales, respectivement quartz, calcite, et foraminifère en calcite. d,e,f : particules organiques, respectivement flocs organo-minéral, colonie bactérienne sur un débris végétal, débris végétal.

2.3.3 Eléments bactériologiques

Les concentrations en bactéries mesurées aux Sources du Toulon sont dans les gammes des valeurs usuelles rencontrées dans les sources karstiques, à l'image des travaux de Pronk et *al.*, (2007, 2009), Heinz et *al.*, 2006, Bicalho et *al.*, (2012), Bucci et *al.*, 2015 , ou Ender et *al.*, 2018 (Tableau 30).

Hors période de crue, les valeurs de bactériologie sont généralement comprises entre 0 et 40 UFC/100 mL pour E.Coli, entre 2 et 5 UFC/100 mL pour les entérocoques, d'après les données recueillies par l'Agence Régionale de la Santé (ARS). Pendant ces périodes, les faibles teneurs peuvent probablement être expliquées par l'activité biologique qui vit dans la

vasque de l'Abîme du Toulon. Plusieurs espèces de petits poissons ont été observées lors de plongées pendant ces travaux.

Dans le cadre de ces travaux, seule la crue de février 2017 a pu être suivie en bactériologie par des prélèvements quotidiens.

Tableau 30 : Concentrations en bactéries mesurées dans plusieurs aquifères karstiques.

Source	E. Coli (UFC / 100 mL)		Coliformes totaux (UFC / 100 mL)		Entérocoques (UFC / 100 mL)		Référence
	Min	Max	Min	Max	Min	Max	
Source AB	-	-	0	794	0	1216	Bucci et *al.* , (2015)
Source PB	-	-	0	895	0	740	Bucci et *al.* , (2015)
Source FC	-	-	0	280	0	1456	Bucci et *al.* , (2015)
Source Moulinet	0	1088	14	8680	0	480	Pronk et *al.* , (2007, 2009)
Source Cossaux	0	183	2	2150	0	123	Pronk et *al.* , (2009)
Source du Lez	-	-	26.2	2420	-	-	Bicalho et *al.* , (2012)
Source de Lirou	-	-	13.5	2420	-	-	Bicalho et *al.* , (2012)
Source Fleurette	-	-	60.2	2420	-	-	Bicalho et *al.* ,(2012)
Source Gallusquelle	0	7000	0	35000	-	-	Heinz et *al.* , (2006)
Source CSP1	0	30	-	-	-	-	Ender et *al.* , (2018)
Source KS2	250	>2420	-	-	-	-	Ender et *al.* , (2018)
Sources du Toulon	**0**	**930**	**0**	**2000**	**0**	**250**	**ADES eau France**
Sources du Toulon - Crue Février 2017	**10**	**300**	**20**	**600**	**2**	**54**	**Thèse Guillaume LORETTE**

Pendant la crue de février 2017 (Figure 77A), la valeur maximale d'E.Coli mesurée est de 300 UFC/100mL avec une valeur minimale de 10 UFC/100mL et une moyenne de 80 UFC/100mL. La valeur maximale est mesurée le 13/022017, soit 4 jours après le pic de débit. La valeur minimale est mesurée à la fin de la crue, le 24/02/2017.

La valeur maximale en coliformes totaux mesurée est de 600 UFC/100mL, avec des valeurs minimales de 20 UFC/100mL et une valeur moyenne de 146 UFC/100mL, respectivement (Figure 77A). La valeur maximale est également mesurée le 13/02/2017. La valeur minimale est mesurée le 10/02/2017, soit 1 jours après le pic de débit.

Le nombre d'entérocoques est le moins important comparé à ceux d'E.Coli et des coliformes totaux. La valeur maximale mesurée est de 54 UFC/100mL, avec des valeurs minimales de 2 UFC/100mL et une valeur moyenne de 21 UFC/100mL. La valeur maximale est mesurée le 13/02/2017. La valeur minimale est mesurée le 09/02/2017, soit le jour du pic de débit.

Les augmentations de concentrations en bactéries se produisent de façon concomitante avec l'arrivée de particules d'origine allochtone, et de l'augmentation de la concentration en COD (Figure 77A). L'approche proposée ici est ainsi efficace pour identifier le lien entre l'arrivée de bactéries et l'évolution des signaux naturels pendant les crues.

L'analyse de ces relations témoigne de l'arrivée d'une nouvelle masse d'eau à l'exutoire du système karstique du Toulon.

2.4 Schéma conceptuel de transfert de particules, COD, NO_3^- et bactéries pendant les crues aux Sources du Toulon

L'approche proposée dans ce chapitre permet de décrire plusieurs paramètres comme dégradant pour la qualité de la ressource en eau : (i) les particules en suspension présents dans l'eau, (ii) le carbone organique dissous, (ii) les bactéries, (iv) les nitrates. La crue de février 2017 permet de mieux comprendre les relations entre ces paramètres. Un synoptique d'utilisation de la méthode d'interprétation est proposé en Figure 81, permettant la réalisation d'un schéma conceptuel (Figure 82). Il permet l'identification de plusieurs masses d'eau témoignant de plusieurs types de vulnérabilité :

- **une remise en suspension des particules déposées dans le réseau noyé** (Figure 82), illustrée par une augmentation singulière du signal de turbidité pendant la montée de crue. Les particules associées à cette évolution du

signal sont minérales (quartz, calcite) et de taille supérieur à 100 µm. Ces particules sont à associer à une origine autochtone et ne transportent pas de contamination fécales. La faible variation des autres paramètres hydrochimiques (NO_3^-, COD) confirme l'origine d'une masse d'eau localisée dans le réseau de drainage de la zone noyée ;

- **l'infiltration concentrée d'une masse d'eau en provenance de la surface** (Figure 82), illustrée par une augmentation conjointe de bactériologie, de COD et de la turbidité. Malgré une diminution de l'énergie au sein du système karstique (décrue) une augmentation de la turbidité est enregistrée. Les particules analysées correspondent à des particules organiques (débris d'algues, flocs organo-minéraux, colonies de bactérie adsorbée sur des débris végétaux), et de taille comprise entre 50 et 100 µm. Ce type de particule, de provenance allochtone, confirme l'origine de surface de la nouvelle masse d'eau identifiée. Dans le diagramme $NO_3^-{}_{norm}$ vs COD_{norm}, l'arrivée de cette masse d'eau se traduit par une pente $\alpha > 1$;
- **l'infiltration diffuse à travers la zone non saturée de l'aquifère** (Figure 82), illustrée pendant la décrue par une augmentation de la concentration en NO_3^- indépendamment d'une évolution de COD, et d'une diminution de la concentration en bactéries et du signal de turbidité. Les particules associées à cette masse d'eau sont minérales, et la proportion de particules de taille comprise entre 50 et 100 µm augmente. Elles sont d'origine autochtone au système karstique. Dans le diagramme $NO_3^-{}_{norm} - COD_{norm}$, l'arrivée de cette nouvelle masse d'eau s'identifie par une pente $\alpha < 1$.

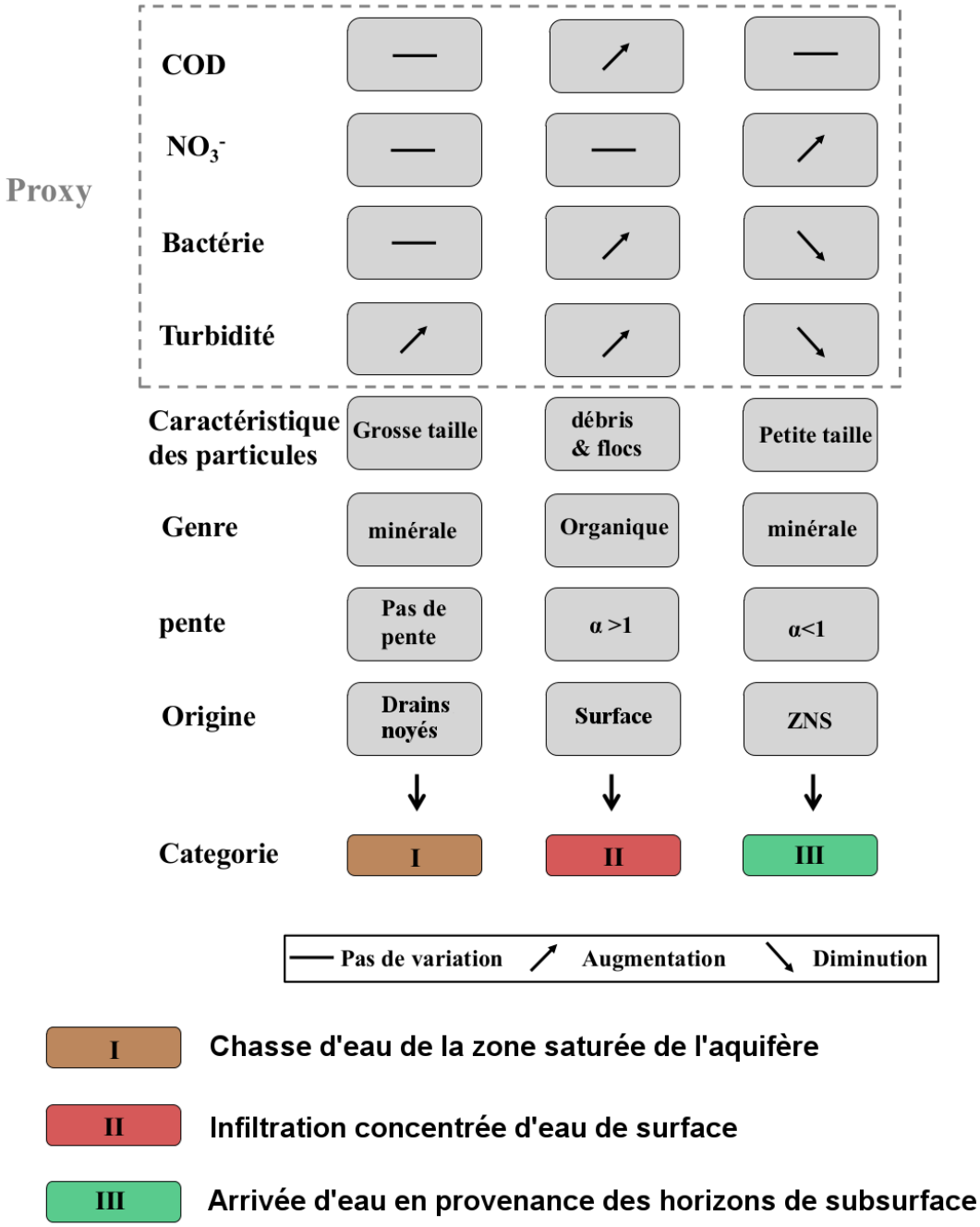


Figure 81 : Synoptique d'utilisation de la méthode d'interprétation proposée dans ces travaux.

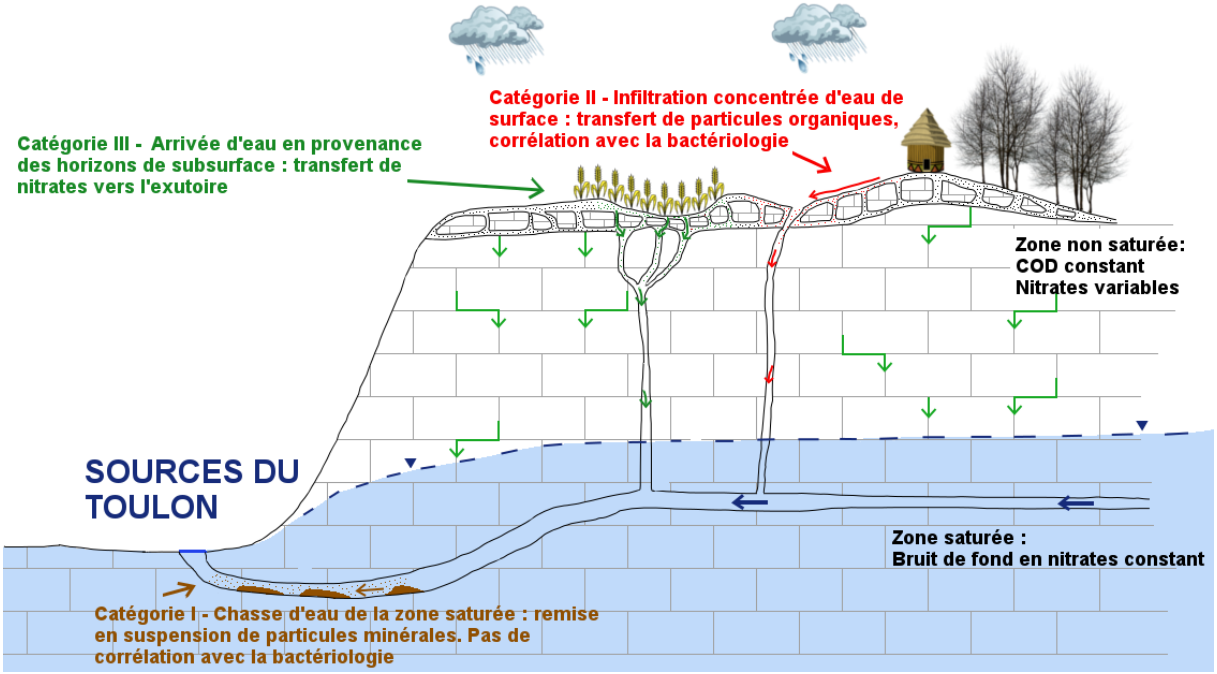


Figure 82 : Schéma conceptuel illustrant la vulnérabilité du système karstique du Toulon en lien avec la turbidité, les nitraates, et les bactéries en période de crue. Les catégories I, II, III correspondent à celles de la Figure 81.

3.Discussion sur la relation NO_3^- - COD dans le traçage des eaux karstiques

3.1 Identification des infiltrations diffuses et concentrées à partir des relations entre le nitrate et le carbone organique dissous dans l'aquifère karstique

Les études menées dans ce travail montrent des évolutions complexes des teneurs en COD et NO_3^-. Provenant en théorie de la même origine (sol), une dynamique différente de ces paramètres pendant les crues peut être reliée à l'apport anthropique des NO_3^- sur le bassin d'alimentation des Sources du Toulon.

Pendant la crue de février 2017, le lien établi entre les traceurs de l'infiltrations (NO_3^-, COD, bactériologie) et les particules en suspension a permis de préciser l'origine des eaux et les modalités d'écoulement dans le système karstique des Sources du Toulon. Le diagramme $NO_3^-{}_{norm}$ vs COD_{norm} permet d'identifier deux pentes ($\alpha < 1$ et $\alpha > 1$) témoignant de la contribution différente de masses d'eau à l'exutoire. Dans ce diagramme, une augmentation plus importante en $NO_3^-{}_{norm}$ ($\alpha < 1$) n'est pas associée à un changement de particule en suspension, ni à une arrivée de contaminants bactériologiques. Au contraire, une augmentation relative plus importante en COD_{norm} ($\alpha > 1$) est concomitante à une arrivée de particules organiques plus fines (débris de végétaux, flocs organo-minéraux) et à l'augmentation des contaminations fécales (E.Coli, coliformes totaux, entérocoques). Par conséquent, une pente supérieure à 1 (Figure 83) dans le diagramme $NO_3^-{}_{norm}$ vs COD_{norm} est caractéristique d'une infiltration concentrée (Figure 82), où la vulnérabilité de la ressource en eau est plus forte. Une pente inférieure à 1 (Figure 83) est associée à une arrivée d'eau des horizons subsuperficiels, permettant le lessivage du stock de nitrates anthropique accumulé pendant la période de basses eaux (Figure 82).

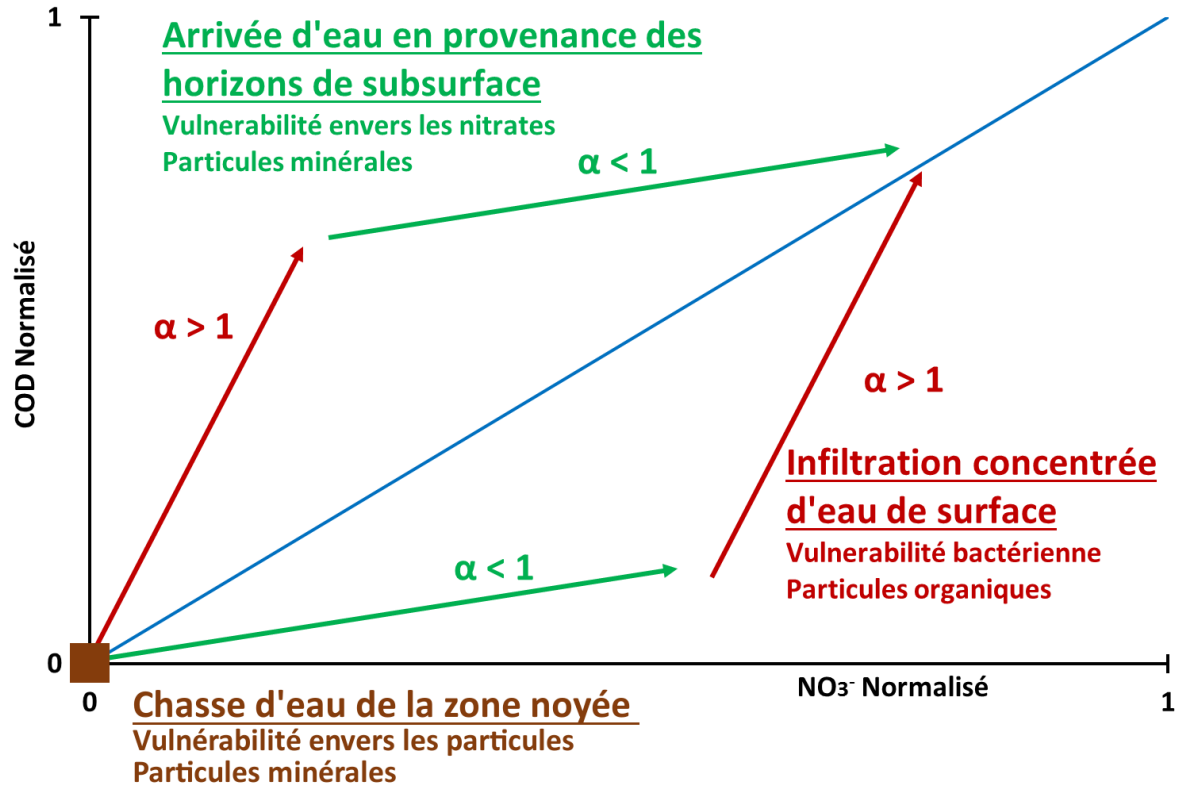


Figure 83 : Synoptique d'utilisation du diagramme $NO_3^-{}_{norm}$ vs COD_{norm} en domaine karstique.

3.2 Utilisation des données haute-résolution NO_3^- et COD pour une meilleure caractérisation temporelle de la vulnérabilité de la ressource en eau

L'étude systématique des relations entre les nitrates et le carbone organique encourage l'utilisation de la méthode pour évaluer : (i) les processus d'infiltration et de transfert dans l'aquifère karstique jusqu'à l'exutoire, (ii) la vulnérabilité d'un système karstique aux contaminations de surface en lien avec l'occupation du sol.

Pour la gestion des eaux des Sources du Toulon, l'analyse en continu des pentes dans le diagramme $NO_3^-{}_{norm}$ vs DOC_{norm} permet de distinguer sur l'ensemble de la crue les eaux arrivant des horizons subsuperficiels ou issues de l'infiltration concentrée. Cette analyse est appliquée sur les deux crues de reprise du cycle hydro : (i) Février 2017, (ii) Décembre 2017. Les crues de reprise hydrologique possèdent un fonctionnement similaire avec :

- **une chasse d'eau provenant du réseau noyée de l'aquifère** qui apporte de la turbidité issue de la remise en suspension des sédiments déposés pendant la période de basses eaux (Figure 84). Cette première masse d'eau est à relier au transfert de masse dans l'aquifère karstique et ne présente pas de problème vis-à-vis de la vulnérabilité de la ressource en eau. Ces travaux confirment ceux de Dussart-Baptista et *al.*, (2003) et Heinz et *al.*, (2009) qui ont montré que la turbidité n'était pas toujours à relier avec de la bactériologie ;
- **un apport d'eau issue des horizons de subsurface** arrivent à l'exutoire du système (Figure 84). Cette deuxième masse d'eau est à relier au

transfert de masse dans l'aquifère karstique, et permet le lessivage des éléments stockés dans le sol et la zone non saturée de l'aquifère. L'azote inorganique, sous forme de NO_3^-, est le principal élément mis en avant dans ce travail, qui témoigne de ce lessivage. Il est possible de penser que d'autres contaminants tels que certains pesticides peuvent être associés à cette infiltration diffuse. Ce constat a déjà été mis en évidence dans certains travaux précédents (Schiperski et *al.*, 2015b) ;

- **un apport d'eau issue d'une infiltration concentrée** provenant du ruissellement de surface, lorsque les précipitations sont suffisamment intenses. Il permet le transit de particules en suspension d'origine allochtone associé à une augmentation brutale de carbone organique et à des bactéries à faible temps de séjour dans l'aquifère. Elle présente le plus de vulnérabilité vis-à-vis des contaminants en impliquant un transfert rapide jusqu'à l'exutoire du système karstique (entre 4 et 6 jours pour les deux crues étudiées) ;
- **un nouvel apport d'eau issue des horizons de subsurface par écoulement retardé** lorsque les conditions climatiques ne permettent plus une infiltration via les pertes. Les concentrations en NO_3^- augmentent à nouveau, alors que la concentration en COD a tendance à stagner (Figure 84).

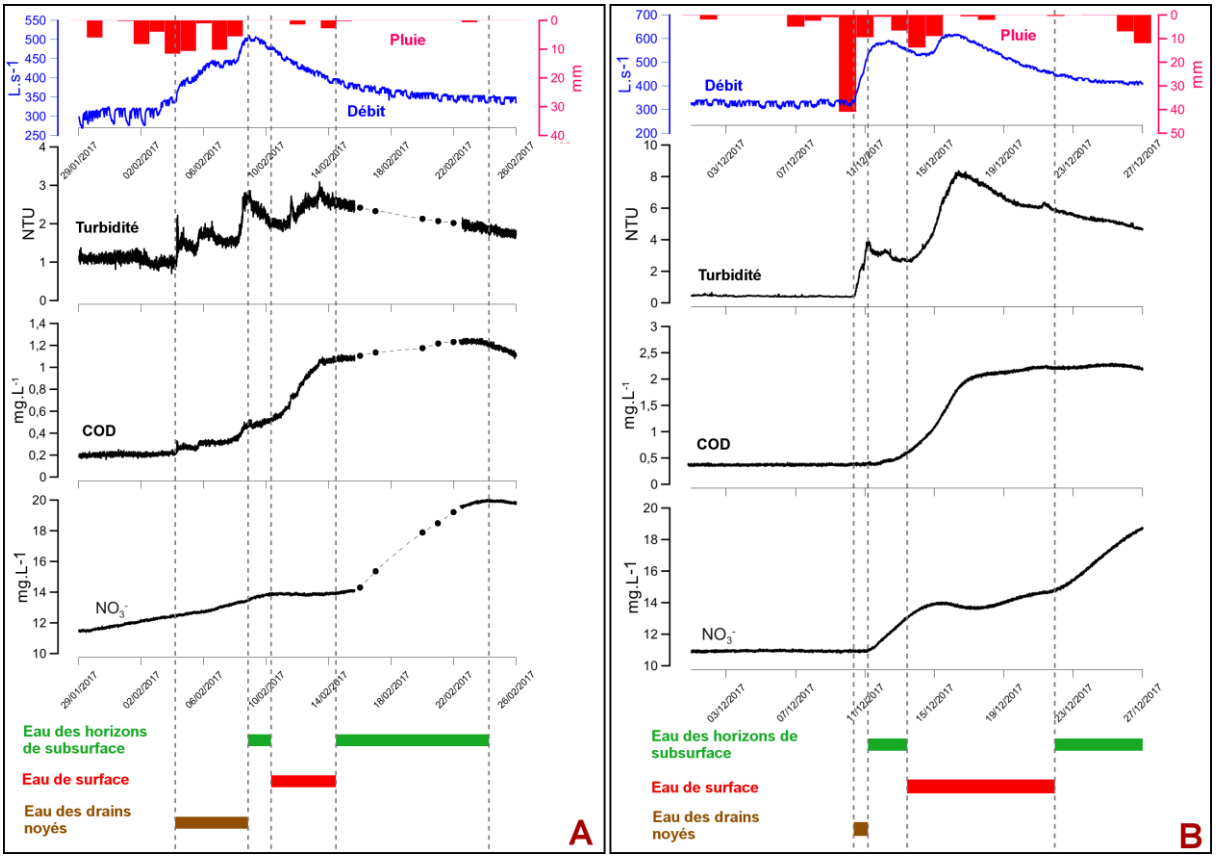


Figure 84 : Identification des périodes de vulnérabilité en crue des Sources du Toulon après application de l'analyse des pentes du diagramme $NO_3^-{}_{norm}$ vs COD_{norm}. A) crue de février 2017. B) crue de décembre 2017.

4.Conclusion du Chapitre 6 et perspectives

L'objectif principal était d'identifier de tester une approche pour évaluer temporellement la vulnérabilité spécifique des aquifères karstiques à certains marqueurs de contamination (particules, NO3-, COD, bactéries). Après une phase d'analyse des relations entre les paramètres pendant une crue échantillonnée, qui a permis l'établissement d'un schéma conceptuel de transfert aux Sources du Toulon, les travaux se sont orientés vers une discussion sur les relations entre les nitrates et le carbone organique dissous dans le traçage des eaux karstiques.

Les observations couplées aux connaissances du contexte hydrogéologique des Sources du Toulon suggèrent plusieurs types de vulnérabilité pour la ressource en eau : (i) une vulnérabilité purement minérale, associée à une remise en suspension des sédiments déposés proche du conduit terminal ; (ii) une vulnérabilité vis-à-vis des éléments bactériens, causée par les infiltrations concentrées à travers des pertes ; (iii) une vulnérabilité vis-à-vis des nitrates, causée par les infiltrations diffuses à travers la zone non saturée de l'aquifère.

L'occupation du sol en surface, associée au caractère karstique du massif carbonaté nécessite une gestion de la ressource en eau adaptée. La présence de formes géomorphologiques typiquement karstiques (dolines, pertes, rivières souterraines) induit un transfert rapide des eaux et des contaminants de la surface à l'exutoire.

Cette occupation du territoire est responsable des contaminations en nitrates mesurées aux sources du Toulon. Par son caractère vulnérable, une vigilance particulière doit être préconisée sur la ressource en eau. Pour cela, il est nécessaire de surveiller l'évolution des pratiques agricoles et de l'urbanisation. Pour les pratiques agricoles, la surveillance doit s'axer sur : (i) l'implantation des parcelles en lien avec le paysage karstique, (ii) une régulation des apports anthropique d'azote pour tenter de minimiser le lessivage de nitrates vers l'aquifère sous-jacent. Pour l'urbanisation, l'évolution du territoire doit subir une réflexion adéquate en lien avec le paysage karstique. Il serait pertinent d'éviter les zones présentant des points d'infiltrations concentrés.

Ce chapitre propose une réflexion sur les relations entre COD et NO_3^- dans l'aquifère karstique. En contexte rural, les différentes origines de NO_3^- et les points d'infiltrations concentrées de COD impliquent des évolutions complexes des signaux géochimiques à l'exutoire des systèmes karstiques. Ils peuvent correspondre à des périodes d'infiltration concentrées ou diffuses. La confrontation des données en continu normalisées de COD et NO_3^- à travers un diagramme $NO_3^-{}_{norm}$ vs COD_{norm} semble être une bonne approche pour différencier les origines des eaux à l'exutoire des systèmes karstiques. Ce diagramme permet également de proposer des pistes de réflexion sur les relations entre le COD et NO_3^- dans l'aquifère karstique.

Enfin, en termes d'implications environnementales, ces travaux proposent une méthodologie pour mieux cibler les périodes de vulnérabilité des aquifères karstiques soumis à une occupation essentiellement rurale. L'étude des pentes dans le diagramme $NO_3^-{}_{norm}$ vs COD_{norm} semble être utile pour préciser les périodes d'infiltrations rapides. Cette méthodologie a été validée par des traceurs complémentaires, tels que les particules en suspension et les contaminants bactériologiques.

L'approche proposée est efficace pour évaluer la vulnérabilité temporelle de la ressource en eau, et ainsi contribuer à sa protection et sa gestion durable. La facilité

d’application de la méthode encourage son utilisation dans d’autres systèmes karstiques aux problématiques semblables.

L’Annexe 7 : Poster présenté à la conférence Eurokarst sur la dynamique et l’origine de la turbiditéfournit le poster présenté à la conférence Eurokarst 2018 (Lorette et *al.*, 2018c) synthétisant une partie des travaux de ce Chapitre.

La prochaine étape des réflexions à mettre en œuvre est l’évolution de la méthodologie vis-à-vis d’autres contaminations telles que les pesticides, les métaux ou les polluants émergeants. Notons d’ailleurs que des traces de metolachlore commencent à être mesurer par périodiquement aux Sources du Toulon, confirmant l’intérêt que doit porter les prochaines recherches sur cette problématique. L’installation d’un dispositif de mesure en continu de la taille des particules permettrait de consolider cette méthodologie, en l’étendant notamment à l’intégralité des crues des Sources du Toulon.

DISCUSSION SUR L'AQUIFERE KARSTIQUE MULTICOUCHE DU TOULON

Les chapitres de ce manuscrit se sont attardés à présenter au lecteur les approches développées dans ce travail de thèse. Cette dernière partie s'attache à recouper l'ensemble des informations obtenues afin de discuter sur les points encore non éclaircis.

La Figure 85 propose une coupe hydrogéologique du système karstique multicouche du Toulon.

Les caractéristiques physiques de l'hydrosystème karstique multicouche du Toulon

Le contexte géologique et hydrogéologique de la zone d'étude, localisée en bordure Nord du Bassin sédimentaire aquitain, est représentatif des formations géologiques du Mésozoïque qui composent le grand multicouche Nord aquitain.

La caractérisation physique de ce grand multicouche permet d'identifier 3 aquifères principaux : (i) l'aquifère karstique du Jurassique moyen (Bajocien, Bathonien) ; (ii) l'aquifère karstique du Jurassique supérieur (Oxfordien, Kimméridgien) ; (iii) l'aquifère karstique du Crétacé supérieur (Turonien, Coniacien, Santonien). En complément des Sources du Toulon, qui alimentent une partie de l'agglomération de Périgueux en eau potable, la zone d'étude contient plusieurs captages AEP qui exploitent ces différents aquifères.

L'évolution géodynamique de la zone d'étude est directement liée avec celle du Bassin aquitain. Les alternances de période de transgression/régression ont entrainé une karstification polyphasée des réservoirs du Mésozoïque pendant 3 périodes principales : (i) le Crétacé inférieur ; (ii) la Paléocène ; (iii) du Miocène à l'actuel.

Historiquement, les études géologiques et hydrogéologiques départementales ont considéré la formation du Cénomanien comme une éponte majeure séparant les unités aquifères du Jurassique supérieur et du Crétacé supérieur. Les variations latérales de faciès et d'épaisseur du Cénomanien, associées aux remontées d'eau profonde recensées dans l'agglomération de Périgueux, questionnent sur le caractère imperméable de cette formation. Ces remontées d'eau d'origine profonde se font probablement à la faveur des fractures localisées sur l'extrados de l'anticlinal de Périgueux.

Au cours des années 1980 à 2005, plusieurs forages AEP ont été mis en service en périphérie de l'agglomération périgourdine (forage de Trélissac, forage de Lesparat, forage de Saint-Laurent-sur-Manoire, forage du Change, forage de Château l'Evêque, forage de Vergt). L'ensemble de ces forages a initialement été réalisé pour capter l'aquifère captif du Jurassique supérieur, sous couverture sous le Crétacé supérieur. Cependant, quelques jours à semaines après la mise en service de ces forages, des changements de qualité d'eau importants ont été enregistrés (apparition de nitrates, de pesticides, de bactériologie, augmentation du signal de turbidité). Les anomalies répertoriées laissent supposer des intrusions per descensum du Crétacé supérieur à travers le Cénomanien.

De ces constats découlent plusieurs questions sur le fonctionnement hydrogéologique général des aquifères karstiques situés sur la zone d'étude :

- Le Crétacé supérieur est-il le seul aquifère à alimenter les Sources du Toulon ?
- Quel est le rôle du Cénomanien dans les échanges hydrogéologiques ? Est-ce une limite de la nappe du Crétacé supérieur ?

- Comment et où se font les relations hydrogéologiques entre les aquifères karstiques dans le multicouche mésozoïque ?
- Quelle est la vulnérabilité de la ressource en eau en lien avec le fonctionnement hydrogéologique complexe de la zone d'étude ?

Variabilité temporelle de la chimie des eaux des Sources du Toulon au cours du cycle hydrologique : témoin d'une double alimentation complexe

Le suivi hydrochimique mis en place depuis 2014 a permis d'identifier plusieurs types d'eau aux Sources du Toulon. Pendant les périodes de basses eaux, les eaux identifiées possèdent un faciès plus magnésien que pendant les hautes eaux (~13 $mg.L^{-1}$), et sont également plus chaudes (~14.5 °C), et moins oxygénées (~4.00 $mg.L^{-1}$). Pendant les périodes de hautes eaux, la qualité de l'eau évolue, en lien avec les variations hydrodynamiques mesurées, vers un faciès plus bicarbonaté calcique, des températures plus froides (~12.8 °C), et une eau plus oxygénée (~7.00 $mg.L^{-1}$). Pendant ces périodes-là, les concentrations en nitrates et en carbone organique dissous évolue également, témoignant d'une origine plus superficielle des eaux.

La comparaison avec les différents types d'eau rencontrés dans les aquifères de la zone d'étude a mis en évidence que les Sources du Toulon étaient le siège d'une alimentation multiréservoirs en provenance de l'aquifère libre du Crétacé supérieur, mais également des aquifères captifs du Jurassique supérieur et du Jurassique moyen. Ce constat est confirmé par la datation des eaux d'étiage des Sources du Toulon à 4 480 ans. Cet âge est probablement la résultante d'un mélange entre une eau plus vieille et une eau plus récente de l'aquifère du Crétacé supérieur. Les données issues des forages départementaux (forage de Proissans et forage de Rudeau) montrent que les eaux du Jurassique supérieur ont des âges relatifs compris entre 1240 et 2800 ans ; laissant supposer la participation d'une masse d'eau plus ancienne aux Sources du Toulon. Le Jurassique moyen, daté le plus localement au niveau du forage de Lesparat à Boulazac, a montré des eaux âgées de 12 930 ans. Par conséquent, l'hypothèse d'un mélange complexe entre les eaux du Jurassique moyen, du Jurassique supérieur et du Crétacé supérieur est retenue. Cependant, les contributions du Jurassique supérieur et du Jurassique moyen restent encore inconnues. Les données approtées par les forages profonds départementaux (ions majeurs) ne permettent actuellement pas de distinguer clairement les masses d'eau.

Les taux de contribution de chaque aquifère diffèrent suivant les périodes hydrologiques. La participation du Jurassique est plus importante pendant la période de basses eaux, et est responsable du faciès magnésien et des débits très stables mesurés pendant ces périodes. Elle contribue au soutien des débits en basses eaux et explique le volume dynamique considérable qui a été calculé. La participation du Crétacé supérieur est majoritaire pendant la période de hautes eaux, et est responsable des variations hydrodynamiques et hydrochimiques enregistrées aux Sources du Toulon.

La formation du Cénomanien ne peut donc pas être considérée comme une éponte imperméable dans le système karstique du Toulon, ce qui implique une difficulté de caractérisation spatiale des circulations d'eau souterrainnes et de quantification des échanges entre nappes.

Circulations générales des eaux souterraines dans le système karstique

Les outils isotopiques des nitrates, initialement utilisés pour caractériser les origines des nitrates dans une optique de vulnérabilité de la ressource en eau, ont été couplés aux outils hydrogéologiques pour identifier l'origine commune des nitrates dans l'aquifère du Turonien et du Jurassique supérieur. Une eau ancienne de plusieurs milliers d'année ne devrait pas posséder des nitrates provenant des fertilisants de synthèse utilisés depuis plusieurs dizaines d'années. Ce constat illustre la possibilité de d'infiltration des eaux de l'aquifère du Turonien, vers le Jurassique supérieur à travers le Cénomanien.

L'intégration de ce constat dans le contexte hydrogéologique local questionne sur les circulations générales des eaux souterraines dans le système karstique du Toulon, et en particulier sur le rôle du Jurassique supérieur dans ces circulations.

L'hypothèse d'une circulation privilégiée dans le Jurassique supérieur vers les Sources du Toulon n'est pas à exclure. A partir de là, il est possible de considérer les Sources du Toulon comme exutoire majeur du Jurassique supérieur, remettant ainsi en cause sa captivité au sens hydrogéologique. La karstification polyphasée est responsable ces circulations complexes dans les aquifères du Jurassique supérieur et du Crétacé supérieur.

Pendant le Crétacé inférieur, le Jurassique supérieur a été fortement érodé et karstifié, créant des vides plus ou moins importants à l'échelle de la marge Nord du Bassin aquitain. Pendant le Cénomanien, la sédimentation marine vient recouvrir ce Jurassique supérieur karstifié, sur un paysage de type mogotte, créant ainsi la formation hétérogène du Cénomanien (faciès et épaisseur) telle qu'elle est décrite aujourd'hui. Il est donc probable que le caractère perméable du Cénomanien, associé à la karstification du Jurassique supérieur, sont venus conditionner les circulations souterraines telles qu'elles sont proposées dans ce manuscrit.

Il est alors possible de proposer plusieurs alimentations possibles pour les Sources du Toulon :

- une alimentation directe par l'aquifère mulitcouche libre du Crétacé supérieur ;
- une alimentation par l'aquifère du Jurassique supérieur, lui-même alimenté en partie par le Crétacé supérieur ;
- une alimentation par l'aquifère du Jurassique moyen peu karstifié mais constituant un gros réservoir permettant une contribution en débits soutenue et continue aux aquifères susjacents. Ce dernier expliquerait l'âge moyen de 4 480 ans trouvé en étiages aux Sources du Toulon. Sa zone de rehcarge reste encore inconnue du fait de l'imprécision des cartes piézométriques par manque de données de forages.

Le manque de données des charges hydrauliques des différents aquifères dans les parties amont et aval du système karstique du Toulon limitent l'interprétation sur les échanges possibles. Dans la partie aval, les seules données disponibles pour l'aquifère du Jurassique moyen sont mesurées sur les forages AEP de l'agglomération de Périgueux et ne sont donc pas représentatives. Dans la partie amont, seul le forage de Cornille fourni un niveau de charge, mais est utilisé pour l'agriculture une majeure partie de l'année.

La Figure 85 résume les hypothèses proposées une coupe hydrogéologique du système karstique multicouche du Toulon.

Conséquence du fonctionnement hydrogéologique sur la délimitation du bassin d'alimentation des Sources du Toulon

A partir de ce fonctionnement hydrogéologique complexe, il en résulte une difficulté de délimitation du bassin d'alimentation des Sources du Toulon. La mise en évidence de son alimentation multiréservoirs nécessite une adaptation de certains concepts hydrogéologiques tels que le bilan hydrologique. La participation d'eau plurimillénaire réfute la méthodologie classique du bilan hydrologique réalisée à l'échelle annuelle ou pluriannuelle. Cette méthodologie se doit d'être adaptée en ne prenant compte que des volumes engendrés par les recharges récentes.

Par conséquent, une décomposition de l'hydrogramme a été réalisée pour déterminer les volumes produits au cours de l'année. A partir de ces volumes, des bilans hydrologiques ont été réalisés pour estimer la surface théorique nécessaire à leur restitution. Des traçages artificiels sont intégrés dans la réflexion pour préciser certaines directions d'écoulement en souterrain et préciser les limites du bassin d'alimentation.

A partir de ces résultats, la réflexion présentée ici de différencier une unité hydrogéologique dans le bassin d'alimentation :

- **Le sous bassin d'alimentation karstique fonctionnel**, majoritairement contributif en hautes eaux, qui participerait à la recharge annuelle ou pluriannuelle de l'aquifère du Crétacé supérieur (Turonien, Coniacien, Santonien), et qui serait responsable des variations hydrodynamiques et hydrochimiques recensées pendant les épisodes de crue. Il serait délimité en surface par une aire d'environ 48 km², qui tiendrait compte des résultats des traçages hydrogéologiques réalisés sur l'ensemble de la zone d'étude.
- **Le bassin hydrogéologique global** tiendrait compte, en plus, des zondes d'infiltration participant à la recharge de l'aquifère du Jurassique supérieur prodond. Il serait délimité en surface par une aire supplémentaire d'environ 55 km².

Les limites du bassin d'alimentation ont été précisées dans la partie Est de la zone d'étude, mais de nombreuses questions restent en suspens. Ces questions se posent principalement sur la partie amont du bassin, où la rivière Beauronne s'écoule. Le rôle de cette rivière dans le fonctionnement hydrogéologique est encore à préciser. Ses échanges avec l'aquifère du Crétacé supérieur sont supposés, et demeure encore complexes et mal connus à la fin des travaux présentés ici. Là encore, des données piézométriques sur la nappe alluviale de la Beauronne et sur l'aquifère libre du Crétacé supérieur seraient pertinentes pour la compréhension du rôle de la rivière et pour faire avancer les connaissances sur le fonctionnement hydrogéologique du système karstique du Toulon.

La précision des limites du bassin d'alimentation des Sources du Toulon passe également par une meilleure délimitation des systèmes karstiques voisins, tels que ceux des sources des Bories, Glane et Clavelie. Il sera également pertinent de s'intéresser aux zones d'infiltration alimentant la rivière Côle localisée au Nord de la limite actuelle du bassin d'alimentation des Sources du Toulon. De nombreuses sources alimentent cette rivière, et la délimitation des zones d'alimentation de ces sources permettrait de restreindre les « zones d'ombre » de la partie amont du bassin d'alimentation des Sources du Toulon.

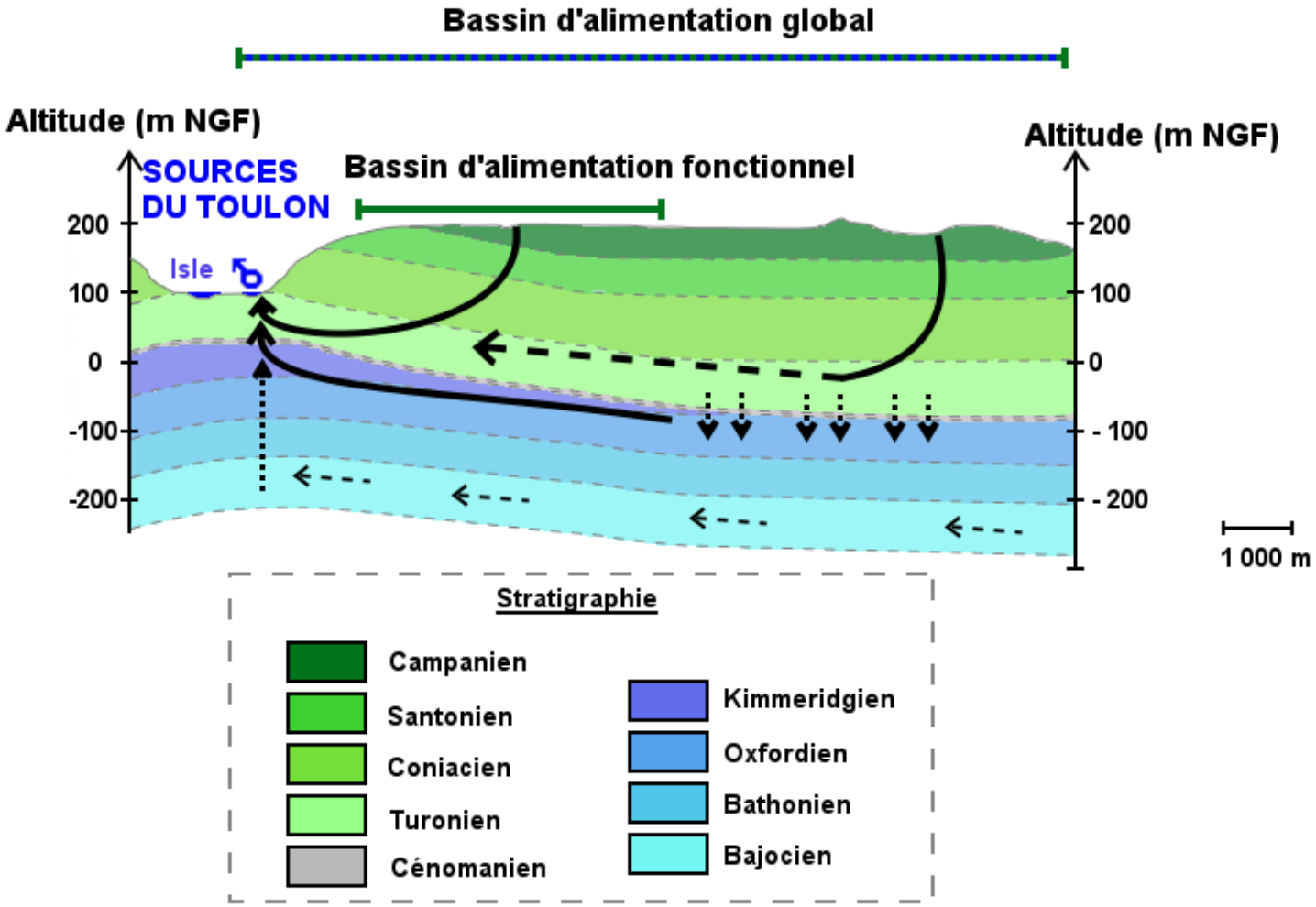


Figure 85 : Schéma hydrogéologique du système karstique multicouche du Toulon.

Conséquence du fonctionnement hydrogéologique sur la vulnérabilité et la gestion durable de la ressource en eau

De ce fonctionnement hydrogéologique complexe en découle une vulnérabilité et une gestion particulière de la ressource en eau.

Sur la zone d'étude, la vulnérabilité de cette ressource est essentiellement due au caractère karstique de l'aquifère du Crétacé supérieur, associé à l'occupation agricole du sol en surface. Les différentes approches testées pendant ces travaux de thèse ont permis d'une part de préciser le rôle du Crétacé supérieur dans le transfert d'éléments dissous et particulaires et d'autre part de répondre à des problématiques de vulnérabilité de la ressource en eau.

Le suivi haute résolution des paramètres hydrodynamiques et physico-chimiques a montré des transferts de pression et de masse complexe dans l'aquifère karstique du Toulon, qui peuvent s'enregistrer entre quelques heures et plusieurs semaines suivant l'intensité de l'évènement pluvieux et hydrologique. Ce constat est à prendre en compte dans une optique de protection de la ressource en eau en raison du transfert potentiel de contamination provenant de la surface.

Les nitrates constituent la principale vulnérabilité de l'aquifère karstique du Toulon. Depuis les années 1960, le bruit de fond en nitrates a augmenté de 1.5 $mg.L^{-1}$ à environ 13 $mg.L^{-1}$, et les augmentations brutales pendant les crues sont de plus en plus importantes, avec des teneurs qui peuvent atteindre jusqu'à plus de 20 $mg.L^{-1}$. Annuellement, c'est environ 40 tonnes d'azote, soit plus de 190 tonnes de nitrates qui transitent par les Sources du Toulon.

Ce constat a justifié le test d'une approche innovante pour caractériser les origines et le devenir des nitrates dans l'aquifère karstique. L'utilisation des outils isotopiques des nitrates ($\delta^{15}N_{-NO3^-}$; $\delta^{18}O_{-NO3^-}$) a permis d'identifier plusieurs origines distinctes des nitrates dans les eaux de surfaces et souterraines : (i) une origine provenant des assainissements collectifs ; (ii) une origine en provenance des fertilisants de synthèse utilisés sur les parcelles agricoles.

Comme expliqué précédemment, ces outils isotopiques, couplés aux outils hydrogéologiques ont permis d'identifier une communication probable entre le Crétacé supérieur et le Jurassique supérieur, réfutant ainsi le caractère imperméable du Cénomanien. Dans une optique de gestion durable de la ressource en eau, il est possible de constater qu'un apport de fertilisant en surface depuis presque 60 ans a suffi à impacter de façon notable une masse d'eau probablement protégée jusqu'ici. Les pompages réguliers dans l'aquifère du Jurassique supérieur ont probablement accéléré ce phénomène de drainance per descensum. L'aquifère du Jurassique moyen ne présente pas encore de trace de contamination de surface, et est encore protégé de l'impact anthropique.

Par conséquent, une attention particulière doit être réalisée par les organismes d'autorité publics sur la surveillance de la qualité de la ressource en eau, en lien avec les changements globaux (évolution démographique, changement climatique, changement de pratique agricole). A l'image des concentrations en nitrates qui augmentent dans les compartiments de surface et souterrains, les apports d'engrais de synthèse devraient être plus surveillés. Enfin, une surveillance des volumes pompés dans l'aquifère du Jurassique moyen doit être réalisée pour éviter toute contamination par l'aquifère sus-jacent du Jurassique supérieur, déjà contaminé par l'aquifère du Crétacé supérieur.

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

La ressource en eau karstique est l'une des principales ressources en eau potable pour certains territoires. Dans un contexte de diminution quantitative et de dégradation qualitative de la ressource en eau, la connaissance du fonctionnement hydrogéologique est devenue fondamentale dans une optique de protection et de gestion durable.

L'objectif de ce travail de thèse était de tester la faisabilité d'une approche multi-traceurs couplée à un suivi haute-résolution des paramètres physico-chimiques pour évaluer le fonctionnement et la vulnérabilité d'un système karstique multicouche localisé en bordure de bassin sédimentaire. Ce travail s'appuie sur l'étude des Sources du Toulon, situées dans le département de la Dordogne (Sud-Ouest de la France). Cette ressource est primordiale pour ce département car elle constitue l'unique ressource en eau potable pour la ville de Périgueux depuis 1832.

Outre les outils classiques (hydrodynamique, hydrochimie), l'originalité de ces travaux de thèse repose sur (i) : le développement d'un système de mesure en continu précis, fiable et durable dans le temps pour un meilleur monitoring de la qualité des eaux souterraines ; (ii) l'utilisation des isotopes des nitrates ($\delta^{15}N_{-NO3^-}$; $\delta^{18}O_{-NO3^-}$) comme outil innovant pour l'hydrogéologie karstique ; (iii) une analyse des relations entre les nitrates et le carbone organique dissous dans le traçage des eaux karstiques ; (iv) des réflexions sur le fonctionnement des grands aquifères en bordure de bassin sédimentaire, en particulier sur les relations entre les aquifères libres et captifs.

A travers l'ensemble de ces thématiques, de nombreuses données ont été acquises, qu'elles soient météorologiques, géologiques, géomorphologiques, hydrochimiques, isotopiques, ou hydrogéologiques.

Après une phase de synthèse des connaissances disponibles sur la zone d'étude et d'appropriation du territoire, **la première partie de ce travail** a été de coupler les outils hydrodynamiques et hydrochimiques pour évaluer le fonctionnement hydrogéologique des Sources du Toulon. Une alimentation multirésevoirs par l'aquifère karstique libre du Crétacé supérieur et des aquifères karstiques captifs et profonds du Jurassique moyen et du Jurassique supérieur a été mise en évidence. L'aquifère profond du Jurassique est responsable des débits stables en période d'étiage, et du faciès magnésien mesuré dans les eaux. L'aquifère libre du Crétacé supérieur est responsable des variations hydrodynamiques et hydrochimiques mesurées pendant les crues. Ces aquifères participent à l'alimentation des Sources du Toulon en proportion variable en fonction des conditions hydroclimatiques et hydrodynamiques. Ce fonctionnement particulier est responsable de l'emplacement des Sources du Toulon dans le domaine 5 de la classification des aquifères karstiques proposée par A. Mangin. Il est également responsable des réserves très importantes estimées par l'analyse des courbes de récession. Ceci en fait un système karstique stratégique à l'échelle régionale dont il est essentiel d'assurer sa protection et sa gestion durable.

L'intégration de ce fonctionnement dans un contexte de bordure de bassin sédimentaire a permis de faire progresser les connaissances de ces grands aquifères de bordure, en illustrant la complexité des relations hydrogéologiques entre les aquifères.

La deuxième partie a montré l'apport du suivi haute-résolution des paramètres hydrodynamiques et hydrochimiques pour préciser le transfert d'éléments dissous dans l'aquifère karstique. Après une phase de description du système de mesure développé, des analyses temporelles sur l'ensemble de la chronique et à l'échelle de plusieurs crues ont permis de présenter différents comportements du système, et différentes modalités

d'évolution des paramètres en fonction des conditions hydrologiques. Ainsi, le travail s'est focalisé sur trois catégories de crue : (i) les crues de reprise hydrologique ; (ii) les crues hivernales et printannières ; (iii) les crues engendrées pendant l'étiage. Des analyses complémentaires par traitement du signal ont montré des dynamiques variables en fonction du régime hydrologique. Les valeurs de décalage temporel des analyses corrélatoires croisées peuvent varier de quelques heures à plusieurs semaines illustrant toute la difficulté de prédiction des variations hydrodynamiques et hydrochimiques du système karstique du Toulon, et la difficulté future à modéliser les transferts de masse dans l'aquifère karstique.

La troisième partie de ce travail a été de tester la faisabilité d'utilisation des isotopes des nitrates ($\delta^{15}N_{-NO3^-}$; $\delta^{18}O_{-NO3^-}$) comme outil innovant et pertinent pour l'hydrogéologie karstique.

Dans un contexte de contamination récurrente par les nitrates depuis 1960, une importance particulière a été accordée à l'identification des signatures isotopiques de l'ensemble des sources potentielles de nitrates sur la zone d'étude, en lien avec les pratiques sur le territoire. Plusieurs sources ont été ciblées : (i) les fertilisants inorganiques de synthèse ; (ii) les rejets domestiques issues des assainissements non collectifs ; (iii) les boues de stations d'épuration épandues sur les parcelles agricoles. En complément, les signatures isotopiques des origines naturelles comme les précipitations, ou l'azote organique dans le sol ont également été identifiées.

La comparaison des compositions isotopiques des nitrates des sources potentielles avec celles mesurées dans les compartiments de surface et souterrains a permis d'identifier plusieurs origines des nitrates sur la zone d'étude : (i) les fertilisants de synthèse minéralisés sur les sols cultivés pour la majorité des sources prélevées, et sur l'ensemble du linéaire des rivières Beauronne et Foncroze ; (ii) les rejets domestiques issues des assainissements individuels pour les sources localisées dans les zones urbaines et bourgs de village.

Malgré un mélange probable aux Sources du Toulon de l'ensemble des sources potentielles identifiées, une seule signature isotopique est mesurée sur tous les échantillons d'eau prélevés. La signature « fertilisants de synthèse minéralisés sur un sol cultivé » est largement prédominante et est responsable de la contamination en nitrates mesurée dans ce captage AEP.

La comparaison de ces signatures avec celles mesurées dans les forages du Crétacé supérieur (Roussie) et du Jurassique supérieur (Cornille) a permis de montrer que la signature « fertilisants » est présente dans tout le compartiment souterrain et de supposer une contamination du Jurassique supérieur par le Crétacé supérieur à travers le Cénomanien.

Cette partie a ainsi permis de mettre en évidence la pertinence des outils isotopiques des nitrates dans une optique de vulnérabilité de la ressource en eau et de fonctionnement des aquifères karstiques.

La quatrième partie de ce travail a été de tester l'utilisation des signaux en continus de turbidité, nitrates et carbone organique dissous pour préciser temporellement les périodes de vulnérabilité de la ressource en eau. Les relations entre ces paramètres et les contaminants bactériologiques ont été établies sur un épisode de crue de reprise hydrologique (février 2017) par analyse des particules (taille, minéralogie) et par comparaison avec les évolutions temporelles des traceurs de l'infiltration. Il en ressort de cela une illustration de différentes eaux qui alimentent les Sources du Toulon pendant les crues : (i) une chasse d'eau localisée dans le réseau noyé de l'aquifère ; (ii) une infiltration concentrée d'eau de surface à travers des pertes ; (iii) une arrivée d'eau en provenance des horizons de subsurface.

Une discussion basée sur les relations entre les nitrates et le carbone organique dissous a permis de les conceptualiser à travers un diagramme COD_{norm} vs $NO_3^-{}_{norm}$. L'analyse des

pentes de ce diagramme permet alors d'identifier les différentes origines des eaux, et ainsi de préciser temporellement la vulnérabilité de la ressource en eau. Une pente $\alpha < 1$ traduit une arrivée d'eau en provenance des nappes subprofondes, et une pente $\alpha > 1$ illustre une infiltration concentrée d'eau en surface.

Après la description de l'ensemble des travaux réalisés, la dernière partie de ce travail a été de regrouper l'ensemble des résultats obtenus, pour en obtenir une synthèse hydrogéologique de l'aquifère karstique multicouche du Toulon.

Les perspectives générales

POUR L'AMELIORATION DES CONNAISSANCES SUR LE SYSTEME KARSTIQUE MULTICOUCHE DU TOULON

Les données de datation en provenance des forages de la zone d'étude a été bénéfique pour approcher la distinction entre les deux aquifères du Jurassique. Les efforts pourraient être poursuivis avec : (i) des prélèvements sur les Sources du Toulon pendant les périodes de hautes-eaux, et faire le suivi d'une crue avec des traceurs complémentaires au carbone 14 tels que les gaz dissous (CFC, SF_6) ; (ii) une acquisition de données de datation sur les eaux de la zone d'étude, en particulier celles provenant des forages mais aussi des sources locales telles que la source de la Clavelie, ou la source du stade COPO.

Concernant la sécurisation du captage d'eau potable des Sources du Toulon, la pérennisation des mesures initiées par le SSERK'ŒIL semble pertinente pour la surveillance de l'évolution de la qualité de l'eau. Dans un contexte où le questionnement sur l'impact du changement climatique sur l'environnement devient de plus en plus important, une telle surveillance semble judicieuse pour identifier son impact sur le système karstique du Toulon.

L'alimentation des réflexions sur la délimitation précise du bassin d'alimentation des Sources du Toulon est en constante évolution. Pour préciser ses contours, une délimitation plus précise des systèmes karstiques voisins semble être une bonne approche. Les campagnes à mener peuvent se réaliser sur les systèmes de la source de la Glane, de la source des Bories et de la source de la Clavelie dans un premier temps.

Les difficultés de compréhension du rôle de la rivière Beauronne dans le fonctionnement hydrogéologique du système karstique du Toulon sont illustrées dans ce manuscrit. Le Chapitre 5 a permis d'identifier que la partie amont du bassin versant de la Beauronne présente des concentrations en nitrates importantes. C'est également dans cette zone que la majorité des pertes ont été observées.

Des travaux spécifiques, basés sur les relations entre la rivière Beauronne et l'aquifère karstique sous-jacent, peuvent être menés. La mise en place d'un réseau piézométrique dans la nappe alluviale de la rivière et dans l'aquifère sous-jacent du Crétacé supérieur permettrait d'identifier les périodes où la rivière draine la nappe, et inversement. Des traçages fluorescents seraient judicieux à prévoir en période où la rivière est en charge par rapport à la nappe du Crétacé pour préciser les relations hydrogéologiques potentielles avec les sources du Toulon. Si les connexions sont avérées, des travaux complémentaires sur des estimations de participation devront être menés pour améliorer les calculs de bilans hydrologiques.

La précision des relations complexes entre les aquifères du Crétacé supérieur et du Jurassique supérieur (relation par drainance ascendante et par drainance descendante)

pourrait nécessiter l'instrumentation de piézomètres dans les parties amont et aval du système. Les niveaux de charge hydraulique des deux compartiments pourraient s'avérer être une réelle avancée pour l'amélioration de la connaissance du fonctionnement hydrogéologique du système karstique du Toulon, mais également du fonctionnement hydrogéologique des grands aquifères en bordure de bassin sédimentaire.

Dans une optique de gestion, une surveillance de l'évolution du territoire serait à prévoir pour éviter toute dégradation qualitative de la ressource en eau. L'augmentation des concentrations en nitrates aux Sources du Toulon depuis 1960 illustre une évolution des pratiques agricoles et de l'urbanisation qui ne favorise pas la gestion durable de la ressource en eau. Les sources de nitrates identifiées sur la zone d'étude, imposent des réflexions sur la mise en commun de connaissance pour une agriculture plus raisonnée, ou pour l'utilisation de techniques alternatives de fertilisation qui impacterait moins la ressource en eau.

POUR LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

L'acquisition de données en continu telles que celles fournies par le SSERK'ŒIL devront être valorisées pour développer des nouvelles méthodologies de modélisation de transferts de masse en milieu karstique. Certains paramètres tels que le carbone organique dissous ou les nitrates peuvent être utilisés comme point de départ d'une telle approche. Les travaux réalisés dans ce manuscrit sur le traitement des signaux en continu sont une première analyse mais montre l'intérêt d'une telle approche dans l'optique d'une meilleure modélisation des transferts de masse dans l'aquifère karstique.

Les relations hydrogéologiques complexes entre les aquifères libres et captifs en bordure de bassin sédimentaire entretiennent un questionnement récurrent sur la recharge des aquifères captifs. Des travaux spécifiques sur l'estimation de la recharge de ces aquifères profonds seraient une vraie avancée scientifique. Les résultats permettraient d'alimenter les modèles hydrodynamiques globaux tels que le Modèle Nord Aquitain (MONA).

Cette approche innovante basée sur l'analyse des signaux en continu de turbidité, COD et NO_3^- ne peut pour le moment être testée et validée que sur les crues montrant des mobilisations de nitrates en provenance des horizons de subsurface (crues de reprise ou crues de fin de printemps lorsque des fertilisants ont de nouveau été épandus). Le test d'une approche complémentaire, basée sur l'analyse des tailles des particules pourrait être pertinente dans la poursuite d'une décomposition de l'ensemble de hydrogramme. Le lien avec la finalité appliquée de ce travail permettrait le développement d'un algorithme pour accompagner l'exploitant du captage pour un traitement de l'eau plus adapté.

La thématique de la vulnérabilité de la ressource en eau vis-à-vis des contaminations azotées est actuellement au cœur d'une réflexion internationale. La caractérisation de ces contaminations et de ses origines a permis le développement d'approches spécifiques aux aquifères karstiques. Cependant, ces méthodologies n'inhibent pas le caractère vulnérable intrinsèque du karst.

La prochaine étape des réflexions à mettre en œuvre est la mise en commun des connaissances et des compétences des différents acteurs environnementaux pour une meilleure caractérisation de la vulnérabilité de la ressource en eau vis-à-vis des contaminations par les nitrates. Pour la recherche scientifique, cela passe par l'estimation plus précise de bilans d'azote à l'échelle des hydrosystèmes karstiques afin de préciser le rôle du karst dans le transfert d'azote. Pour le gestionnaire de la ressource, une méthodologie

permettant de caractériser la cartographie de la vulnérabilité des aquifères karstiques vis-à-vis des contaminations par les nitrates est à développer en lien avec les différents acteurs environnementaux et scientifiques.

Les Sources du Toulon, siège d'une alimentation multiréservoirs, sont un vrai site pilote pour l'amélioration des connaissances des aquifères karstiques en bordure de bassin sédimentaire, et s'intègrent dans le Système National d'Observation des aquifères karstiques : le SNO Karst.

Ses enjeux d'alimentation en eau potable permettent également la proposition d'approches innovantes pour une meilleure gestion durable de la ressource en eau.

Les pistes proposées s'appuient sur les investigations menées sur le système karstique multicouche du Toulon. Néanmoins, la transposition sur des systèmes à enjeux similaires est finalement une des perspectives majeures de ces travaux.

Ce travail a contribué à l'amélioration des connaissances des aquifères karstiques en proposant une approche multi-traceurs et un suivi haute-résolution des paramètres hydrodynamiques et physico-chimiques. L'approche est transposable à d'autres systèmes analogues et offre une aide pour une gestion raisonnée de la ressource en eau. 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 aux interrogations d'un public directement concerné par le site d'étude.

BIBLIOGRAPHIE

A

Adinolfi Falcone R., Falgiani A., Parisse B., Petitta M., Spizzico M., Tallini M. (2008) Chemical and isotopic (δ18O, δ2H, δ13C, 222Rn) multi-tracing for groundwater conceptual model of carbonate aquifer (Gran Sasso INFN underground laboratory - central Italy). *Journal of Hydrology* 357(3-4), 368-388.

Allen G., Pereira L., Raes D., Smith M. (1998) Crop evapotranspiration – Guidelines for computing crop water requirements. *FAO irrigation and drainage paper* 56, 326p.

Aller L., bennet T., Lehr J., Petty R. (1985) DRASTIC: a standardized system for evaluating ground water pollution potential using hydrogeological settings. *US EPA, Robert S. Kerr Environemental research Laboratory, Ada, OK*, EPA/600/2-85-0108, 163p.

Alexia P., Moussa I., Payre V., Probst A., Probst J.-L. (2015) Flood survey of nitrate behaviour using nitrogen isotope tracing in the critical zone of a French agricultural catchment. *Comptes rendus Geoscience* 347 (7-8): 328-337.

Amit H., Lyakhovsky L., Katz A., Starinsky A., Burg A. (2002) interpretation of spring recession curves. *Ground Water* 40, 543-551.

Amraoui F., Razack M., Bouchaou L. (2003) Turbidity dynamics in karstic systems. Example of Ribaa and Bittit springs in the middle Atlas (Marrocco). *Hydrological Sciences Journal* 48, 971-984.

Anderson I., Levine J. (1986) Relative rates of nitric oxide and nitrous oxide production by nitrifiers, denitrifiers and nitrate respiration. *Applied Environmental Microbiology* 51, 938-945.

Andersson K., Hooper A. (1993) O_2 and H_2O and each the source of one O in NO_2 produced from NH3 by Nitrosomonas : ^{15}N evidence. *FEBS Letters* 164, 236-240.

Andreo B., Ravbar N., Vias J.M., (2009) Source vulnerability mapping in carbonate (karst) aquifers by extension of the COP method: application to pilot sites. *Hydrogeology Journal* 17, 749-758.

Angeli B. (1996) – Etudes préliminaires sur l'établissement des périmètres de protection des sources du Toulon. Rapport de synthèse. Bureau d'études géologiques ANGELI. 104 p.

Angelini P. (1997) Correlatio and spectral analysis of twi hydrodeological systems in Central Italy. *Hydrological Sciences Journal* 42, 425-438

Aquilina L., Ladouche B., Dörfliger N. (2005) Recharge processes in karstic systems investigated through the correlation of chemical and isotopic composition of rain and springwaters. *Applied Geochemistry* 20(12), 2189-2206.

Aravena R., Evans M., Cherry J. (1993) Stable isotopes of oxygen and nitrogen in source identification of nitrate from septic systems. *Ground Water* 31, 180-186.

Atkinson T.C., Smoth D.I.., Lavis J.J., Whitaker R.J. (1973) Experiments in tracing underground waters in limestones. *Journal of Hydrology* 19, 323-349.

Atteia O., Kozel R. (1997) – Particle size distribution in waters from a karstic aquifer: from particles to colloids. *Journal of Hydrology* 201, 102-119.

Atteia O., Perret D., Adatte T., Kozel R., Rossi P. (1998) Characterization of natural colloids from a river and spring in karstic basin. *Environmental Geology* 34, 257-269.

Auckenthaler A., Raso G., Huggenberger P. (2002) Particle transport in a karst aquifer: Natural and artificial tracer experiments with bacteria, bacteriophages and microspheres. *Water Science & Technology* 46:131–138.

Ayadi Y., Mokadem N., Besser H., Khelfi F., Harabi S., Hamad A., Boyce A., Laouar R., Hamed Y. (2018) Hydrochemistry and stable isotope ($\delta^{18}O$ and $\delta^{2}H$) tools applied to the study of karst aquifers in southern Mediterranean basin (Teboursouk area, NW Tunisia). *Journal of African Earth Sciences* 137, 208-217.

B

Bailly-Comte V., Jourde H., Roesch A., Pistre S., Batiot-Guilhe C., (2008) Time series analyses for karst/river interactions assessment: case of the Coulazou River (southern France). *Journal of Hydrology* 349 (1-2), 98-114.

Baioni D., Tramontana M. (2015) – Evaporite karst in three interior layered deposits in lano Chaos, Mars. *Geomorphology* 245, 15-22.

Bakalowicz M., (1979) Contribution de la géochimie des eaux à la connaissance de l'aquifère karstique et de la karstification. *Thèse de Doctorat, Université Pierre et Marie Curie, Paris VI*, p. 269.

Bakalowicz M. (1982) La genèse de l'aquifère karstique vue par un géochimiste. *Karst Larra* 82, 159-174.

Bakalowicz M. (1994) Water geochemistry: Water quality and dynamics. Groundwater ecology. *J. Gilbert, D.L. Danielopol, and J.A. New York, Academic Press, INC***,** 571 p.

Bakalowicz M., (1995) La zone d'infiltration des aquifères karstiques. Méthodes d'étude. Structure et fonctionnement. *Hydrogéologie* 4, 3-21.

Bakalowicz M., (2005) Karst groundwater: a challenge for new resources. *Hydrogeology Journal 13*, 148-160.

Bakalowicz M., (2008) Le milieu karstique : études et perspectives, identification et caractérisation de la ressource. *Colloque hydrogéologie et karst au travers des travaux de Michel Lepiller*, 17 p.

Bambier A., Capdeville J.-P., Cariou E., Floc'h J.-P., Gabilly J., Hantzbergue P., (1983) *Carte géologique de la France au 1/50 000, La Rochefoucauld. Feuille XVIII-31, BRGM, Orléans. Notice*, 30 p.

Barbieri M., Boschetti T., Petitta M., Tallini M. (2005) Stable isotope (2H, 18O and 87Sr/86Sr) and hydrochemistry monitoring for groundwater hydrodynamics analysis in a karst aquifer (Gran Sasso, Central Italy). *Applied Geochemistry* 20(11), 2063-2081.

Bateman A.S., Kelly S.D. (2007) Fertilizer nitrogen isotope signatures. *Isotopes Environmental Health Studies* 43: 237-247.

Batiot C. (2002) Etude expérimentale du cycle du carbone en régions karstiques. Apport du carbone organique et du carbone minéral dans la connaissance hydrogéologique des systèmes. Site expérimental de Vaucluse, Jura, Larzac, région Nord-Montpelliéraine, Nerja (Espagne). *Thèse de Doctorat, Université d'Avignon et des Pays de Vaucluse, France*. 247 p.

Batiot C., Emblanch C., Blavous B. (2003a) Carbone organique total (COT) et Magnésium ($Mg2^{+}$) : deux traceurs complémentaires du temps de séjours dans l'aquifère karstique. *Compte rendus Géoscience* 335, 205-214.

Batiot C., Linan C., Andreo B., Emblanch C., Carrasco F., Blavoux B. (2003b) Use of TOC as tracer of diffuse infiltration in a dolomitic karst system : The Nerja Cave (Adalousia, southern Spain). *Geophysical Research Letters* 30, 2179.

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 en sciences naturelles, Université Blaise Pascal – Clermont Ferrand II. 245p.

Bicalho C., Batiot-Guilhe C., Seidel J.L., Van Exter S., Jourde H. (2012) Geochemical evidence of water characterization and hydrodynamic responses in a karst aquifer. *Journal of Hydrology* 450-451, 206-218.

Birk S., Liedl R., Sauter M., (2004) Identification of a localized recharge and conduit flow by combined analysis of hydraulic and physico-chemical sopring responses (Urenbrunnen, SW-Germany). *Journal of Hydrology* 286, 179-193.

Blavoux B., Mudry J. (1983) Décomposition chimique des hydrogrammes du karst. *Hydrogéologie-géologie de l'ingénieur* 4, 270-278.

Blavoux B., Mudry J. (1986) Influence des pluies estivales sur la qualité des réserves de l'aquifère karstique ; rôle du sol et de l'épikarst dans la concentration des chlorures. *Bullentin de la Société Géologique de France* 2, 667-674.

Blum A., Chery L., Barbier J., Baudry D., petelet-Giraud E. (2002) Contribution à la caractérisation des états de reference géochimique

des eaux souterraines. Outils et méthodologie. *Rapport BRGM RP-51549-FR.* 111p.

Bonacci O., (1993) Karst springs hydrographs as indicators of karst aquifer. *Hydrogeology Journal Sciences* 386, 55-66.

Böttcher J., Strebel O., Voerkelius S., Schmidt H. (1990) Using isotope fractionation of nitrate-nitrogen and nitrate-oxygen for evaluation of microbial denitrification in a sandy aquifer. *Journal of Hydrology* 114, 413-424.

Bouchaou L., Mangin A., Chauve P. (2002) Turbidity mechanism of water from a karstic spring : example of the Ain Asserdoune spring (Beni Mellal Atlas, Marrocco). *Journal of Hydrology* 265, 34-42.

Bouchaou L., Michelot J.-L., Qurtobi M., Zine N., Gaye C.B., Aggarwal P.K., Marah H., Zerouali A., Taleb H., Vengosh A. (2009) Origin and residence time of groundwater in the Tadla basin (Morocco) using multiple isotopic and geochemical tools. *Journal of Hydrology* 379(3-4), 323-338.

Bouchaou L., Michelot J.L., Vengosh A., Hsissou Y., Qurtobi M., Gaye C.B., Bullen T.D., Zuppi G.M. (2008) Application of multiple isotopic and geochemical tracers for investigation of recharge, salinization, and residence time of water in the Souss-Massa aquifer, southwest of Morocco. *Journal of Hydrology* 352(3-4), 267-287.

Bourguet L. (1966) Etude hydrogéologique des sources du Toulon. Rapport BURGEAP. 35 p.

Bretz J. (1942) Vadose and phreatic features of limestone caves. *The journal of Geology*, 675-811.

Briand C. (2014) Approche multi-traceurs pour la détermination de l'origine des nitrates dans les eaux souterraines : exemple d'une source karstique dans les Landes. *Thèse de Doctorat. Université Pierre et Marie Curie Paris VI*. 298 p.

Briand C., Sebilo M., Louvat P., Chesnot T., Vaury V., Schneider M., Plagnes V. (2017) Legacy of contaminant N sources to the NO3- signature in rivers: a combined isotopic (δ^{15}N-NO_3^-, δ^{18}O-NO_3^-, δ^{11}B) and microbiological investigation. *Scientific Reports* 7, 41703.

Brkic Z., Kuhta M., Hunjak. (2018) Groundwater flow mechanism in the well-developed karst aquifer system in the western Croatia: Insights from spring discharge and water isotopes. *Catena* 161, 14-26.

Brown M., Wigley T., Ford D. (1969) – Water budget studies in karst aquifers. *Journal of Hydrology* 9, 113-116.

Bu H., Song W., Zhang Y., Meng W. (2017) Sources and fate of nitrate in the Haicheng River basin in Northeast China using stable isotope of nitrate. *Ecological Engineering* 98: 105-113.

Bucci A., Petrella E., Naclerio G., Alloca V., Celico F. (2015) Microorganisms as contaminants and natural tracers : a 10-year research in some carbonate aquifers (southern Italy). Environmental Earth Sciences 74 : 173-184.

Burger A. (1983) Prospection et captage des eaux souterraines des roches carbonates du Jura. *Société Suisse de l'Industrie du Gaz et des Eaux, Zurich*, 533-583.

Butscher C., **Huggenberger P.** (2009) Enhanced vulnerability assessment in karst areas by combining mapping with modeling approaches. *Science of the Total Environment* 407, 1153-1163.

C

Cabaret O., Gutierrez T., Perrin J. (2012) - Connaissances des karsts aquitains - Étude des karsts libres et sous couverture du département de la Dordogne - Module 4 - Année 3. Rapport final BRGM/RP-61681-FR, 82 p., 45 fig., 6 ann.

Cabaret O., Gutierrez T., Perrin J. avec la collaboration de Goubier J.-B., Lorette G., Lastennet R. et Minvielle S. (2014) - Connaissances des karsts aquitains - Étude des karsts libres et sous couverture du département de la Dordogne - Module 4 - Année 4. Rapport final.BRGM/RP-62902-FR, 131 p., 110 ill., 10 ann.

Castany G., Margat J. (1977) Dictionnaire français d'hydrogéologie. *Editions du BRGM*, 249p.

Celle-Jeanton H., Emblanch C., Mudry J., Charmoille A. (2003) Contribution of time tracers (Mg^{2+}, TOC, $\delta^{13}C_{TDIC}$, NO_3^-) to understand the role of the unsaturated zone : A case study – Karst aquifers in the Doubs valley, eastern France. *Geophysical Research Letters* 30.

Cey E.E., Rudolph D.L., Parkin G.W., Aravena R. (1998) Quantifying groundwater discharge to a small perennial stream in southern Ontario, Canada. *Journal of Hydrology* 210(1-4): 21-37.

Charlier J.-B., Bertrand C., Mudry J. (2012) Conceptual hydrogeological model of flow and transport of dissolved organic carbon in small Jura karst system. *Journal of Hydrology* 460, 52-64.

Chen Z., Auler A., Bakalowicz M., Drew D., griger F., Hartman J., Jiang G., Moosdorf N., Richts A., Stevanovic Z., Veni G., Goldscheider N. (2017) The World Karst Aquifer Mapping project: concept, mapping procedure and map of Europe. *Hydrogeology Journal* 25, 771-785.

Chigot D., **Mazurier C.** (1992) datation des eaux souterraines profondes en Dordogne. *Rapport BRGM R36314 AQI 4Q 92*. 79p.

Cholet C. (2017) Fonctionnement hydrogéologique et processus de transport dans les aquifères karstiques du Massif du Jura. *Thèse de Doctorat ès Sciences. Université de Besançon*. 174p.

Cholet C., Steinmann M., Charlier J.-B., Denimal S. (2018) Characterizing fluxes of trace metals related to dissolved and suspended matter during a storm event: application to a karst aquifer using trace metal and rare earth elements as provenance indicators. *Hydrogeology Journal*, https://doi.org/10.1007/s10040-018-1859-2.

Chu S., Zhang D., Zhi Y., Wang B., Chi C.-P., Zhang D., Liu Y., Zhou P. (2018) Enhances removal of nitrate in the maize rhizosphere by plant growth-promoting *Bacillus megaterium* NCT-2, and its colonization pattern in response to nitrate. *Chemosphere* 208, 316-324.

Corbier P. (2013) Synthèse des principaux documents relatifs à la situation quantitative et qualitative des ressources en eau de Dordogne. *Rapport BRGM RP 62613-FR*. 66p.

COST ACTION 65 (1995) Hydrogeological aspects of groundwater protection in karstic areas. E. 16457. *Brussels, European Commission, Directorate-General XII Science, Research and Development*. 446 p.

Covington M., Wicks C., Saar M. (2009) A dimensionless number describing the effects of recharge and geometry on discharge from simple karstic aquifer. *Water Resources Research* 45 (11) : W11410.

Craig H. (1961) Isotopic variations in meteoric waters. *Science* 133, 1702-1703.

Cravotta C. (1997) Use of stable isotopes of carbon, nitrogen and sulfur to identify sources of nitrogen in surface waters in the lower susquehanna River basin, Pennsylvania. *USGS Report file.* 104 p.

Cubaynes R., Faure P., Hantzpergue P., Pélissié T., Rey J. (1989) Le Jurassique du Quercy : unités lithostratigraphiques, stratigraphie et organisation séquentielle, évolution sédimentaire. *Géologie de la France* 3, p. 33-62.

Currens J.C. (1999) Mass flux of agricultural nonpoint-source polluants in a conduit-flow-dominated karst aquifer. Logan County, Kentucky. *Report of Investigations 1 Serie XII, Kentucky geological Survey, university of Kentucky.* 151p.

Cvijic L. (1960) Ma géographie des terrains calcaires. *Académie des sciences et des arts serbe*, 147-168.

D

Dandurand G. (2011) – Cavités et remplissages de la nappe karstique de Charente (basin de la Touvre, La Rochefoucauld). *Thèse de Doctorat ès Sciences. Université de Bordeaux 3*. 324 p.

De Roos A.J., Ward M.H., Lynch C.F., Cantor K.O., (2003) Nitrate in public water systems and the risk of colon and rectum cancers. *Epidemiology* 14: 640-649.

Debyser J., Le Pichon X., Montadert L. (1971) Histoire structurale du golfe de Gascogne. *Symposium. – Technip, Paris 22*.

Delbart C., Valdes D., Barbecot F., Tognelli A., Richon P., Couchoux (2014) temporal variability of karst aquifer response time established by the sliding windows cross-correlation method. *Journal of Hydrology* 511, 580-588.

Delfaud J. (1970) Résumé d'une recherche sur la dynamique du domaine aquitano-pyrénéen

durant le Jurassique et le Crétacé inférieur. *Actes Soc. Linn. Bordeaux, vol. spécial*, 139 pp.

Derégnaucourt D., Boillot G. (1982) Structure géologique du golfe de Gascogne. *Bulletins BRGM 1*, 149-178.

Derse E., Knee K.L., Wankel S.D., Kendall C., Berg Jr., D.J., Paytan A. (2007) Identifying sources of nitrogen to Hanalei bay, Kauai, utilizing the nitrogen isotope signature of microalgae. *Environmental Science Technology* 41, 5217-5223.

Dochartaigh B., MacDonald A., Fitzsimons V., Ward R. (2015) Scotland's aquifers and groundwater bodies. *Open report OR/15/028, British Geological Survey.* 75p.

Doctor D., Lojen S., Horvat M. (2000) A stable isotope investigation of the classical karst aquifer : evaluating karst groundwater components for water quality preservation. *Acta carsologica* 5, 79-92.

Doerfliger N., jeannin P.-Y., Zwahlen R. (1999) Water vulnerability assessment in karst environments: a new method of defining protection areas using a multi attribute approach and GIS tools (EPIK method). *Environmental Geology* 39, 165-176.

Drogue C. (1969) Contribution à l'étude quantitative des systèmes hydrologiques karstiques d'apr_s l'exemple de quelques karsts périméditerranéens. *Thèse de Doctorat, Université de Montpellier.*

Drysdale R., Pierotti L., Piccini L., Baldacci F. (2001) Suspended sediments in karst spring waters near Massa (Tuscany), Italy. *Environmental Geology* 40, 1037-1050.

Durka W., Schulze E.-D., Gebauer G., Voerkelius S. (1994) Effects of forest decline on uptake and leaching of deposited nitrate determined from ^{15}N and ^{18}O measurements. *Nature* 372, 765-767.

Dussart-Baptista L., Massei N., J. P., Jouenne T. (2003) Transfer of bacteria-contaminated particles in a karst aquifer : evolution of contaminated materials from a sinkhole to a spring. *Journal of Hydrology 284*, 285-295.

E

Edmunds W.M., Smedley P.L. (2000) Residence time indicators in groundwater: the East Midlands Triassic sandstone aquifer. *Applied Geochemistry* 15(6), 737-752.

Einsiedl F. (2005) Flow system dynamics and water storage of a fissured-porous karst aquifer characterized by artificial and environmental tracers. *Journal of Hydrology* 312, 312-321.

Einsiedl F., **Mayer B.** (2006) Hydrodynamic and microbial processes controlling nitrate in a fissured-porous karst aquifer of the franconian Alb, Southern Germany. *Environmental Science and Technology* 40, 6697-6702.

El-Asrag A., Al-Gamal S., Youssef A., Ahmed D. (2005) Spatial and temporal variation of rainwater stable isotopes in Egypt and the east Mediterranean. *Theoretical and Applied Climatology* 74, 191-202.

El Gaouzi F.J., Sebilo M., Ribstein P., Plagnes V., Boeckx P., Xue D., Derenne S., Zakeossian M. (2013) Using $\delta^{15}N$ and $\delta^{18}O$ values to identify sources of nitrate in karstic springs in the Paris basin (France). *Applied Geochemistry* 35, 230-243.

El-Hakim M., Bakalowicz M., (2007) Significance and origin of very large regulating power of some karst aquifers in the Middle East. Implication on karst aquifer classification. *Journal of Hydrology* 333, 329-339.

Eller K., Katz B., (2017) Nitrogen Source Inventory and Loading Tool: An integrated approach toward restoration of water quality impaired karst springs. *Journal of Environmental Management* 196, 702-709.

Emblanch C., Blavoux B., Puig J.-M., Mudry J. (1998) Dissolved organic carbon of infiltration within the autogenic karst hydrosystem. *Geophysical Research Letters* 25, 1459-1462.

Emblanch C., Zuppi G.M., Mudry J., Blavoux B., Batiot C. (2003) Carbon 13 of TDIC to quantify the role of the unsaturated zone : the example of the Vaucluse karst system (Southeastern France). *Journal of Hydrology 279* 1-4, 262-274.

Ender A., Goeppert N., Goldscheider N. (2018) Hydrogeological controls of variable microbial water quality in a complex subtropical karst system in Northern Vietnam. *Hydrogeology Journal.*

Eris E., **Wittenberg H.** (2015) Estimation of baseflow and water transfer in karst catchments in Mediterranean Turbey by nonlinear recession analysis. *Journal of Hydrology* 530, 500-507.

Estafanía Lazo-Herenda S., Hunt B.B., Smith B.A., Gary R.H. (2011) A survey of dissolved oxygen in groundwater during drought conditions, Barton Springs segment of the Edwards aquifer, Central Texas. *World Lakes Conference, Austin, Texas*.

F

Faillat J.-P., Puradimaja D.J. (1995) Evaluation à l'échelle Régionale des contraintes hydrochimiques sur la gestion des eaux souterraines karstiques. Exemple du Languedoc-Roussillon. *Hydrogéologie* 1, 97-112.

Fairchild I.J., Borsato A., Tooth A.F., Frisia S., Hawkesworth C.J., Huang Y., McDermott F., Spiro B. (2000) Controls on trace element (Sr-Mg) compositions of carbonate cave waters: implications for speleothem climatic records. *Chemical Geology* 166(3-4), 255-269.

Filippini M., Squarzoni G., De Waele J., Fiorucci A., Vigna B., Grillo B., Riva A., Rossetti S., Zini L., Casagrande G., Stumpp C., Gargini A. (2018) Differentiated spring behavior under changing hydrological conditions in an alpine karst aquifer. *Journal of Hydrology* 556, 572-584.

Fleury P., Plagnes V., Bakalowicz M. (2007) Modelling of the functioning of karst aquifers with a reservoir model: Application to Fontaine de Vaucluse (South of France). *Journal of Hydrology* 345, 38-49.

Fogel M., Cifuentes L. (1993) Isotope fractionation during primary production. In : Engel M; and Macko S. (eds). *Organic geochemistry, Plenum Press, New-York*, 73-98.

Ford D., Williams P. (2007) Karst geomorphology and hydrology. *Unwin Hyman*. London.

Foster S.S.D. (1987) Fundamental concepts in aquifer vulnerability, pollution risk and protection strategy. *In: Van Duijevenboden, W., Van Waegeningh, H.G. (Eds) Vulnerability of Soil and Groundwater to Polluants* 38, 69-86.

Fournier M. (2006) – Identification des modalités de transport et de la vulnérabilité du karst de la craie. Application de nouveaux outils statistiques d'analyse des donées au système du Hannetôt (Seine-Maritime, France). *Thèse de Doctorat, Université de Rouen, France*. 233 p.

Fournier M., Massei N., Bakalowicz M., Dussart-Baptista L., Rodet J., Dupont J.-P. (2007) – Using turbidity dynamics and geochemical variability as a tool for understanding the behavior and vulnerability. *Hydrogeology Journal* 15, 689-704.

Fu T., Chen H., Wang K., (2016) – Structure and water storage capacity of a small karst aquifer based on stream discharge in southwest China. *Journal of Hydrology* 534, 50-62.

G

Gale S. (1984) – The hydraulics of conduit flow in carbonate aquifers. *Journal of Hydrology* 70, 309-327.

Galfi H., Österlund H., Marsalek J., Vuklander M. (2016) Indicator bacteria and associated water quality consituents in strormwater and snowmelt from four urban catchments. *Journal of hydrology* 539, 125-140.

Gat J., 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 air-sea interaction patter. *Tellus series B-Chemical and Physical Meteorology* 55, 953-965.

Genthon P., Bataille A., Fromant A., D'Hulst D., Bourges F. (2005) Temperature as a marker for karstic waters hydrodynamics. Inferences from 1 year recording at La Peyrére cave (Ariège; France). *Journal of Hydrology* 311, 157-171.

Genty D., Blamart D., Ghaleb B., Plagnes V., Causse C., Bakalowicz M., Bourges F. (2006) Timing and dynamics of the last deglaciation from European and North African $\delta^{13}C$ stalagmite profiles – Comparison with Chinese and South Hemisphere stalagmites. *Quarternary Science Reviews* 25(17), 2118-2142.

Geyer T., Birk S., Licha T., Liedl R., Sauter M. (2007) Multitracer test approach to characterize reactive transport in karst aquifers. *Ground Water* 45, 36-45.

Geyer T., Birk S., Liedl R., Sauter M. (2008) Quantification of temporal distribution of recharge in karst systems from spring hydrographs. *Journal of Hydrology* 348, 452–463.

Ghabayen S.M.S., McKee M., Kemblowski M. (2006) Ionic and isotopic ratios for identification of salinity sources and missing data in the Gaza aquifer. *Journal of Hydrology* 318(1-4), 360-373.

Gil-Márquez J.P., Barberá J.A., Andreo B., Mudarra M. (2017) Geochemical evolution of groundwater in an evaporate karst system : Brujuelo Area (Jaén, Spain). *Procedia Earth and Planetary Science* 17, 336-339.

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.

Gionfantini R., Zuppi G. (2003) Carbon isotope exchange rate of DIC in karst groundwater. *Chemical Geology* 197, 319-336.

Glangeaud L. (1935) Etude hydrogéologique de l'alimentation en eau potable de la ville de Périgueux. Rapport Université Paris-Sorbonne.

Goldscheider N., Pronk M., Zopfi J. (2010) New insights into the transport of sediments and microorganisms in karst groundwater by continuous monitoring of particle-size distribution. *Geologica Croatica* 63/2, 137-142.

Goubier J.-B. (2013) Etude de la fracturation en Dordogne. Rapport de stage, BRGM Aquitaine. Ecole Nationale Supérieure en Environnement Géoressources et Ingénierie du Développement Durable. 144 p.

Grasso D.A., Jeannin P.Y., Zwahlen F., (2003) A deterministic approach to the coupled analysis of karst springs hydrographs and chemographs. *Journal of Hydrology* 271, 65-76.

Guillocheau F., Brault N., Thomas E., Barbarand J., Bonnet S., Bouequin S., Esteoule-Choux J., Guennoc P., Menier D., Neraudeau D., Proust J.-N., Wyns R. (2003) Histoire géologique du Massif Armoricain depuis 140 Ma (Crétacé-Actuel). *Association des Géologues du Bassin de Paris* 40, 13-29.

Gufu G., Manea A., Vorreiter L., Leishman M. (2018) Do invasive exotic and native freshwater plant species respond similarity to low additional nitrate doses ? *Aquatic Botany* 151, 1-8.

Gutierrez M., Neill H., Grand R. (2004) Metals in sediment of springs and cave streams as environmental indicators in karst areas. *Environmental Geology* 46, 1079-1085.

H

Hantzpergue P., Maire P. (1981) Les plates-formes de l'Aunis et de l'Angoumois au Jurassique supérieur: caractères sédimentologiques et paléogéographie. Bull. Soc. Géol. France, (7), t. XXIII, n°5, p. 493-500.PLATEL J.-P. (1996) - Stratigraphie, sédimentologie et évolution géodynamique de la plateforme carbonatée du Crétacé supérieur du Nord du bassin d'Aquitaine. *Géologie de la France*, 33-58.

Hartmann A., Goldscheider N., Wagener T., Lange J., Weiler M. (2014) Karst water resources in a changing world: Review of hydrological modeling approach. *Revoews of Geophysics* 52, 218-242.

Heaton T.H.E., Stuart M.E., Sapiano L., Sultana M.M., (2012) An isotope study of the sources of nitrate in Malta's groundwater. *Journal of Hydrology* 414-415, 244-254.

Heaton T.H.E., Trick J.C., Williams G.M., (2005) Isotope and dissolved gas evidence for nitrogen attenuation in landfill leachate dispersing into a chalk aquifer. *Applied Geochemistry* 20: 933-945.

Hébrard O., Pistre S., Cheynet N., Dazy J., Batiot-Guilhe C., Seidel J.-L. (2006). Origine des eaux des émergences karstiques chlorurées du Languedoc-Roussillon. *Comptes Rendus Geosciences* 338(10): 703-710.

Heinz B., Birk S., Liedl R., Geyer T., Straub KL., Bester K., Kappler A. (2006) Vulnerability of a karst spring to wastewater infiltration (Gallusquelle, Southwest Germany). *Austrian Jounral of Earth Sciences* 99, 11-17.

Heinz B., Birk S., Liedl R., Geyer T., Straub KL., Andresen J., Bester K., Kappler A.

(2009) Water quality deterioration at a karst spring (Gallusquelle, Germany) due to combined sewer overflow: evidence of bacterial and micro-polluant contamination. *Environmental Geology* 57, 797-808.

Herman A.K., Tancredi J.H., Toran L., White W.B. (2006) Mineralogy of suspended sediment in three karst springs. *Hydrogeology Journal* 15, 255-266.

Högberg P. (1997) Transley review n°95: 15N natural abundance in soil-plant systems. *New Phytologist* 137, 179-203.

Hollocher T. (1984) Source of oxygen atoms of nitrate in the oxidation of nitrite by Nitrobacter agilis and evidence against P-O-N anhydride mechanism in oxidative phosphorylation. *Archives of Biochemistry and Biophysics* 233, 721-727.

Horibe Y., Shigehara K., Takakuwa Y. (1973) Isotopic separation factors of carbon-dioxide-water system and isotopic composition of atmospheric oxygen. *Journal of Geophysical Research* 78, 2 625-2 629.

Houillon N. (2016) la dynamique du carbone inorganique dans le continuum sol-épikarst-cavité du site de la grotte de Lascaux (Dordogne, France) : apports des monitorings hydrogéochimiques et microclimatiques continus pour l'étude de l'aérologie et le développement d'une méthode de simulation des processus calco-carboniques aux paroirs. *Thèse de Doctorat, Université de Bordeaux*. 370 p.

Houillon N., Lastennet R., Denis A., Malaurent P., Minvielle S., Peyraube N. (2017) Assessing cave internal aerology in understanding carbon dioxide (CO_2) dynamic: implications on calcite mass variation on the wall of Lascaux cave (France). *Environmental Earth Sciences* 76:70.

Huebsch M., Fenton O., Horan B., Hennessy D., Richards K.G., Jordan P., Goldscheider N., Butscher C., Blum P. (2014) Mobilisation or dilution ? Nitrate responses of karst springs to high rainfall events. *Hydrology and Earth System Sciences* 18, 4423-4435.

Huneau F., Jaunat K., Kavouri K., Plagnes V., Rey F., Dörfliger N. (2013) Intrinsic vulnerability mapping for small moutainous karst aquifers, implementation of the new PapRIKa method to Western Pyrenees (France). *Engineering Geology* 161, 81-93.

Husson E. avec la collaboration de Gutierrez T., Camus H., Astruc J.-G., Cabaret O., Galaup S., Couëffé R. (2015) Origine, caractérisation et distribution prédictive du Karst sur la bordure Nord-Aquitaine. Synthèse bibliographique & rapport d'avancement. *Rapport BRGM RP 65041-FR*. 63p.

Husson E. avec la collaboration de Camus H., Lerouge C., Lasseur E., Cabaret O., Saltel M., Pedron N., Couëffé R. (2017) Origine, caractérisation et distribution prédictive du Karst sur la bordure Nord-Aquitaine. Rapport final. *Rapport BRGM RP 66812-FR*. 63p. 124p.

I, J

Jaunat J., Celle-Jeanton H., Huneau F., Dupuy A., Le Coustumer P. (2013) Characterisation of the input signal to aquifers in Francg Basque Country: Emphasis on parameters influencing in chemical and isotopic composition of recharge waters. *Journal of Hydrology* 496, 57-70.

Jeannin P.-Y., Hessenauer M., Malard A., Chapuis V. (2016) Impact of global change on karst groundwater mineralization in Jura Mountains. *Science of the Total Environment* 541, 1208-1221.

Jirakova H., Huneau F., Celle-Jeanton H., Hrkal Z., Le Coustumer P. (2009) Paleorecharge 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., Le Coustumer P. (2011) Insights into paleorecharge conditions for European deep aquifers. *Hydrogeology Journal* 19, 1545-1562.

Johnson C.J., Bonrud P.A., Dosch T.L., Kilness A.W., Senger K.A., Bush D.C., Meyer M.R. (1987) Fatal outcome of methemoglobinemia in an infant. *Journal of American Medical Association* 257, 2796-2797.

Joseph C., Rodier C., Soulte M., Sinegre F., Baylet R., Deltour P. (1988) Approche des transferts de pollution bactérienne dans une crue karstique par l'étude des paramètres physico-chimiques. *Revue des sciences de l'eau* 1-2, 73-106.

Jourde H., Massei N., Mazzili N., Binet S., Batiot-Guilhe C., Labat D., Steinmann M., Bailly-Comte V., Seidel J.-L., Arfib B., Charlier J.-B., Guinot V., Jardani A., Fournier M., Aliouache M., Babic M., Bertrand C., Brunet P., Boyer J.-F., Bricquet P.-P., Camboulive T., Carrière S., Celle-Jeanton H., Chalikakis K., Chen N., Cholet C., Clauzon V., Dal Soglio L., Danquigny C., Défargue C., Denimal S., Emblanch C., Hernandez F., Gillon M., Guttierez A., Hidalgo Sanchez L., Hery M., Houillon N., Johannet A., Jouves J., Jozja N., Kadouche B., Leonardi V., Lorette G., Loup C., Marchand P., de Montety V., Muller R., Ollivier C., Sivelle V., Lastennet R., Maréchal J.-C., perotin L., perrin J., Petre M.-A., Peyraube N., Pistre S., Plagnes V., Probst A., Probst J.-L., Simler R ;, Stefani V., Valdes-Lao D., Viseur S., Wang X. (2018) SNO KARST : a French network of observatories for the multidisciplinary study of critical zone processes in karst watersheds and aquifers. *Vadose Zone Journal*. 17:180094.doi10.2136/vzj2018.04.0094

Jouves J. (2018) Origine, caractérisation et distribution prédictive des structures karstiques. *Thèse de Doctorat, Université d'Aix-Marseille*.

K

Karpoff (1970) Alimentation en eau potable de Périgueux. Note hydrogéologique sommaire. 7 p.

Kattan Z. (1997) Environmental isotope study of the major karst springs in Damascus limestone aquifer systems: case of the Figeh and Barada springs. *Journal of Hydrology* 193(1-4), 161-182.

Katz B.G., Catches J.S., Bullen T.D., Michel R.L. (1998) Changes in the isotopic and chemical composition of ground water resulting from a recharge pulse from a sinking stream. *Journal of Hydrology* 211(1-4), 178-207.

Katz B.G., Sepulveda A.A., Verdi R.J. (2009) Estimating nitrogen loading to groundwater and assessing vulnerability to nitrate contamination in a large karstic spring basin, Florida. *Journal of the American Water Resources Association* 45 (3) : 607-627.

Kavouri K., Plagnes V., Tremoulet J., Döerfliger N., Rejiba F., Marchet P., (2011) PaPRIKa : a method for estimating karst resource and source vulnerability-application to the Ouysse karst system (southwest France). *Hydrogeology Journal* 19, 339-353.

Kendall C. (1998) Tracing nitrogen sources and cycling in catchments. In: Kendall C., McDonnell J.J., (Eds), *Isotope Tracers in Catchment Hydrology*. *Elsevier, Amsterdam*, 521-576.

Kendall C., Elliott E.M., Wankel S.D. (2007) Tracing anthropogenic inputs of nitrogen to ecosystems. In: Michener R., Lajtha K., (Eds). Stable Isotopes in Ecology and Environmental Science. *Blackwell Publishing*, 375-449.

Kiraly L. (1975) Rapport sur l'état actuel des connaissances des caractères physiques des roches karstiques. *International Union Geological Sciences, Hydrogeology of karstic terrains* 3, 53-67.

Kiraly L. (1998) Modelling karst aquifers by the combined discrete channel and continuum approach. *Bulletin d'Hydrogéologie*16, 77-98.

Klimchouk A. (2004) Towards defining, delimitinf and classifying epikarst: its origin, processes and variants of geomorphic evolution. *Speleogenesis and Evolution of Karst Aquifers* 2, 1-13.

Kloppmann W., Négrel P., Casanova J., Klinge H., Schelkes K., Guerrot C. (2001) Halite dissolution derived brines in the vicinity of a Permian salt dome (N German Basin). Evidence from boron, strontium, oxygen, and hydrogen isotopes. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 65(22): 4087-4101.

Kroopnick P., Craig H. (1972) Atmospheric oxygen : isotopic composition and solubility fractionation. *Science* 175. pp 54-55.

Kumar S., Nicholas D., WIlliams E. (1983) Definitive ^{15}N NMR evidence that water serves as a source of 'O' during nitrite oxidation by Nitrobacter agilis. *FEBS Letter* 152, 71-74.

L

Labat D., Mangin A. (2015) Transfer function approach for artificial tracer test interpretation in karstic systems. *Journal of Hydrology* 529, 866-871.

Labat D., Abadou R., Mangin A. (2000) Rainfall-runoff relations for karstic springs. Part I : convolution and spectral analyses. *Journal of Hydrology* 238 (3-4), 123-148.

Labat D., Mangin A., Ababou R. (2002) Rainfall-runoff relations for karstic springs: multifractal analyses. *Journal of Hydrology* 256, 176-195.

Lacroix M., Leboulanger T., Wang H.Q., Feeny V., Dupont J.-P., Meyer R. (1998) Mise en evidence des relations surface-endokarst par la microgranulométrie : exemple du karst crayeux haut-normand. *Bulletin de la Société Géologique de France* 169, 177-187.

Lacroix M., Rodet J., Wang H.Q., Massei N., Dupont J.-P. (2000) – origine des matières en suspension dans un système aquifère karstique : apport de la microgranulométrie. Comptes rendus Académie des Sciences Paris 330. pp 347-354.

Ladouche B., Luc A., 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(1-2), 150-164.

Ladouche B., Probst A., Viville D., Idir S., Baqué D., Loubet M., Probst J.L., Bariac T. (2001) Hydrograph separation using isotopic, chemical and hydrological approaches (Strengbach catchment, France). *Journal of Hydrology* 242(3-4), 255-274.

Lakey B., **Krothe N.** (1996) Stavle isotopic variation of storm discharge from a perennial karst spring, Indiana. *Water Resources Research* 32, 721-731.

Lambrakis N., Andreou S., Polydoropoulos P., Georgopoulos E., Bountis T. (2000) Nonlinear analysis and forecasting of brackish karst spring. *Water Resources Research* 36, 875-884.

Larocque M., Mangin A., Razack M., 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.

Lastennet R., (1994) Rôle de la zone non saturée dans le fonctionnement des aquifères karstiques. Approche par l'étude physico-chimique et isotopique du signal d'entrée et des exutoires du massif du Ventoux (Vaucluse). *Thèse de Doctorat, Université d'Avignon et des pays de Vaucluse*. 239 p.

Lastennet R., Huneau F., Denis A., (2004) Geochemical characterization of complex multilayer karstic systems. Springs of Périgueux, France. Proceedings of the international Transdisciplinary Conference on Development and Conservation of Karst Regions, Hanoi, Vietnam. 132-135.

Lastennet R., **Mudry J.**, (1997) Role of karstification and rainfall in the behavior of a heterogeneous karst system. *Environmental Geology 32*, 114-123.

Le Pochat G., Floc'h J.-P., Platel J.-P., Recoing M., (1986) *Carte géologique de la France au 1/50 000, Montbron. Feuille XVIII-32, BRGM, Orléans. Notice*, 48 p.

Le Pochat G., Guillot P.-L., Platel J.-P., Recoing M., Texier J.-P. (1980) Feuille Périgueux Est. Notice Carte géologique de la France à 1/50000. BRGM éd., 759. 35p.

Lecointre G. (1958) Groupement d'urbanisme de Périgueux (Dordogne). *Rapport du Service de la Cartographie de la France*. 4 p.

Leroux V. (2007) La production d'eau potable sur le secteur de Périgueux. Rapport de stage, Lyonnaise des eaux Agence Périgord. Ecole Nationale Supérieure d'Ingénieurs de Limoges. 46 p.

Liedl R., Sauter M., Hückinghaus D., Clemens T., Teutsc, G. (2003) Simulation of the development of karst aquifers using a coupled continuum pipe flow model. *Water Resources Research 39*.

Linares R., Roqué C., Gutiérrez F., Zarroca M., Carbonel D., Bach J., Fabregat I. (2017) The impact of drought and climate change on sinkhole occurrence. A case study from the evaporite karst of the Fluvia Valley, NE Spain. *Science of The Total Environment* 579, 345-358.

Li S., Liu C.-Q., Li J., Xue Z., Guan J., Lang Y., Ding H., Li L. (2013) Evaluation of nitrate source in surface water of westhern China

based on stable isotopes. *Environmental Earth Sciences* 68, 219-228.

Liu C.Q., Li S.L., Lang Y.C., Xiao H.Y. (2006) Using 15N and 18O values to identify nitrate sources in karst ground water, Guiyang, southwest China. *Environmental Science Technology* 40, 6928-6933.

Livrozet E. (1984). Influence of water inputs of the Loire on the bacteriological quality and chemical of karstic aquifer from Val d'Orleans. Orleans. *Thèse de Doctorat, Université d'Orléans*, 198p.

Lo Russo S., Amanzio G., Ghione R., De Maio M. (2014) Recession hydrographs and time series analysis of springs monitoring data: application on porous and shallow aquifers in mountain areas (Aosta Valley). *Environmental Earth Sciences* 73 (11), 7415-7434.

Lombardo Associates (2011) Onsite sewage Treatment and Disposal and Management Options (Newton, MA).

Long A.J., Putnam L.D. (2004) Linear model describing three components of flow in karst aquifers using ^{18}O data. *Journal of Hydrology* 296(1-4), 254-270.

López-Chicano M., Bouamama M., Vallejos A., Pulido-Bosch A. (2001) Factors which determine the hydrogeochemical behaviour of karstic springs. A case study from the Betic Cordilleras, Spain. *Applied Geochemistry* 16(9-10), 1179-1192.

Lorette G. (2013) Géomorphologie karstique en Dordogne, Etude des formes superficielles et souterraines pour la compréhension du fonctionnement des aquifères karstiques. *Rapport de stage, BRGM Aquitaine. Université d'Avignon et des Pays de Vaucluse.* 89 p.

Lorette G. (2014) Etude hydrogéologique des sources du Toulon (Dordogne). *Rapport de stage, Université de Bordeaux, Laboratoire I2M*. Université d'Avignon et des Pays de Vaucluse. 133 p.

Lorette G. (2015) Etude hydrogéologique des Sources du Toulon. pré-étude complémentaire. *Rapport du laboratoire I2M de l'université de Bordeaux*. 108 p.

Lorette G., Lastennet R., Peyraube N., Denis A. (2016) Examining the functioning of a multilayer karst aquifer. The case of Toulon springs. *In book: Eurokarst 2016, Neuchâtel*, 363-370.

Lorette G. (2018a) Multi-traçage des Sources du Toulon – Opération 2017. *Compte rendus du laboratoire I2M de l'Université de Bordeaux*. 25p.

Lorette G. (2018b) Multi-traçage des Sources du Toulon – Opération 2018. *Compte rendus du laboratoire I2M de l'Université de Bordeaux*. 28p.

Lorette G., Lastennet R., Peyraube N., Denis A. (2018a) Groundwater-flow characterization in a multilayered karst aquifer on the edge of a sedimentary basin in western France. *Journal of Hydrology* 566, 137-149.

Lorette G., Lastennet R., Peyraube N., Buquet D., Denis A.,Sebilo M., Vaury V. (2018b) Characterization of nitrate sources and fate in a multilayer karst aquifer using $\delta^{15}N$ and $\delta^{18}O$ values (Périgueux, France). *Poster, Eurokarst Besançon*.

Lorette G., Peyraube N., Lastennet R., Denis A., Sabidussi J., Fournier M., Viennet D., Gonand J., Villanueva J.D. (2018c) Evaluation of turbidity origins using particle size distribution coupled to SEM and high resolution monitoring. *Poster, Eurokarst Besançon*.

Luhmann A., Covington M., Alexander S., Chai S.Y., Schwartz B., Groten J., Alexander E. (2012) Comparing conservative and nonconservative tracers in karst and using them to estimate flow path geometry. *Journal of Hydrology* 448-449, 201-211.

Luz B., Barkman E. (2011) The isotopic composition of atmospheric oxygen. Global *Biogeochemical Cycles* 25, GB3001.

M

MacDonald A., Bonsor H., Dochartaigh B., Taylor (2012) Quantative maps of groundwater resources in Africa. *Environmental Research Letters* 7, 7p.

Mahler B.J., Bennett P., Zimmerman M. (1998a) Lanthanide-labeled clay : a new method for tracing sediment transport in karst. *Ground Water* 36, 835-843.

Mahler B.J., Bourgeais R. (2013) Dissolved oxygen fluctuations in karst spring flow and implications for endemic species: Barton Springs, Edwards aquifer, Texas, USA. *Journal of Hydrology* 505, 291-298.

Mahler B.J., Garner D. (2009) using nitrate to quantify quick flow in a karst aquifer. *Ground Water* 47, 350-360.

Mahler B.J., Lynch F.L. (1999) Muddy waters: temporal variation in sediment discharging from a karst spring. *Journal of Hydrology* 214(1-4), 165-178.

Mahler B.J., Lynch L., Bennett P.C. (1999) Mobile sediment in an urbanizing karst aquifer: implications for contaminant transport. *Environmental Geology* 39, 25-38.

Mahler B.J., Musgrove M., Wong C.I., Sample T.L. (2011) Recent (2008-10) water quality in the Burton Springs segment of the Edwards aquifer and its contributing zone, Central Texas, with emphasis on factors affecting nutrients and bacteria. U.S. *Geological Survey Scientific Investigations Report 2011-5139*, 66 p.

Mahler B.J., Personné J.-F., Lods G.F., Drogue C. (2000) Transport of free and particulate associated bacteria in karst. *Journal of Hydrology* 238(3-4): 179-193.

Mahler B.J., Valdes D., Musgrove M., Massei N. (2008) Nutrient dynamics as indicators of karst precesses : Comparison of the Chalk aquifer (Normandy, France) and the Edwards aquifer (Texas, France). *Journal of Contaminant Hydrology* 98, 36-49.

Mahler B.J., Winkler M., Bennett P., Hillis D. (1998b) DNA-labeled clay : a sensitive method for tracing particle transport. *Geology* 26, 831-834.

Maillet E. (1905) Essais d'hydraulique souterraine et fluviale (underground and River Hydrology). *Hermann, Paris*, 218 p.

Mance D., Hunjak T., Lenac D., Rubinic J., Roller-Lutz. (2014) Stable isotope analysis of the karst hydrological systems in the Bay of Kvarner (Croatia). *Applied Radiation and isotopes* 90, 23-34.

Mangin A. (1975) Contribution à l''étude hydrodynamique des aquifères karstiques. *Thèse de Doctorat en Sciences naturelles, Université de Dijon*.

Mangin A. (1981a) Utilisation des analyses corrélatoires et spectrales dans l'approche des systèmes hydrologiques. *Comptes rendus Académie des Sciences Paris* 293 (1), 401-404.

Mangin A. (1981b) – Apport des analyses corrélatoires et spectrales croisées dans la connaissance des systèmes hydrologiques. *Comptes rendus Académie des Sciences Paris* 293 (2),1011-1014.

Mangin A., (1984) Pour une meilleure connaissance des systèmes hydrologiques à partir des analyses corrélatoire et spectrale. *Journal of Hydrology* 67, 25-43.

Marchet P. (1991) Approche de la structure et de l'évolution des systèmes aquifers karstiques par l'analyse de leur fonctionnement. Application au NW du Causse de Martel (Quercy, France). *Thèse de Doctorat, Université Paul Sabatier*, 253 p.

Marín A., Andreo B., Mudarra M. (2015) Vulnerability mapping and protection zoning of karst springs. Validation by multitracers tests. *Science of The Total Environment* 532, 435-446.

Mariotti, A. (1982) Apports de la géochimie isotopique à la connaissance du cycle de l'azote. *Thèse de Doctorat, Université Pierre et Marie Curie, Paris 6, France*.

Mariotti A. (1983) Utilisation des variations naturelles d'abondance isotopique en 15N comme traceur de l'origine des pollutions des aquifères par les nitrates. *Compte rendu du colloque international sur l'hydrologie isotopique et a mise en valeur des ressources en eau. Vienne, Autriche.* 12-16 Septembre.

Mariotti A. (1994) Dénitrification *in situ* dans les eaux souterraines, processus naturels ou provoqués : une revue. *Hydrogéologie* 3, 43-68.

Mariotti A., Germon J.C., Hubert P., Kaiser P., Letolle R., Tardieux A., Tardieux P. (1981) Experimental determination of nitrogen kinectiv isotope fractionation : some principles ; illustration for the denitrification and nitrification processes. *Plant Soil* 62, 413-430.

Massei N. (2001) Transport de particules en suspension dans l'aquifère crayeux karstique et à l'interface craie/alluvions. *Thèse de Doctorat, Université de Rouen*. 210 p.

Massei N., Lacroix M., Wang H.Q., Mahler B.J., Dupont J.-P. (2001) Transport of suspended solids from a karstic to an alluvial aquifer : role of the karst/alluvium interface. *Journal of Hydrology* 260, 88-101.

Massei N., Wang H.Q., Dupont J.-P., Rodet J, Laignel B. (2003) Assessment of direct transfert and resuspension of particles during turdid floods at karstic spring. *Journal of Hydrology* 275, 109-121.

Massei N., Dupont J.-P., Mahler B., Laignel B., Fournier M., Valdes D., Ogier S. (2006) Investigating transport properties and turbidity dynamics of a karst aquifer using correlation, spectral, and wavelet analyses. *Journal of Hydrology* 329, 244-257.

Mathevet T., Lepiller M., Mangin A. (2004) Application of time series analyses to the hydrological functioning of an alpine karstic system: the case of Bange-l'eau-Morte. *Hydrology and Earth System Sciences* 8(6), 1051-1064.

Mauroux B., Platel J.-P., Baudry D., Olivier J.-P., Bergeronneau S., Marsac-Bernède M.-J ; (2003) Synthèse hydrogéologique du département de la Dordogne. *Rapport BRGM RP-52259-FR*. 147p.

Mayaud C., Wagner T., Benischke R., Birk S. (2014) Single event time series analysis in a binary karst catchment evaluated using a groundwater model (Lurbach system, Austria). *Journal of Hydrology* 511, 628-639.

Mayer B., Bollwerk S.M., Mansfeldt T., Hütter B., Veizer J. (2001) The oxygen isotope composition of nitrate generated by nitrification in acid forest floors. *Geochimica et Cosmocimica Acta* 65, 2743-2756.

Mayer B., Boyer W.E., Goodale C., JAworski N.A., Van Breemen N., Howarth R.W., Seitzinger S., Billen G., Lajtha K., Naderlhoffer K., Van Dam D., Getling L.J., Nosal M., Paustian K. (2002) Sources of nitrate in rivers draining sixteen watersheds in the northeastern U.S.: isotopic constraints. *Biogeochemistry* 57 (58), 171-197.

McCarty P., Reinhard M., Rittman B. (1981) Trace organic in groundwater. *Environmental Science and Technology* 15, 40-51.

McCarthy J., Shevenell L. (1998) Processes controlling colloid composition in a fractured and karstic aquifer in eastern Tennessee, USA. *Journal of Hydrology* 206, 191-218.

McCarthy J., Zachara J. (1989) Subsurface transport of contaminants: binding to mobile and immobile phases in groundwater aquifers. *Environmental Science and Technology* 23, 496-502.

McDonald R., Weber K., Padowski J., Flörk, M., Schneider C., Green P. A., Gleeson T., Eckman S., Lehner B., Balk D., Boucher T., Grill G., Montgomery M. (2014) Water on an urban planet: Urbanization and the reach of urban water infrastructure. *Global Environmental Change* 27, 96–105.

McMahon P.B., Böhlke J.K., Christenson S.C. (2004) Geochemistry, radiocarbon ages, and paleorecharge conditions along a transect in the central High Plains aquifer, southwestern Kansas, USA. *Applied Geochemistry* 19(11), 1655-1686.

Mengis M., Schif S.L., Harris M., English M., Aravena R., Elgood R., MacLean A. (1999) Multiple geochemical and isotopic approaches for assessing groundwater NO_3^- elimination in a Riparian zone. *Ground Water* 37, 448-457.

Millot R., Petelet-Giraud E., Guerrot C., Négrel P. (2010) Multi-isotopic composition (d^7Li-d^{11}B-dD-d^{18}O) of rainwaters in France: Origin and spatio-temporal characterization. *Applied Geochemistry* 25, 1510-1524.

Minvielle S. (2015) Etude de l'infiltration et de ses variations internnuelles en context épikarstique pour la caractérisation du fonctionnement des hydrosystèmes karstiques : utilization de la méthode ISc-PCO_2 et des modèles reservoirs. Doctorat en Sciences naturelles, Université de Bordeaux. 265 p.

Minvielle S., Lastennet R., Denis A., Peyraube N. (2015) Characterization of karst systems using SIc-PCO_2 method coupled with PCA and frequency distribution analysis. Application to karst systems in the Vaucluse county (Southeastern France). *Environmental Earth Sciences* 74, 7593-7604.

Moore P., Martin J., Screaton E. (2009) geochemical and statistical evidence of recharge, mixing, and controls on spring discharge in an eogenetic karst aquifer. *Journal of Hydrology* 376, 443-455.

Moral F., Cruz-Sanjulián J.J., Olías M. (2008) Geochemical evolution of groundwater in the carbonate aquifers of Sierra de Segura (Betic Cordillera, southern Spain). *Journal of Hydrology* 360(1-4), 281-296.

Moussu F., (2011) Prise en compte du fonctionnement hydrodynamique dans la modélisation pluie-débit des systèmes karstiques. Doctorat en Sciences naturelles, Université Pierre et Marie Curie, 202 p.

Mudarra M., Andreo B. (2011) Relative importance of the saturated and the unsaturated zone in the hydrogeological functioning of a karst aquifers: the case of Alta Cadena (Southern Spain). *Journal of Hydrology* 397, 263-280.

Mudarra M., Andreo B., Mudry J. (2012) Monitoring groundwater in the discharge area of a complex karst aquifer to assess the role of the saturated and unsaturated zones. *Environmental Earth Sciences* 65, 2321-2336.

Mudarra M., Andreo B., Marín A., Vadillo I., Barberá J. (2014) Combined use of natural and artificial tracers to determine the hydrogeological functioning of a karst aquifer : the Villanueva del Rosario system (Andalusia, southern Spain) *Hydrogeology Journal* 22, 1027-1039.

Mudry J. (1987) Apport du traçage physico-chimique naturel à la connaissance hydrocinématique des aquifères carbonatés. *Thèse de doctorat, Université de Besançon*.

Musgrove M., Fahlquist L., Stanton G.P., Houston N.A., Lindgren R.J. (2011) Hydrogeology, chemical characteristics, and water sources and pathways in the zone of contribution of a public-supply well in San Antonio, Texas. U.S. *Geological survey Scientific Investigations Report 2011-5146*, 194 p.

Musy A., Higy C. (2004) Hydrologie : une science de la nature. *Presses polytechnique et universitaires romandes,* 314p.

N, O

Nativ R., Günay G., Hötzl H., Reichert B., Solomon D.K., Tezcan L. (1999) Separation of groundwater-flow components in a karstified aquifer using environmental tracers. *Applied Geochemistry* 14(8): 1001-1014.

Négrel P., Petelet-Giraud E. (2005) Strontium isotopes as tracers of groundwater induced floods: the Somme case study (France). *Journal of Hydrology* 305(1-4): 99-119.

Nicolini E., Rogers K., Rakowski D. (2016) Baseline geochemical characterization of a vulnerable tropical karstic aquifer: Lifou, New Caledonia. *Journal of Hydrology: Regional Studies* 5, 114-130.

Nolan B.T., Stone J.D. (2000) Nutrients in ground waters of the coterminous United States, 1992-1995. *Environmental Science and Technology* 34, 1156-1165.

Nômmik H., Pluth D.J., Larsson K., Mahendrappa M.K. (1994) Isotopic fractionation accompanying fertilizer nitrogen transformations in soil and trees of a Scots pine ecosystem. *Plant Soil* 159, 169-182.

Olivet J.-L. (1996) La cinématique de la plaque ibérique. *Bulletins Centres Rech. Explor.-Prod. Elf-Aquitaine* 20, 131-195.

Ollivier C., Chalikakis K., Mazzilli N., Kazakis N., Lecomte Y., Danquigny C., Emblanch C. (2019) Challenges and limitations of karst aquifer vulnerability mapping based on the PaPRIka method-application to a large European karst aquifer (Fontaine de Vaucluse, France). *Environments* 6.

Oudin L., Hervieu F., Michel C., Perrin C., Andréassian V., Anctil F., Loumagne C. (2005) Which potential evapotranspiration input for a lumped rainfall-runoff model ? Part2 – Toward a simple and efficient potential evapotranspiration model for rainfall-runoff modelling. *Journal of Hydrology* 303, 290-306.

OGOULA-ARONDO M.-C. (2008) – Test de la méthodologie cartographique RISK 2 de la vulnérabilité sur les sources du Toulon avec cartographie des aléas. *Rapport de stage, Agence de l'eau Adour-Garonne. Ecole Nationale Supérieure de Géologie de Nancy*. 46p.

P, Q

Padilla A., Pulido-Bosch A. (1995) Study of hydrographs of karstic aquifers by means of correlation and cross spectral analysis. *Journal of Hydrology* 168 (1), 73-89.

Padilla A., Pulido-Bosch A., Mangin A., (1994) Relative importance of baseflow and quickflow from hydrographs of karst springs. *Ground Water 32*, 267-277.

Palmateer G., Maclean D., Kutas W., Meissner S. (1993) Suspended particulate/bacterial interaction in agricultural drains. *S.S. RAO*, 1-40.

Panagopoulos G., Lambrakis N. (2006) The contribution of time series analysis to the study of the hydrodynamic characteristics of the karst systems: application on two typical karst aquifers of Greece (Trifilia, Almyros Crete). *Journal of Hydrology* 329, 368-376.

Panno S., Hackley K., Hwang H., Kelly W. (2001) Determination of the sources of nitrate contamination in karst springs using isotopic and chemical indicators. *Chemical Geology* 179, 113-128.

Pélissié T. (1982) Le Causse jurassique de Limogne-en-Quercy : stratigraphie, sédimentologie, structure. *Thèse Doctorat, Université Paul-Sabatier, Toulouse*. 281p.

Pélissié T., Astruc J.-G. (1996) - Tectonique synsédimentaire et dissolution d'évaporites dans les dépôts du Jurassique moyen et supérieur des Causses du Quercy. *Géologie de la France* 4, 23-32.

Pelissier-Hermitte. (1983) Diagnostique du forage de Trélissac La rivière. *Rapport de l'Université de Bordeaux III*. 48p.

Perrin J., Jeannin P.-Y., Zwahlen F. (2003a) Epikarst storage in a karst aquifer: a conceptual model based on isotopic data, Milandre test site, Switzerland. *Journal of Hydrology* 279(1-4), 106-124.

Perrin J., Jeannin P.-Y., Zwahlen F. (2003b) Implications of the spatial variability of infiltration-water chemistry for the investigation of a karst aquifer: a field study at Milandre test site, Swiss Jura. *Hydrogeology Journal* 11(6), 673-686.

Perrin J., Jeannin P.-Y., Cornaton F. (2007) The role of tributary mixing in chemical variations at a karst spring, Milandre, Switzerland. *Journal of Hydrology* 332, 152-173.

Personné J.-C., Poty F., Vaute L., Drogue C. (1998) Survival, transport and dissemination of Escherichia coli and enterococci in a fissured environment. Study of a flood in a karstic aquifer. *Journal of Applied Microbiology* 84(3), 431-438.

Personné J.-C., Poty F., Mahler B.J., Drogue C. (2004). Colonization by Aerobic Bacteria in Karst: Laboratory and In Situ Experiments. *Ground Water* 42(4), 526-533.

Petelet E., Luck J.-M., Ben Othman D., Negrel P., Aquilina L. (1998) Geochemistry and water dynamics of a medium-sized watershed: the Hérault, southern France: 1. Organisation of the different water reservoirs as constrained by Sr isotopes, major, and trace elements. *Chemical Geology* 150(1-2): 63-83.

Petelet-Giraud E., Casanova J., Chery L., Négrel P., Busharet S. (2005) Essai de caractérisation isotopique ($d^{18}O$ et $d^{2}H$) du signal météorique actuel à partir des lacs et reservoirs : application au quart Sud-ouest de la France. *La Houille Blanche* 2, 57-62.

Peyraube N. (2011) Apports des équilibres calco-carboniques et du carbone 13 pour l'étude de l'air et des écoulements d'eau dans la zone non saturée du karst. Application au système karstique perché de la grotte de Cussac (Dordogne, France). *Thèse de Doctorat ès Sciences. Université de Bordeaux*. 350 p.

Peyraube N., Lastennet R., Denis A. (2012) Geochemical evolution of groundwater in the unsaturated zone of a karstic massif, using the PCO_2 – SIc relationship. *Journal of Hydrology* 430-431, 13-24.

Peyraube N., Lastennet R., Denis A., Malaurent P. (2013) Estimation of epikarst PCO2 using measurements of water $\delta^{13}C_{TDIC}$ cave air P_{CO2} and 1 $\delta^{13}C_{CO2}$. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 118, 1-17.

Platel J.-P. (1987) Le Crétacé supérieur de la plate-forme septentrionale du Bassin d'Aquitaine. Thèse de Doctorat, Université de Bordeaux III. 573p.

Platel J.-P. (1989) Le Crétacé supérieur de la plate-forme septentrionale du Bassin d'Aquitaine : Stratigraphie et évolution géodynamique. *Document du BRGM n°164*. 572 p.

Platel J.-P. (1996) Stratigraphie, sédimentologie et évolution géodynamique de la plate-forme carbonatée du Crétacé supérieur du nord du bassin d'Aquitaine. Géologie de la France, Vol. 4, 33-58.

Platel J.-P. (2013) Principaux grands réservoirs aquifères nord-aquitains : de l'Oligocène du Bordelais au Mésozoïque de Dordogne. *Livret Guide de l'excursion du Colloque Schoeller, Colloque international « les eaux souterraines » du 30 Mai eu 2 Juin 2013*. *Université de Bordeaux I*, 1-25.

Platel J.-P., Pedron N., Gomez E., Saltel M. (2010) Perspectives de gestion des nappes du Secondaire en Agenais-Périgord. Synthèse géologique et hydrogéologique, modélisation hydrodynamique. *Rapport final BRGM/RP-59330-FR*. 200 p., 101 figures, 12 tableaux, 19 annexes.

Plummer L.N. (1977) Defining reactions and mass transfer in part of the Floridan aquifer. *Water Resources Research* 13(5), 801-812.

Plummer L.N., Wigley T.M.L., and Parkhurst D.L. (1978) The kinetics of calcite dissolution in CO_2-water systems at 5 degrees to 60 degrees C and 0.0 to 1.0 atm CO_2. *American Journal of Science* 278(2), 179-216.

Pommepuy M., Guillaud J., Derrien A., LE Guyader F., Cormier F. (1992) Enteric bacteria survival factors. *Water Science and Technology* 25 (12), 93-103.

Pronk M., Goldscheider N., Zopfi J. (2006) Dynamics and interaction of organic carbon, turbidity and bacteria in karst aquifer system. *Hydrogeology Journal* 14, 473-484.

Pronk M., Goldscheider N., Zopfi J. (2007) Particle-size distribution as indicator for fecal bacteria contamination of drinking water from karst springs. *Environmental Science and Technology* 41, 8400-8405.

Pronk M., Goldscheider N., Zopfi J., Zwahlen F. (2009) Percolation and particle transport in the unsaturated zone of a karst aquifer. *Ground Water* 47 : 361-369.

Pu J., Yuan D., He Q., Wang Z., Hu Z., Gou P. (2011) High-resolution monitoring of nitrate variations in a typical subterranean karst stream, Chongqing, China. *Environmental Earth Sciences* 64, 1985-1993.

Puig R., Folch A., Mencio A., Soler A., Mas-Pla J. (2013) Multi-isotopic study (^{15}N, ^{34}S, ^{18}O, ^{13}C) to identify processes affecting nitrate and sulfate in response to local and regional groundwater mixing in a large-scale flow system. *Applied Geochemistry 32* : 129-141.

Pulido-Bosh A., Padilla A., Dimitrov D., Machkova M. (1995) The discharge variability of some karst springs in Bulgaria studied by time series analysis. *Hydrological Sciences* 40, 517-532

Pulido-Leboeuf P., Pulido-Bosch A., Calvache M. L., Vallejos Á., Andreu J. M. (2003) Strontium, SO_4^{2-}/Cl^- and Mg^{2+}/Ca^{2+} ratios as tracers for the evolution of seawater into coastal aquifers: the example of Castell de Ferro aquifer (SE Spain). *Comptes Rendus Geosciences* 335(14): 1039-1048.

R

Raeisi E., Karami G., (1997) Hydrochemographs of Berghan karst spring as indicators of aquifer characterstics. *Journal of Cave and Karst Studies* 59 (3), 112-118.

Reed T., McFerland J., Fryar A., Fogle A., Taraba J. (2009) Sediment discharges during storm flow from proximal urban and rural karst springs, central Kentucky, USA. *Journal of Hydrology* 383, 280-290.

Rey D., Huneau F., Riss J., Prétou F. (2006) Use of multiple sources statistics to delineate the hydrogeological functioning of carbonated systems (example of the Western Pyrenees, France). *International Association for Mathematical Geology, XIth International Congress, September 3-8 2006, Liège (Belgium)*.

Rey J., Cubaynes R., Faure P., Hantzpergue P., Pélissié T. (1988) Stratigraphie séquentielle et évolution d'une plate-forme carbonatée : le Jurassique du Quercy (Sud-Ouest de la France). – *Compte rendus de l'Académie des Sciences de Paris* 306, 1009-1015.

Rey J., Cubaynes R., Hantzpergue P., PÉlissié T. (1995) Le Jurassique du Quercy in "Du Lias nord-aquitain aux molasses miocènes. Généralités". *Strata*, 2, 19-62.

Roux (1888) – Projet de distribution d'eau pour la ville de Périgueux. Rapport pour la ville de

Périgueux en réponse aux observations par le conseil générale des ponts et chaussées. 15 p.

Rowden R., Liu H., Libra R. (2001) results from big spring basin water quality monitoring and demonstration projects, Iowa, USA. *Hydrogeology Journal* 9, 487-497.

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.

Ryan M., Meiman J. (1996) An examination of short-term variations in water quality at a karst spring in Kentucky. *Ground Water* 34, 23-30

S

Sabidussi J. (2017) Origine et dynamique de la turbidité dans un aquifère karstique multicouche. Application aux Sources du Toulon, Périgueux (24). Rapport de Stage de M2, Université de Bordeaux, Laboratoire I2M. 54p.

Sánchez-Martos F., Pulido-Bosch A., Molina-Sánchez L., Vallejos-Izquierdo A. (2002) Identification of the origin of salinization in groundwater using minor ions (Lower Andarax, Southeast Spain). *The Science of The Total Environment* 297(1-3): 43-58.

Schiperski F., Zirlewagen J., Hillebrand O., Nödler K., Licha T., Scheytt T. (2015a) Relationship between organic micropolluant and hydrosedimentary processes at a karst spring in south-west Germany. *Science of The Total Environment* 532 : 360-367.

Schiperski F., Zirlewagen J., Hillebrand O., Licha T., Scheytt T. (2015b) Preliminary results on the dynamics of particles and their size distribution at a karst spring during snowmelt event. *Journal of Hydrology* 524. 326-332.

Schnetger B., Lehners C. (2014) Determination of nitrate plus nitrite in small volume marine water samples using vanadium(III) chloride as a reduction agent. *Marine Chemistry* 160, 91–98

Schoeller H. (1970) – Recherche en eau aux alentours de la ville de Périgueux. Rapport de fin de première année sur les travaux de recherche d'eau du groupement d'urbanisme de Périgueux, Université de Bordeaux 1. 18 p.

Schoeller H. (1971a) Aperçu sur les ressources en eau de la région de Périgueux. 2ème rapport. Université de Bordeaux 1. 6 p.

Schoeller H. (1971b) La protection sanitaire des sources du Toulon à Périgueux. Rapport final. Université de Bordeaux 1. 11 p.

Schoeller H. (1972) Les ressources en eau actuelles et supplémentaires de la région de Périgueux. Rapport final. Université de Bordeaux 1. 37 p.

Schwarz K., Gocht T., Grathwolh P. (2011) Transport of polycyclic aromatic hydrocarbons in highly vulnerable karst systems. *Environmental Pollution* 159, 133-139.

Schwientek M., Osenbrück K., Fleisher M. (2013) Investigating hydrological drivers of nitrate export dynamics in two agricultural catchments in Germany using high-frequency data series. *Environmental Earth Sciences* 69, 381-393.

Sebilo, M. 2003. Utilisation du traçage isotopique naturel pour caractériser et quantifier les processus de nitrification et de dénitrification à l'échelle du réseau hydrographique de la Seine. *Thèse de Doctorat, Université Pierre et Marie Curie, Paris 6, France*.

Sharpe K.T., Hertz M.J., Wilt D.E. (2004) Assessment of contaminated stormwater sediment in a karst landscape. *Geological Society of America Abstracts with Programs* 36(2). pp 62.

S.H.E. (1998) Aménagement du forage du Moulin de Dague. *Rapport de fin de travaux*. 24p.

S.H.E. (2001) Création d'une nouvelle resource en eau sur la commune de Château l'Evêque. *Rapport de fin de travaux*. 31p.

S.H.E. (2014) Diagnostique du forage de la Prade (Commune du Change). *Rapport final*. 33p.

Shevenell L., McCarthy J. (2001) Effects of precipitation events on colloids in a karst aquifer. *Journal of Hydrology* 255, 50-68.

Silva-Filho E.V., Sobral Barcellos R.G., Emblanch C., Blavoux B., Sella S.M., Daniel M., Simler R., Wasserman J.C. (2009) Groundwater chemical characterization of a Rio de Janeiro

coastal aquifer, SE - Brazil. *Journal of South American Earth Sciences* 27(1), 100-108.

Simon-Coinçon S., Astruc J.G. (1991) Les pièges karstiques en Quercy : rôle et signification dans l'évolution des paysages. – *Bulletins de la Société Géologique de France 162*, 595-605.

Sourisseau B. (1984) Protection des sources du Toulon, détermination des périmètres de protection. Rapport final BRGM 84 AGI 260 AQI. 92 p

Stefanowicz A., Stanek M., Nobis M., Zubek S. (2017) Few effects of invasive plantes *Reynoutria japonica, Rudbeckia laciniata and Solidago gigantean* on soil physical and chemical properties. *Science of The Total Environment* 574, 938-946.

Stöckle A. (2014) Caractérisation quantitative et sualitative des sources des reservoirs carbonatés de Dordogne. *Rapport de Stage BRGM Aquitaine, Université de Bordeaux.* 61p.

Strickland J.D.H., Parsons T.R. (1972) A practical Handbook of seawater analysis. *Bulletin 167, Second edition*. 328p.

Stuart M.E., Maurince L., Heaton T.H.E., sapiano M., Micaleff Sultana M., Gooddy D.C., Chilton P.J. (2010) Groundwater residence time and movement in the Maltese islands – A geochemical approach. *Applied Geochemistry* 25, 609-620.

Stueber A.M., Criss R.E. (2005) – Origin and transport of dissolved chemicals in a karst watershed, southwestern Illinois. *Journal of American Water Resources Association* 41, 267-290.

Siliang L., Congqiang L., Yunchao L., Zhiqi Z., Zhihua Z. (2010) Tracing the sources of nitrate in karstic groundwater in Zunyi, Southwest China: a combined nitrogen isotope and water chemistry approach. *Environmental Earth Sciences* 60 (7), 1415-1423.

Singleton M.J., Esser B.K., Moran J.E., Hudson G.B., McNab W.W., Harter T. (2007) Saturated zone denitrification: potential for natural attenuation of nitrate contamination in shallow groundwater under dairy operations. *Environmental Science Technology* 41, 759-765.

T, U, V

Thornthwaite C. (1948) An approach toward a rational classification of climate. *American geographical society* 38, 55-94.

Thrailkill J. (1989) Shallow conduit-flow carbonate aquifers : conceptual models and parameter evaluation. In : MOORE J.E., ZAPOROZEC A.A., CSALANY S.C., VARNEY T.C. *Recent advances in groundwater hydrology*. *American Instirude of Hydrology, Minneapolis*, 153-159.

Valdes D., Dupont J.-P., Massei N., Laignel N., Rodet J. (2005) Analysis of karst hydrodynamics through comparison of dissolved and suspended solids' transport. *Comptes Rendus Géosciences* 337, 1 365-1 374.

Vaute L., Drogue C., Garrelly L., Ghelfenstein M.(1997). Relations between the structure of storage and the transport of chemical compounds in karstic aquifers. *Journal of Hydrology* 199 (3-4), 221-238.

Vengosh A., Gieskes J., Mahn C. (2000) New evidence for the origin of hypersaline pore fluids in the Mediterranean basin. *Chemical Geology* 163(1-4), 287-298.

Vesper D.J., White W. (2003a) Metal transport to karst spring during storm flow : an example from Fort Campbell, Kentucky/Tennessee, USA. *Journal of Hydrology* 276, 20-36.

Vesper D.J., White W. (2003b) – Spring and conduit sediments as storage reservoirs for heavy metals in karst aquifers. *Environmental Geology* 45. pp 481-493.

Vias J.M., andreo B., perles M.J., Carrasco F., Vadillo I., Jiménez P. (2006) Proposed methof for groundwater vulnerability mapping in carbonate (karstic) aquifers: the COP method. *Hydrogeology Journal* 14, 912-925.

Vitoria L., Otero N., Soler A., Canals A. (2004) Fertilizer characterization: isotopic data (N, S, O, C, and Sr). *Environmental Science Technology* 38, 3254-3262.

Von Stempel C. (1972) Etude de la ressource en eau de la région de Périgueux. Thèse

de Doctorat ès Sciences. Université de Bordeaux I. 245 p.

Vouve J. (1997) – Protection du captage AEP de la source de l'Abîme, Commune de périgueux. Rapport final Université Bordeaux 1. 25 p.

W

Wada Y., Van Beek L., Van Kempen C., Reckman J., Vasak S., Bierkens M. (2010) Global depletion of groundwater resources. *Geophysical Research Letters* 37.

Ward M.H., DeKok T., Levallois P., Brender J., Gulis G., Nolan B.T., VanDerslice J. (2005) Drinking water nitrate and health – recent findings and research needs. *Environmental Health Perspectives* 115, 1607-1614.

White E., White W. (1968) Dynamics of sediment transport in limestone caves. *National Speleological Society* 30, 115-129.

White W.B., (1988) Geomorphology and Hydrology of Karst terrains. *Oxford University press, New York*, 464 p.

Williams G.P. (1989) Sediment concentration versus water discharge during single hydrologic event in rivers. *Journal of Hydrology 111*, 89-106.

Winckel A., Seguin J.-J., Pedron N. *avec la collaboration de : Dufour P., Corbier P.* (2005) Gestion des eaux souterraines en Région Aquitaine – piézométries d'objectif d'étiage et de crise – Module 3 – Année 2 – *BRGM/RP-53658-FR*. 127 p., 89 illustrations, 3 annexes.

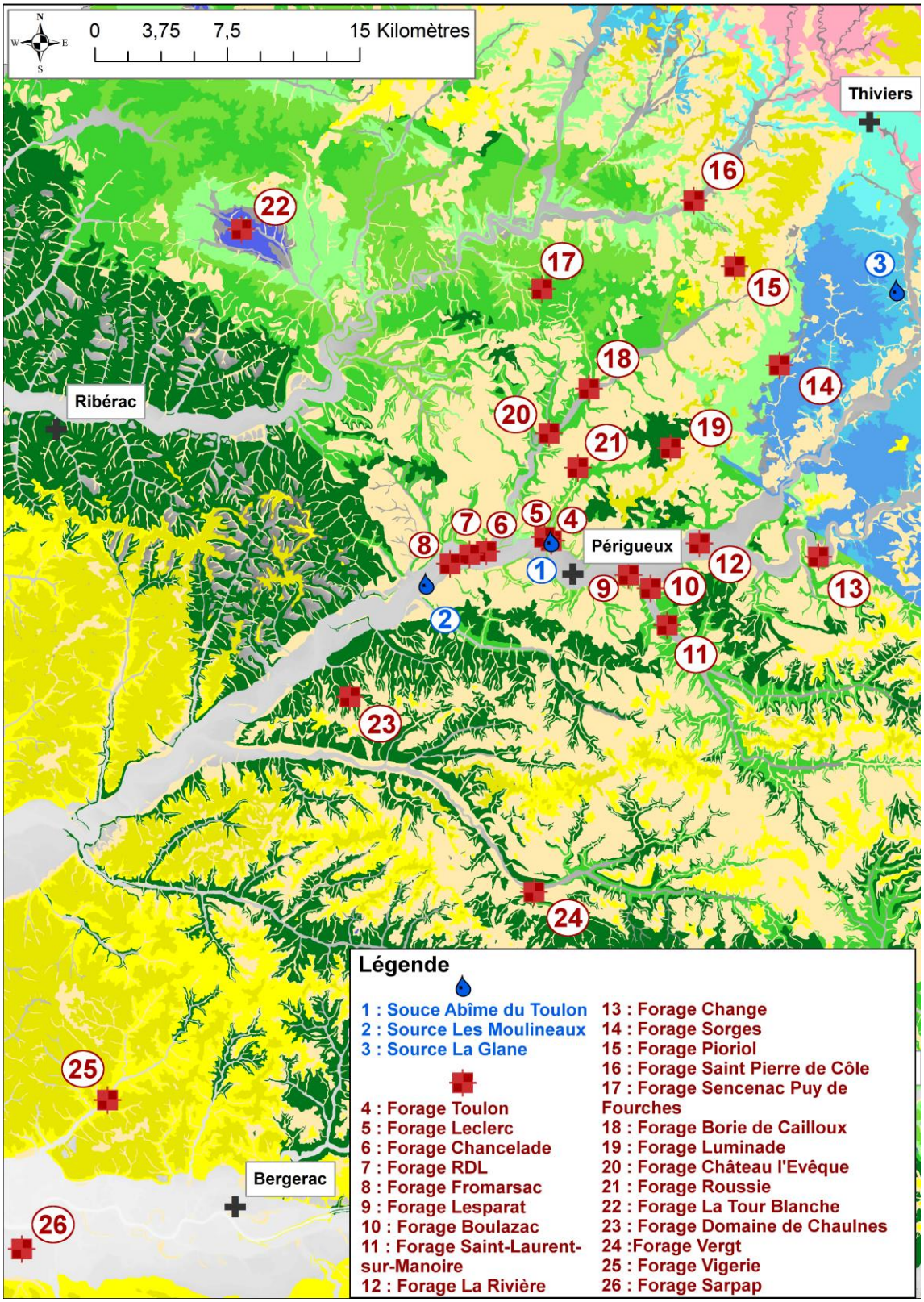
Worthington S., Ford D., (2009) Self-organized permeability in carbonate aquifers. *Ground Water 47*, 326-336.

X, Y, Z

Xue D., Botte J., De Baets B., Accoe F., Nestler A., Taylor P., Cleemput O., Berglund M., Boeckx P. (2009) Present limitations and future prospects of stable isotope methods for nitrate source identification in surface and groundwater. *Water Research 43*, 1159-1170.

ANNEXES

Annexe 1 : Carte de localisation des ouvrages utilisés pour la description lithologique



Annexe 2 : Photographies et descriptions des principales sources karstiques en périphérie de Périgueux

La Fontaine du Godet

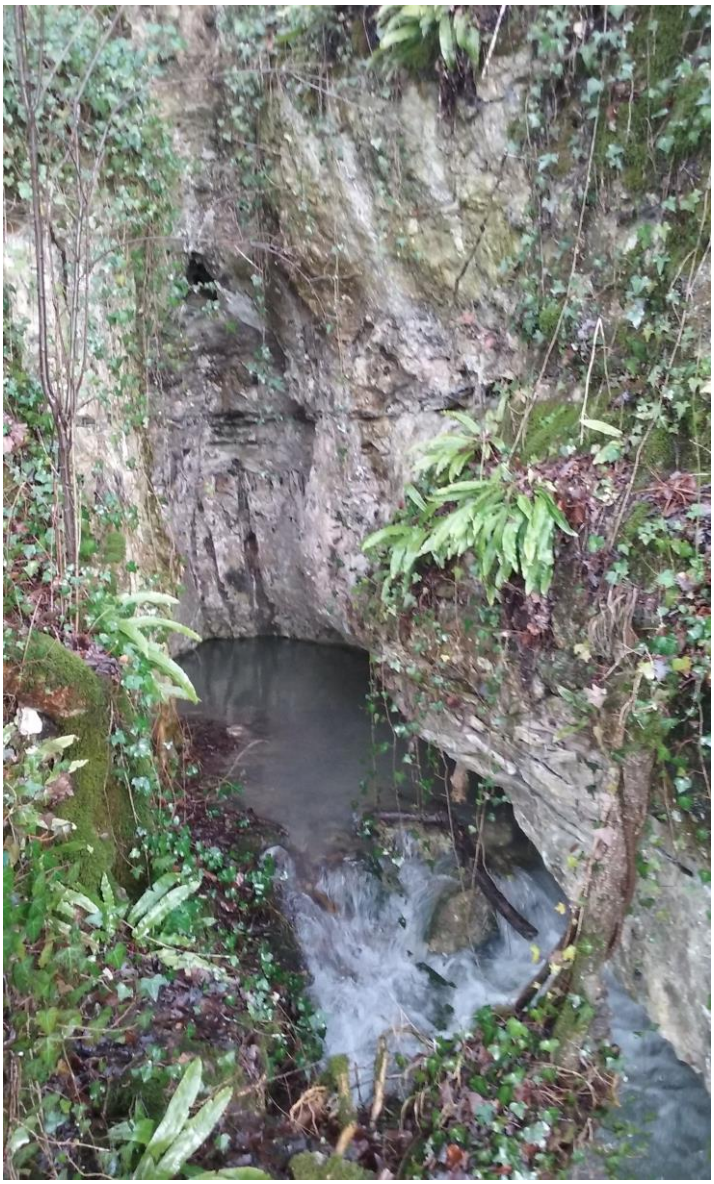
La source sort dans les calcaires du Santonien. L'eau sort de la roche par un griffon visible à environ 1.50 m de profondeur. La source se déverse dans un lavoir puis forme un ruisseau qui va alimenter la rivière Beauronne.

Elle se situe au niveau du lieu-dit Le Godet. Elle est accessible à pied par un petit chemin dans la forêt.

La source de la Clavelie

La source de la Clavelie sort des calcaires du Santonien. Le site témoigne de l'activité passé de la source, avec des marques de paléokarst Elle semble être dans la continuité d'une grande vallée sèche située plus en amont.

Le débit s'écoulant à la source est de l'ordre de 10 à 20 L/s le 15/04/2015. D'après Patrick ROUSSEAU (Spéléoclub de Périgueux), le débit peut être beaucoup plus important lors des gros évènements pluvieux.



La source du stade COPO

La source sort dans les alluvions modernes de l'Isle, et traverse les formations sous-jacentes (Turonien, Cénomanien, Jurassique).

Elle est située au Nord du stade COPO. Elle est captée dans une enceinte ovale de 2m x 3m x 3.45 m, et est protégée par une plaque métallique qui s'ouvre avec un cadenas à code.

Jusqu'en 2015, elle servait au remplissage d'une piscine de 700 m^3.

Les arrivées d'eau sont visibles au fond de la vasque.

Cette source se situe dans l'enceinte du stade COPO qui appartient à la ville de Périgueux. C'est la SNCF qui est en charge de cette source.

La source des Bories

L'eau alimentant la source des Bories remonte en charge des calcaires du Coniacien. La source est composée de plusieurs sorties d'eau ; une sortie principale, captée, et quelques autres sorties plus diffuses. L'eau sort dans une enceinte bétonnée.

C'est une source d'alimentation en eau potable. En période de hautes eaux, l'eau sort dans tout le PPI. Elle est gérée par la société AGUR. Son débit est estimé à environ 60 $L.s^{-1}$ en moyenne en étiage. Une mesure en hautes eaux aurait indiqué une valeur de 200 $L.s^{-1}$ (Angéli). Des mesures au courantomètre électromagnétique ont été réalisée par Guillaume LORETTE et Gaspard NOUGARET le 20/04/2016. Le débit était de 220 $L.s^{-1}$.

Cette source possède une échelle limnimétrique mais aucune courbe de tarage n'a été réalisée pour le moment.

La source de la Glane

La source de la Glane est localisée au Nord du Bassin d'alimentation des Sources du Toulon et est utilisée pour l'alimentation en eau potable. C'est une des trois sources majeures du département de la Dordogne en termes de débit, avec les Sources du Toulon et la source de l'Abîme des Moulineaux.

La source de la Glane draine les formations calcaires du Bathonien.

Annexe 3 : Mode opératoire pour les prélèvements des eaux sur le terrain

Matériel nécessaire pour chaque point de prelevement

Plusieurs flacons de volume et de nature différente sont nécessaires afin de respecter les équilibres chimiques et les volumes nécessaires aux analyses. Chaque flacon est présenté en détail en Annexe 1. Il est alors demandé de préparer :

- **3 flacons de 60 mL en polyéthylène HDPE** (Anions, Cations, Métaux),
- **2 tubes 13 mL en plastique** (Silice, Azote)
- **1 flacon en verre blanc de 15 mL** (Carbone Organique Dissous),
- **3 flacons en borosilicate** (Carbone 13 filtré, oxygène 18, carbone 13 non filtré),
- **2 flacons en verre blanc de 15 mL** (Oxygène 18, Deutérium),
- **2 flacon de 150 mL en polyéthylène HDPE** (Archive préservée au laboratoire, $\delta^{15}N_{-NO3}$ / $\delta^{18}O_{-NO3}$)
- **1 flacon de 250 mL en verre brun (Alcalinité)**

Sur le terrain, il est préférable de se munir d'une glacière dans le but de conserver les flacons dans des conditions de température et d'humidité satisfaisante.

Du matériel supplémentaire devra être amené afin de bien réaliser le prélèvement :

- **Une seringue stérile avec luer lock (60 mL) et un filtre stérile (0.45 µm**) à usage unique seront utilisés pour filtrer les eaux à analyser. Il est tout de même préférable de se munir de plusieurs filtres au cas où il se colmate rapidement dans le cas d'une eau turbide,
- **Une aiguille** pour le prélèvement du carbone 13**,**
- **Une seringue en verre blanc (125 mL) son porte filtre associé.**
- **Un filtre en fibre de verre** pour la seringue en verre,
- **Un flacon de chlorure mercurique ($HgCl_2$) à 6%** pour l'acidification du $\delta^{15}N_{-NO3}$ / $\delta^{18}O_{-NO3}$**.**
- **Un flacon d'acide chloridrique (HCl) à 12N** et une micropipette de 100 µL pour l'acidification du C.O.D.,
- **Un flacon d'acide nitrique à (HNO_3)** 70% pour l'acidification des métaux et des cations.

Déroulement du prélèvement

Le prélèvement se déroule en plusieurs étapes successives :

- Le rinçage préalable des flacons et du matériel de prélèvement (seringue et filtre)
- L'échantillonnage,
- L'acidification des échantillons,
- La conservation des échantillons.

Le rinçage du matériel

Cette étape est nécessaire pour éviter la contamination des échantillons prélevés. Plusieurs étapes sont nécessaires :

- **Rincer la seringue et le filtre**. Pour cela, prélever un petit volume dans la seringue, brancher le filtre et vider ce volume d'eau,
- **Rincer chaque flacon ET le bouchon de prélèvement** avec de l'eau filtrée.

L'échantillonnage

Remplir chacun des flacons avec de l'eau préalablement filtrée à l'aide de la seringue et du filtre.

Chaque flacon doit être rempli à ras bord pour éviter la présence de bulles d'air pouvant altérer l'échantillon. Refermer ensuite les flacons en prenant soin de bien positionner l'opercule d'étanchéité.

Pour le prélèvement du carbone organique dissous, il est nécessaire d'utiliser la seringue en verre blanc (exempt de source de carbone organique).

Si le prélèvement entre dans un réseau de suivi répété dans le temps, il est préférable de l'effectuer ***dans la même zone d'écoulement*** *pour permettre une uniformité des prélèvements*

La date, (jour, mois, année), le libellé du point *de prélèvement, ainsi que la nature de l'échantillon devront être mentionnés au feutre indélébile sur une étiquette* ***pour chaque flacon***.

L'acidification des échantillons

Cette étape est nécessaire pour stopper l'évolution de l'échantillon (activité biochimique) après le prélèvement. Pour cela, il faut utiliser les flacons décrits plus haut.

4 flacons doivent être acidifiés selon les méthodes suivantes :

- 1 flacon de 150 mL polyéthylène HDPE (^{15}N) pour empoisonner les microorganismes**, verser 2 gouttes de $HgCl_2$ à 6%** puis agiter l'échantillon,
- 1 flacon de 15 mL en verre blanc (C.O.D.) pour abaisser le pH à 3. Pour cela, **verser 75 µL de HCl à 12N**, puis agiter l'échantillon.
- 1 flacon de 60 mL en polyéthylène HDPE (Métaux) pour abaisser le pH à 2. Pour cela, **verser 3 gouttes de HNO3 à 70%** puis agiter l'échantillon.
- 1 flacon de 60 mL en polyéthylène HDPE (Cations) pour abaisser le pH à 4. Pour cela, **verser 2 gouttes de HNO3 à 70%,** puis agiter l'échantillon.

Le conditionnement

Tous les échantillons prélevés devront être maintenus dans un frigo à une **température inférieure à 8°C** jusqu'à expédition ou analyse.

Tableau 31 : Synthèse des prélèvements à réaliser. En jaune les paramètres à prélever en routine

Paramètre	Volume flacon (mL)	Nature du flacon	Filtration	Acidification / fixation	Conditionnement	Temps pour analyse
Alcalinité	250	Verre brun	NON	NON	-	Le jour même
Cations	50	HDPE	0.45	2 gouttes HNO3	Frigo	Dans les 2 mois
Anions	50	HDPE	0.45	NON	Frigo	Dans les 2 mois
Métaux	50	HDPE	NON	3 gouttes HNO3	Frigo	Analyse extérieur
Silice	15	Falcon	0.45	NON	Frigo	Dans les 2 mois
Azote	15	Falcon	0.45	NON	Congélateur	Dans les 2 mois
COD	10	Verre blanc	fibre de verre	75 µL HCl 12N	Frigo	Analyse extérieur
Carbone 13	1	Borosilicate	0.45	NON	Frigo	Dans le mois
Oxygène 18	15	Verre blanc	0.2	NON	Frigo	Analyse extérieur
Deutérium	15	Verre blanc	0.2	NON	Frigo	Analyse extérieur
Azote 15	150	HDPE	0.2	2 gouttes HgCl2	Placard à l'obscurité	Analyse extérieur
Turbidité	50	Verre blanc	NON	NON	-	Le jour même
Turbidité	2 000	HDPE	NON	NON	Placard à l'obscurité	Analyse éxtérieur

à prélever en routine

Les mesures physico-chimiques

Plusieurs mesures physico-chimiques doivent être réalisées **systématiquement** au cours du prélèvement :

- **La conductivité** électrique ($\mu S.cm^{-1}$) et sa **température associée** (°C),
- **Le pH** (unité pH et mV) et sa température associée (°C),
- La concentration en oxygène dissous ($mg.L^{-1}$), **le pourcentage de saturation en oxygène dans l'eau** (%), ainsi que la pression atmosphérique (hPa) et la température associée (°C)

L'alcalinité doit être mesurée sur place, ou dès retour au laboratoire.

*La température retenue pour la bancarisation des données, est la **température donnée par la sonde de conductivité**. Il est important de garder toujours la même température pour une question d'uniformité des mesures.*

Les sondes pH et conductivité devront être étalonnées ou contrôlées **le jour même** afin d'avoir des mesures correctes. Les sondes rédox et oxygène dissous ne nécessitent pas d'étalonnage au préalable.

Déroulement des mesures physico-chimiques

Le pH et la température changeant rapidement, il sera **nécessaire de se servir d'une cellule de mesure** afin d'éviter toute eau stagnante (et ainsi toute mesure faussée).

Par la suite, il suffit juste de plonger les différentes sondes à l'intérieure de la cellule de mesure et d'attendre la stabilisation des valeurs.

Les valeurs pourront être notées sur la fiche de terrain prévue à cet effet.

Mesure de l'alcalinité

MESURE RAPIDE SUR LE TERRAIN

Cette mesure se réalise à l'aide d'un titrimètre digital.

La mesure se réalise en plusieurs étapes :

- Rincer l'éprouvette graduée et l'erlenmeyer avec de l'eau à analyser.
- Prélever à l'aide de l'éprouvette graduée de 100 mL de l'eau à analyser, puis transvaser dans l'erlenmeyer,
- Ajouter dans l'erlenmeyer du vert de bromocrésol (sachet en aluminium). Homogénéiser l'ensemble,
- Insérer la cartouche d'acide sur le titrimètre digital,
- Insérer la canne en plastique en bout de cartouche,
- Descendre le piston au niveau de la cartouche d'acide,
- Lorsque le piston est en contact avec la cartouche d'acide, utiliser la molette pour évacuer les dernières bulles d'air (dans la canne) jusqu'à ce qu'une goutte d'acide perle en bout de canne,
- Remettre à zéro le compteur du titrimètre digital,

- Introduire la canne dans la solution à analyser et ajouter l'acide tout en remuant délicatement l'erlenmeyer.
- A mesure que l'acide sera ajouté, la teinte de la solution deviendra de plus en plus violacée puis rosée,
- Lorsque la teinte est rose intense, relever le nombre de digits indiqués par le titrimètre digital,
- Continuer à ajouter de l'acide. Si la teinte n'évolue pas, alors le nombre de digits relevé lors du virage au rose était correct.

La valeur de digits mesurée est alors **multipliée par 1.22**, ce qui nous donnera notre concentration en $mg.L^{-1}$.

Le matériel est ensuite rincé à l'eau ultra pure, séché, et rangé.

Si la mission de terrain est réalisée par plusieurs personnes, il est important que ce soit toujours la même personne qui effectue la mesure d'alcalinité car les teintes de couleur peuvent être appréciées différemment en fonction des personnes.

MESURE DES LE RETOUR EN LABORATOIRE

La mesure s'effectue à l'aide d'un titreur potentiométrique. La méthode utilisée est celle de la Méthode de Gran. Des tests de répétitivité ont permis d'estimer l'incertitude de la méthode à moins de 1%. D'autres tests supplémentaires ont permis de conclure qu'il était nécessaire de réaliser la mesure dans les 12h qui suivent le prélèvement pour une précision optimale.

Flacon de 60 mL en polyèthylène HDPE

(Anions, Cations, métaux)

Flacon de 15 mL en verre blan

(C.O.D.)

Flacon en verre blanc 25 mL

(^{18}O, ^{2}H)

Flacon en borosilicate

(^{13}C F, ^{13}C NF, ^{18}O)

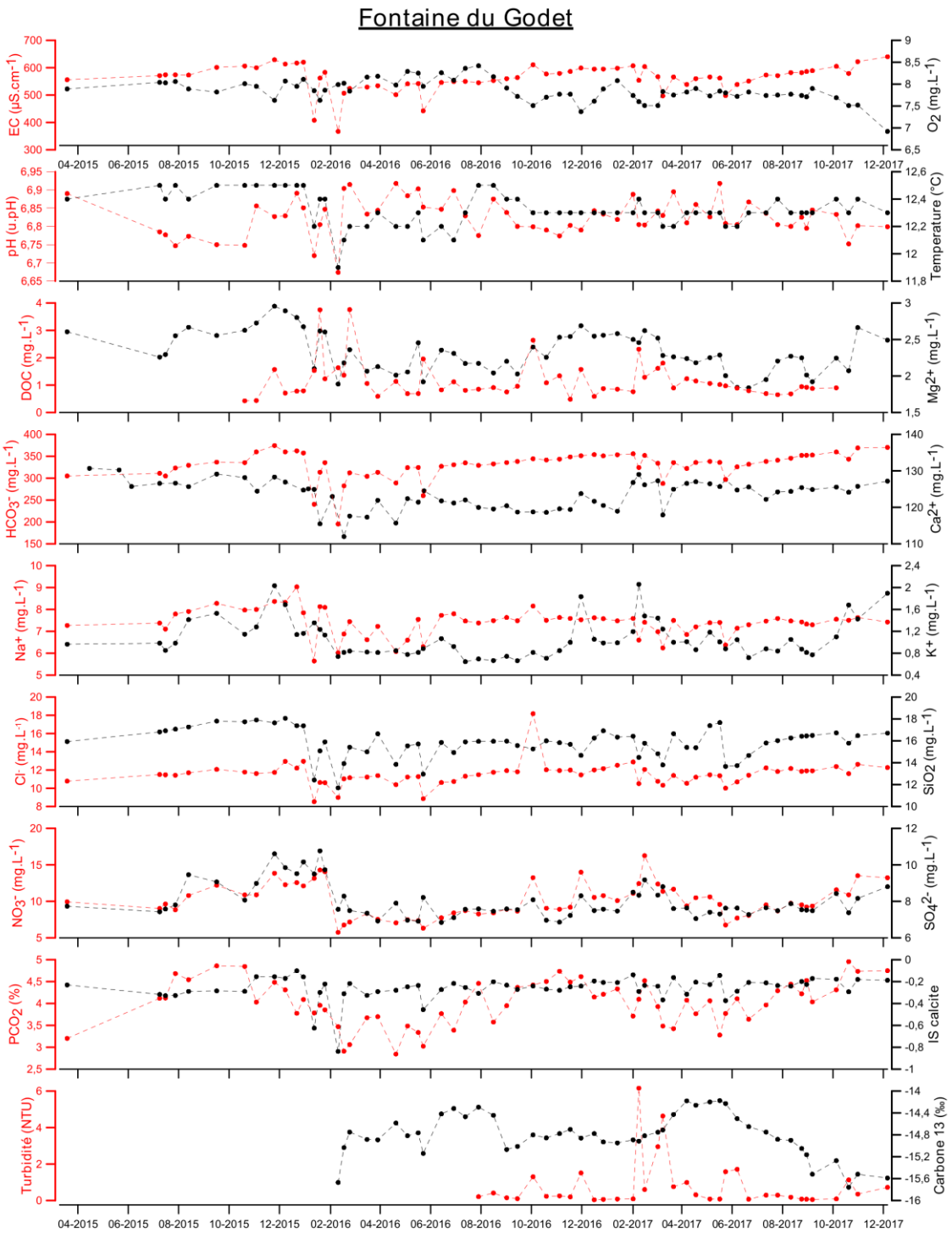
Flacon en polyéthylène HDPE 150 mL

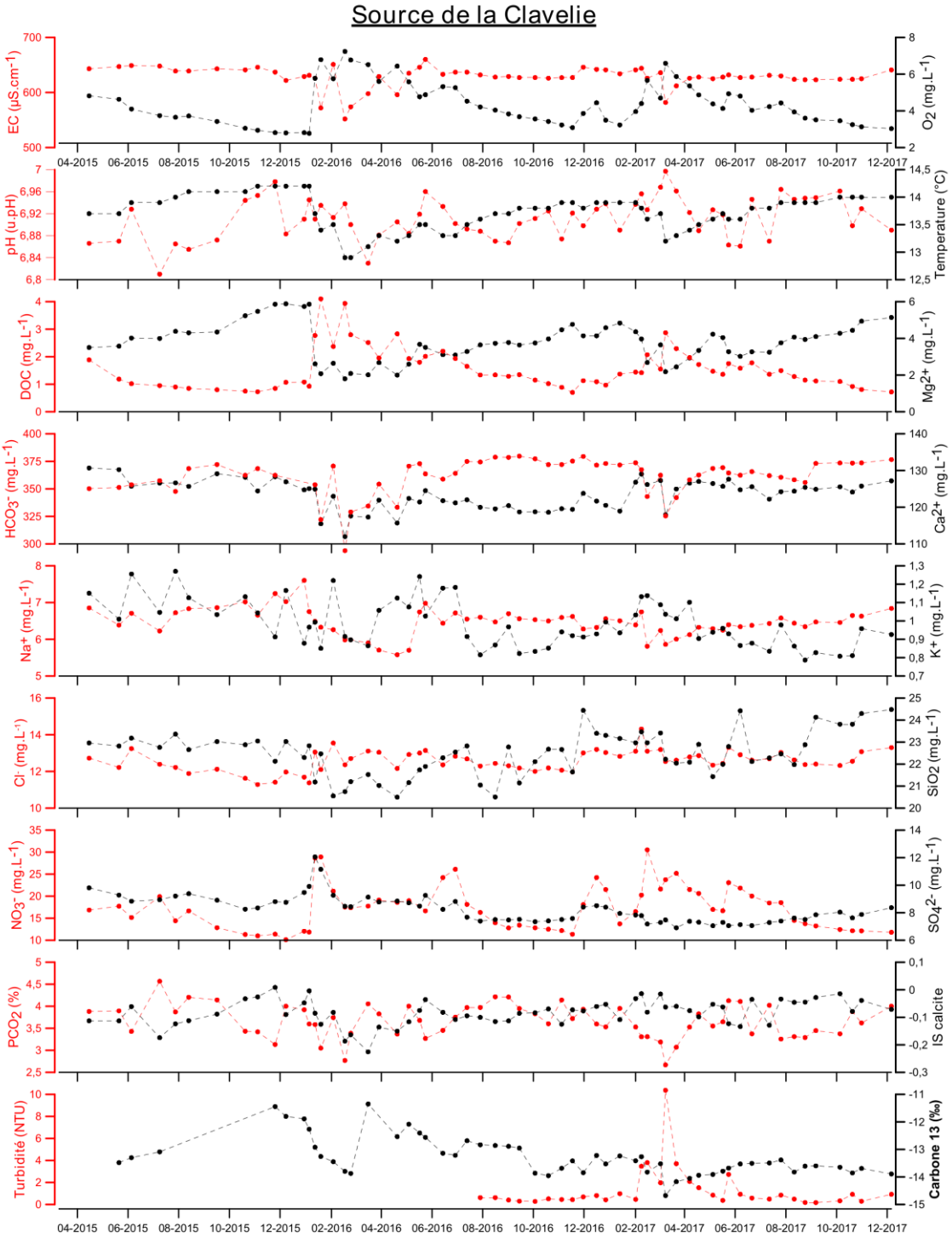
(Archive, ^{15}N)

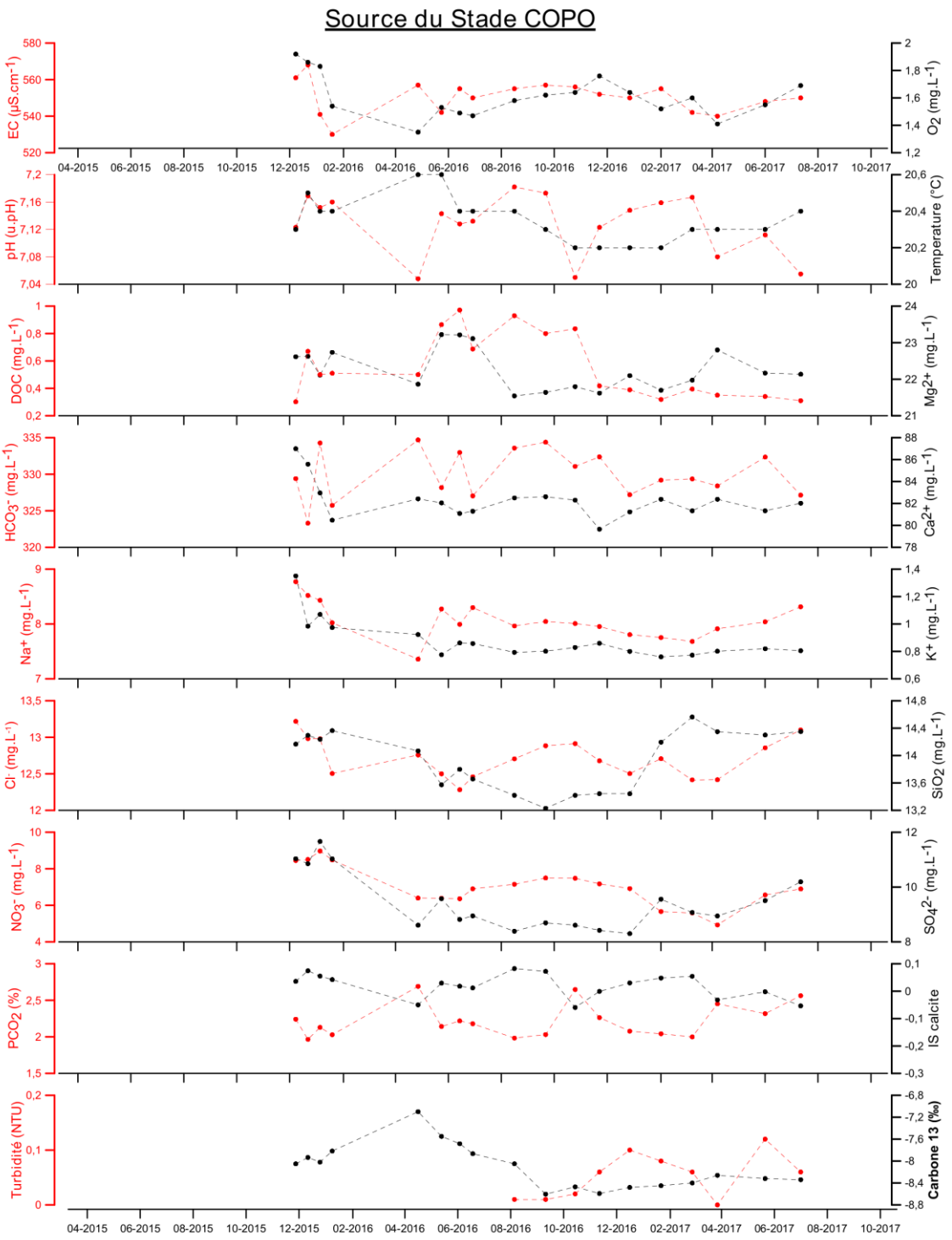
Tube 13 mL

(Silice, Azote)

Annexe 4 : Evolution temporelle des paramètres physico chimiques des sources de Godet, Clavelie, et COPO




Source de la Clavelie
EC (µS.cm-1)
O2 (mg.L-1)
pH (u.pH)
Temperature (°C)
DOC (mg.L-1)
Mg2+ (mg.L-1)
HCO3- (mg.L-1)
Ca2+ (mg.L-1)
Na+ (mg.L-1)
K+ (mg.L-1)
Cl- (mg.L-1)
SiO2 (mg.L-1)
NO3- (mg.L-1)
SO42- (mg.L-1)
PCO2 (%)
IS calcite
Turbidité (NTU)
Carbone 13 (‰)
04-2015 06-2015 08-2015 10-2015 12-2015 02-2016 04-2016 06-2016 08-2016 10-2016 12-2016 02-2017 04-2017 06-2017 08-2017 10-2017 12-2017


Source du Stade COPO
EC (µS.cm-1)
O2 (mg.L-1)
pH (u.pH)
Temperature (°C)
DOC (mg.L-1)
Mg2+ (mg.L-1)
HCO3- (mg.L-1)
Ca2+ (mg.L-1)
Na+ (mg.L-1)
K+ (mg.L-1)
Cl- (mg.L-1)
SiO2 (mg.L-1)
NO3- (mg.L-1)
SO42- (mg.L-1)
PCO2 (%)
IS calcite
Turbidité (NTU)
Carbone 13 (‰)
04-2015
06-2015
08-2015
10-2015
12-2015
02-2016
04-2016
06-2016
08-2016
10-2016
12-2016
02-2017
04-2017
06-2017
08-2017
10-2017

Annexe 5 : Fiches descriptives des traçages réalisés entre 2017 et 2018 par l'Université de Bordeaux

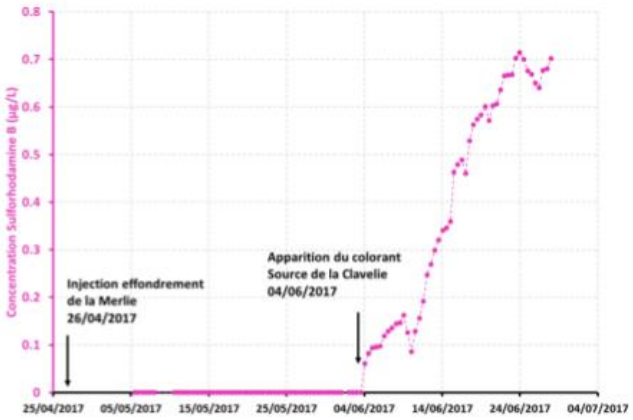
Traçage de l'effondrement de la Merlie

L'injection

Lieu : La Merlie à Champcevinel
Date : 26/04/2017
Colorant : Sulforhodamine B
Quantité : 5 kg
Apport d'eau / infiltration naturelle : Apport de 4 m^3.
Remarques : Le colorant met du temps à s'infiltrer

La restitution

Lieu : Source de la Clavelie
Date de première apparition : 04/06/2017
Surveillance : Préleveur automatique
Vitesse maximale de l'onde colorée : 5.5 $m.h^{-1}$



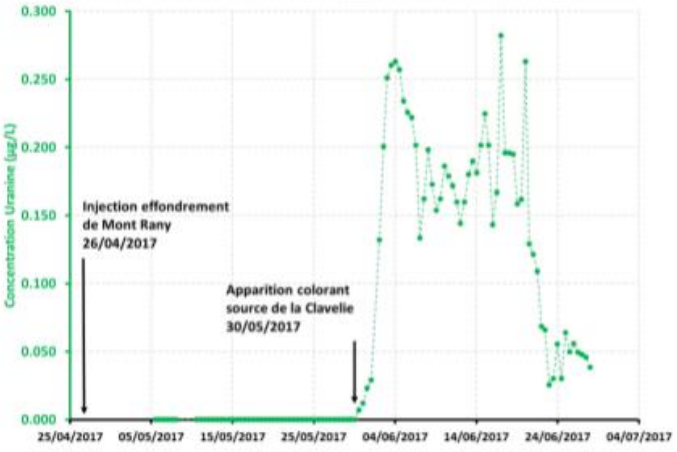
Traçage de l'effondrement Mont-Rany

L'injection

Lieu : Mont-Rany à Cornille
Date : 26/04/2017
Colorant : Fluorescéine sodique
Quantité : 7 kg
Apport d'eau / infiltration naturelle : Apport de 4 m^3.
Remarques : Le colorant met du temps à s'infiltrer

La restitution

Lieu : Source de la Clavelie
Date de première apparition : 30/05/2017
Surveillance : Préleveur automatique
Vitesse maximale de l'onde colorée : 6 $m.h^{-1}$



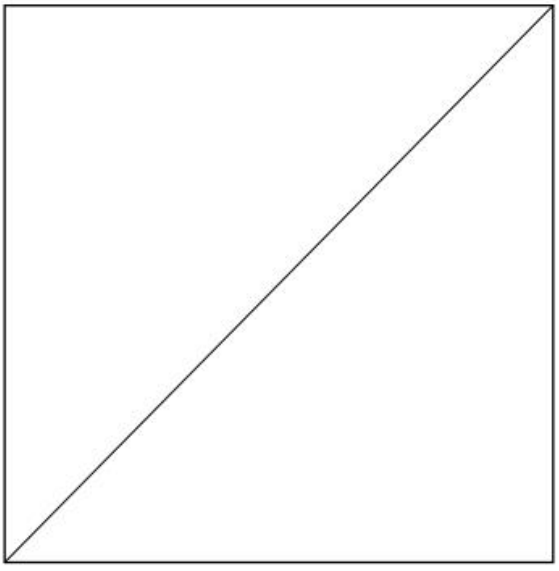
Traçage de la perte de Barrière

L'injection

Lieu : La Barrière à Agonac
Date : 17/07/2017
Colorant : Fluorescéine sodique
Quantité : 8 kg
Apport d'eau / infiltration naturelle : infiltration naturelle
Remarques : le colorant s'infiltre instantanément

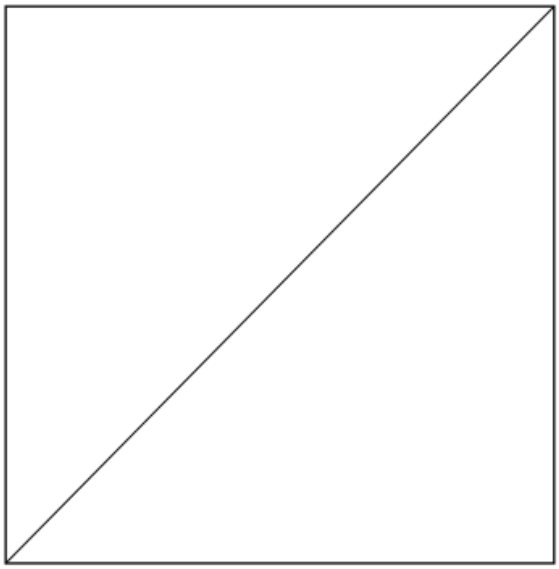
La restitution

Lieu : non retrouvé
Date de première apparition : ?
Surveillance : Préleveur automatique / GGUN
Vitesse maximale de l'onde colorée : ?



Traçage de la perte de Sept-Font

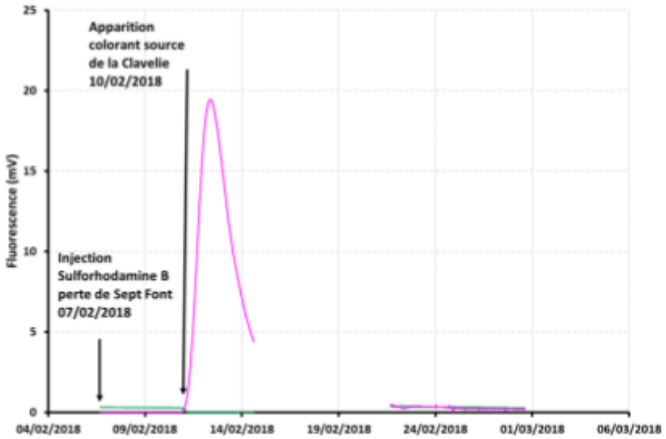
L'injection



Lieu : Setp Font à Champcevinel
Date : 07/02/2018
Colorant : Sulforhodamine B
Quantité : 5 kg
Apport d'eau / infiltration naturelle : infiltration naturelle
Remarques : Le colorant s'infiltre instantanément

La restitution

Lieu : Source de la Clavelie
Date de première apparition : 10/02/2018
Surveillance : GGUN
Vitesse maximale de l'onde colorée : 60 $m.h^{-1}$



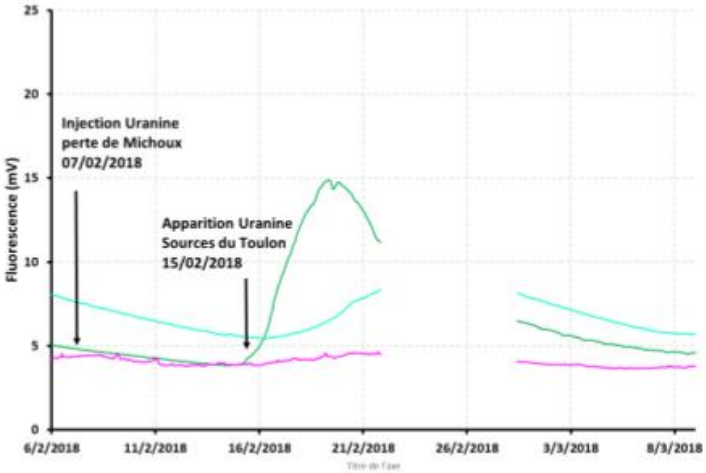
Traçage de la perte de Michoux

L'injection

Lieu : Michoux à Champcevinel
Date : 07/02/2018
Colorant : Fluorescéine sodique
Quantité : 5.5 kg
Apport d'eau / infiltration naturelle : Apport de 4 m^3.
Remarques : Le colorant met du temps à s'infiltrer

La restitution

Lieu : Sources du Toulon
Date de première apparition : 15/02/2018
Surveillance : Préleveur automatique / GGUN
Vitesse maximale de l'onde colorée : 26 $m.h^{-1}$



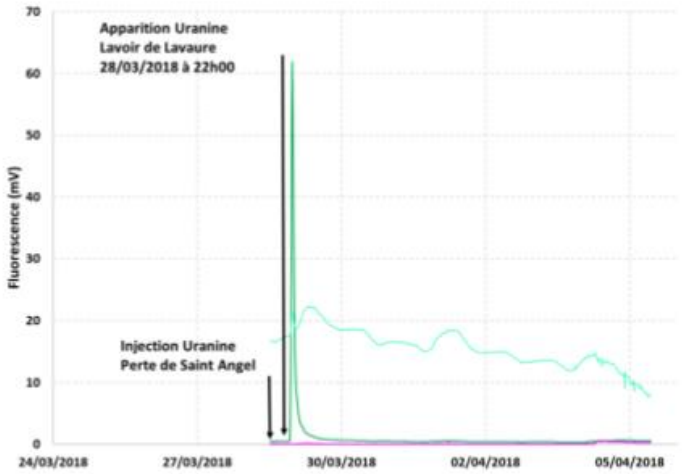
Traçage de la perte de Saint Angel

L'injection

Lieu : Saint-Angel à Chancelade
Date : 28/03/2018 à 14h00
Colorant : Fluorescéine sodique
Quantité : 4.5 kg
Apport d'eau / infiltration naturelle : infiltration naturelle
Remarques : Le colorant s'infiltre instantanément

La restitution

Lieu : Lavoir de Lavaure
Date de première apparition : 28/03/2018 à 22h00
Surveillance : GGUN
Vitesse maximale de l'onde colorée : 134 $m.h^{-1}$



Annexe 6 : Poster présenté à la conférence Eurokarst sur l'utilisation des isotopes des nitrates

Characterization of nitrate sources and fate in a multilayer karst aquifer using $\delta^{15}N$ and $\delta^{18}O$ values (Périgueux, FRANCE)

Lorette G.*[1], Lastennet R.[1], Peyraube N.[1], Buquet D.[1], Denis A.[1], Sebilo M.[2], Vaury V.[2]

1 University of Bordeaux, I2M-GCE CNRS 5295, Pessac, France

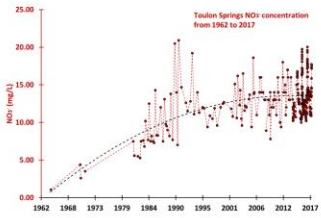
2 UMPC University of Paris, UMR 7618 BIOEMCO, Paris, France

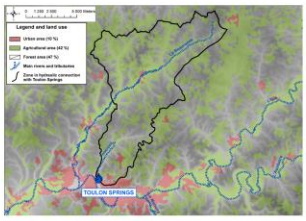
* Corresponding author: guillaume.lorette@u-bordeaux.fr

1 Local situation

In the northern edge of the Aquitaine basin, Toulon Springs are a strategic drinking resource with an annual average discharge of 450 $L.s^{-1}$. These springs are fed by a mulitlayer karst aquifer both from the Jurassic and Cretaceous aquifers. Since 1960, nitrate concentration increases at Toulon Springs. Karst landscape, associated with the land use, is probably responsible of the vulnerability of the karst system.

Rural land use over Toulon Springs hydrogeological catchment implies several possible nitrate sources (agricultural, sewage, spreading sludge, rainfall). Identification of nitrate sources is fundamental for water management issues.





2 Objectives

- Use a multi-isotopic method ($\delta^{15}N_{-NO3^-}$; $\delta^{18}O_{-NO3^-}$) to identify nitrate sources and fate in a multilayer kartst aquifer.

3 Methods

Sampling of nitrate sources to identify nitrate isotopic compositions.

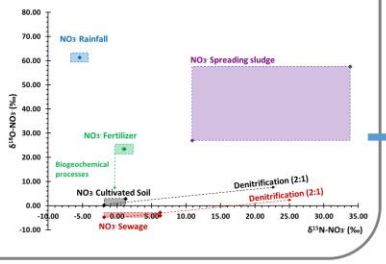
Sampling of Toulon Springs and boreholes to compare with nitrate sources.

Hydrogeological Conceptual model of nitrate sources and fate in the Toulon karst aquifer.

4 Results

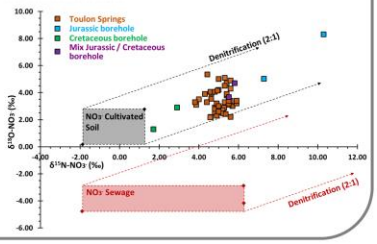
Nitrate isotopic composition from several sources:

- Rainfall
- Fertilizer
- Cultivated soil
- Sewage
- Spreading sludge



Both Toulon Springs and boreholes nitrate isotopic composition imply a nitrate source from cultivated soils with denitrification.

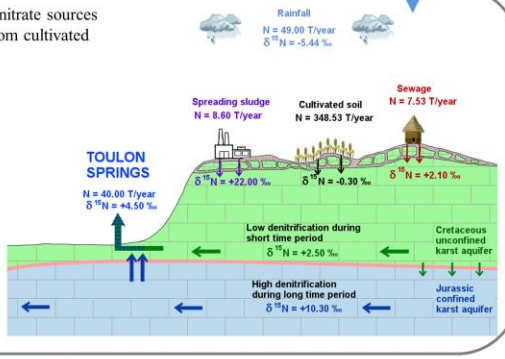
Toulon Springs nitrate isotopic composition is located between Cretaceous pole and Jurassic pole.



Quantification of several nitrate sources confirm the main input from cultivated soils.

Denitrification processes are mainly present into Jurassic confined aquifer, implying high $\delta^{15}N_{-NO3^-}$ values.

$\delta^{15}N_{-NO3^-}$; $\delta^{18}O_{-NO3^-}$ confirm Toulon Springs hydrogeological functioning with a mix between Jurassic and Cretaceous aquifer.



5 Conclusion

The use of nitrate isotope shows:

- the characterization of the nitrate sources in the aquifer,
- A better understanding of hydrogeological functioning associated with nitrate fate in the aquifer.

Annexe 7 : Poster présenté à la conférence Eurokarst sur la dynamique et l'origine de la turbidité

Evaluation of turbidity origins using particle size distribution coupled to SEM and high resolution monitoring

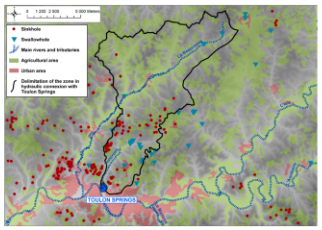
Lorette G.*[1], Peyraube N.[1], Lastennet R.[1], Denis A.[1], Sabidussi J.[1], Fournier M.[2], Viennet D.[2], Gonand J.[2], Villanueva J.D.[3]

1 University of Bordeaux, I2M-GCE CNRS 5295, Pessac, France
2 University of Rouen, UMR CNRS 6143 M2C, Mont Saint Aignan, France
3 University of Philippines at Los Banos, SESAM College, Philippines
* Corresponding author: guillaume.lorette@u-bordeaux.fr

1 Local situation

Toulon Springs are major springs in South-west of France with annual average discharge of 450 $L.s^{-1}$. These springs are supplying water to the metropolitan area of Périgueux. As many karst springs, Toulon Springs have turbidity troubles during flood events.

Hydrogeological catchment of Toulon Springs has typical karst landscape (sinkhole, swallow hole) which could imply complex infiltration processes, associated with rural land use.



2 Objectives

- Use a multidisciplinary method to evaluate turbidity origins.
- Identify vulnerability period of Toulon Springs.
- Propose a conceptual model of infiltration in Toulon karst system.

3 Methods

Particle size distribution to differenciate particle size classes during February 2017 flood event.

Scanning electron microscope (SEM) to identify mineral and organic turbidity.

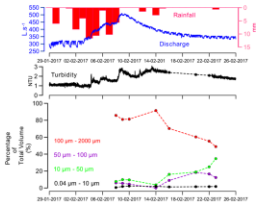
High Resolution monitoring of geochemical parameters to identify infiltration periods.

Conceptual model of infiltration in Toulon karst system using previous results.

4 Results

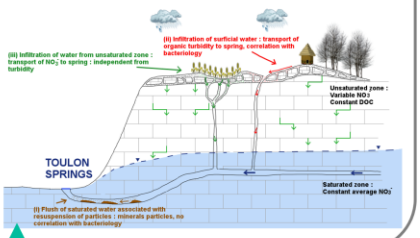
2 main particles size classes :

- **Large particles** (100µm - 2000 µm), associated with discharge increase.
- **Thin particles** (10µm - 100µm), associated with turbidity increase during depletion.

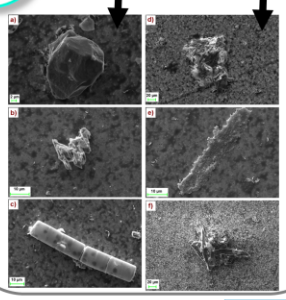


Previous results lead to develop a conceptual model of infiltration and vulnerability associated with turbidity origins.

- **Autochthonous turbidity.**
- **Allochthonous turbidity.**
- **Infiltration independant with turbidity and bacteriology.**



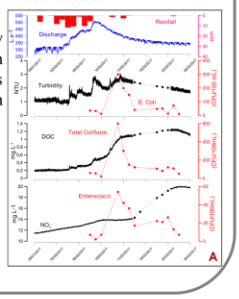
Large particles : **Mineral** (quartz, and calcite).
Thin particles : **Organic** (algae, organo-mineral floc)



The first turbidity increase (large mineral particles) is not associated with infiltration tracers.

The second turbidity increase (thin organic particles) is associated with infiltration tracers.

Nitrate is independant of turbidity and faecal contaminations.



5 Conclusion

- This work leads to identify two main turbidity sources (autochthonous and allochthonous) and their characteristics (mineral or organic).
- Vulnerability period are identify with thin turbidity (50 µm - 100 µm) associated with infiltration tracers.

Résumé

Ce travail de thèse s'inscrit dans une démarche d'approfondissement des connaissances du fonctionnement des aquifères karstiques. Pour cela, le site pilote des Sources du Toulon, siège d'une alimentation multiréservoirs, a été choisi et offre une fenêtre d'observation privilégiée sur les relations hydrogéologiques entre les aquifères de la marge Nord du Bassin aquitain. Elles sont utilisées depuis 1832 pour l'alimentation en eau potable de la ville de Périgueux, et constituent actuellement son unique ressource.

L'objectif de ce travail a été de tester une approche multi-traceurs et un suivi haute-résolution pour caractériser le fonctionnement et la vulnérabilité d'un aquifère karstique multicouche.

L'utilisation d'une approche couplée hydrodynamique et hydrochimie a mis en évidence l'alimentation des Sources du Toulon par une ressource profonde et captive en complément d'un aquifère libre plus superficiel. Ces informations ont été intégrées dans le contexte hydrogéologique global de la zone d'étude pour proposer une nouvelle délimitation du bassin d'alimentation des Sources du Toulon.

L'utilisation d'un suivi haute-résolution a permis de préciser le fonctionnement hydrogéologique du système karstique étudié. Il en ressort des fonctionnements différents suivants les crues, avec des transferts de masse pouvant s'étendre de quelques jours à quelques semaines.

L'apport des isotopes des nitrates ($\delta^{15}N_{-NO3^-}$; $\delta^{18}O_{-NO3^-}$) a permis d'identifier deux origines des nitrates mesurés dans les eaux de surface et souterraines : les fertilisants minéraux de synthèse utilisés pour l'agriculture, et les rejets d'assainissement individuels.

L'évaluation temporelle de la vulnérabilité spécifique des Sources du Toulon à certains marqueurs de contamination tels que les particules, les éléments bactériologiques et les nitrates a permis de distinguer plusieurs masses d'eau superficielles et subsuperficielles participant à l'alimentation pendant les crues, et jouant un rôle différent dans le transfert des contaminants.

Mots clés : *Karst, hydrochimie, hydrodynamique, suivi haute-résolution, traçage artificiel, isotopes des nitrates, turbidité, bactériologie.*