

UNIVERSITE DES SCIENCES ET TECHNOLOGIES DE LILLE

Année : 2005

N° d'ordre : 3632

THESE DE DOCTORAT

Préparée au

Laboratoire de Mécanique de Lille (UMR 8107)
Ecole Polytechnique Universitaire de Lille

Spécialité

Génie Civil

Titre

**Etude de l'impact d'une pollution accidentelle et d'une
pollution agricole sur les ressources en eau souterraine**

Par

Eddy EL TABACH

Soutenue le 5 juillet 2005 devant le jury composé de :

H. MAILLOT

A. OUAHSINE

A. JULLIEN

S-H CHEN

I. SHAHROUR

L. LANCELOT

Président-Professeur, USTL, Lille.

Rapporteur-Professeur, UTC, Compiègne.

Rapporteur-HDR, Directrice de recherche, LCPC, Nantes.

Examineur-Professeur, UW, Wuhan.

Directeur de thèse-Professeur, USTL, Lille.

Co-directeur de thèse-Mdc, USTL, Lille.

AVANT-PROPOS

Ce travail de recherche a été réalisé au Laboratoire de Mécanique de Lille (LML), équipe sols et structures, département de Géotechnique et Génie Civil (GTGC) à l'École Polytechnique Universitaire de Lille (EPUL), Université des Sciences et Technologies de Lille (USTL).

Au terme de cette recherche, il m'est très agréable d'exprimer toute ma gratitude, ma reconnaissance et mes très vifs remerciements à tous ceux qui ont contribué de près ou de loin à l'élaboration de ce sujet de thèse.

En premier lieu, j'exprime ma profonde reconnaissance et mes sincères remerciements à mes directeurs de thèse, Isam SHAHROUR professeur à l'Université des Sciences et Technologies de Lille, et Laurent LANCELOT, maître de conférence à l'Université des Sciences et Technologies de Lille.

Monsieur le professeur **I. SHAHROUR** m'a accueilli dans son laboratoire, m'a réservé des moments précieux de discussion et m'a facilité toutes les conditions pour mener ce travail à bien. Je le remercie infiniment pour son apport à la grande cohérence de ce manuscrit, pour ces précieux conseils, sa disponibilité et sa sympathie.

Monsieur **L. LANCELOT** m'a fait profiter de son expérience. Je le remercie vivement pour toutes les discussions, suggestions et ces précieux conseils. Je lui exprime mes très vifs remerciements et mon profond respect.

Je tiens à remercier très vivement et respectueusement Monsieur **H. MAILLOT**, professeur à l'Université des Sciences et Technologies de Lille, directeur du mastère spécialisé en génie de l'eau, qui m'a fait l'honneur de présider le jury de thèse.

Monsieur le professeur **A. OUAHSINE** de l'Université de Technologie de Compiègne, a bien voulu être rapporteur de ma thèse. Je le remercie vivement pour ces nombreux conseils, suggestions et discussions. Je lui exprime ma profonde reconnaissance.

Madame **A. JULLIEN**, directrice de recherche au Laboratoire Central des Ponts et Chaussées, Nantes, a accepté de rapporter ma thèse. Qu'elle trouve ici l'expression de mes sincères remerciements.

Monsieur le professeur **S-H. CHEN** de l'Université de Wuhan, qui a bien voulu examiner ce travail. Je le remercie très sincèrement pour sa sympathie, ses remarques et ses discussions les plus intéressantes.

J'adresse mes plus vifs remerciements à Monsieur le professeur **Y. NAJJAR** de l'Université de Kansas, pour ces conseils judicieux, suggestions et discussion pendant son séjour à Lille.

Je voudrais également remercier Monsieur **J. MANIA**, professeur à l'Université des Sciences et Technologies de Lille, pour ses remarques et conseils scientifiques avertis.

Je remercie également Monsieur **O. BANTON**, concepteur du logiciel Agriflux2.0, pour le temps qu'il m'a accordé en répondant à mes questions.

Je veux aussi remercier Monsieur **D. BERNARD**, chef de mission eau potable à l'agence de l'eau Artois-Picardie. Son appui ne m'a jamais fait défaut.

Monsieur **A. ZAOUI**, professeur à l'Université des Sciences et Technologies de Lille, m'a fait profiter de son expérience, je lui en suis très reconnaissant.

Monsieur **H. MROUEH**, maître de conférence à l'Université des Sciences et Technologies de Lille, m'a consacré beaucoup du temps en tant que tuteur durant mes années de monitorat. Je le remercie vivement.

Monsieur **C. VACHET**, responsable de la Direction Départementale de l'Équipement d'Avesnes sur Helpe, cellules études et travaux neufs, m'a accordé les documents nécessaires. Je le remercie très sincèrement pour sa sympathie et pour ses nombreux conseils pratiques et méthodologiques.

Mes sincères remerciements à la société Lyonnaise des Eaux et à l'agence de l'eau Artois-Picardie qui ont financé la partie de recherche concernant le transfert des nitrates dans la zone non saturée du champ captant de Houlle et Moule.

Je remercie ma fiancée **L. BOUZAOU** qui m'a soutenu toute au long de cette thèse.

Je ne saurai oublier tous mes amis de l'École Polytechnique Universitaire de Lille, pour leur ambiance agréable dans laquelle s'est déroulé ce travail, leur sympathie et leur soutien durant toutes ces années de recherche. Je cite **L. BOUZAOU**, **E. LEFEVRE**, **R. JAAFAR**, **B. ALI**, **I. DAWOOD**, **M. SIBAI**, **L. KHALIL**, **A. JALBOUT**, **R. ALABDEH**, **S. RIAD**, **Z. LAFHAJ**, **F. BARREZ**, **W. DARDOURI**, **F. NAGHI**, **N. BELAYACHI**, **H. SERHAL**, **I. YURTDAS**, **M. SADEK**, **K. MROUEH**, **S. LACHEREZ-BASTIN**, **H. SALEH**, **N. RAILINIRINA**, **R. SAM**, **A. MOHAMAD HUSSEIN**, **N. BELAYACHI**, **M. EILA**, **S. JALALA**, **K. MAHALAOUI**, **A. AYOUB**, **M. GHEMRAOUI**, **I. MOUSSA**.

Je remercie enfin mes parents que j'aime tant et toute ma famille. Ce travail leur appartient.

RÉSUMÉ

Le travail de thèse concerne la protection des ressources en eau souterraines contre les pollutions de types accidentel et agricole.

Il comporte trois parties :

- La première partie présente une analyse bibliographique des mécanismes de transfert de polluants dans la zone non saturée. Elle expose les techniques de résolution numérique des équations régissant ces transferts (approche mécaniste). Des approches de type « traitement de données » sont également présentées. L'accent est mis sur les réseaux de neurones, qui sont de plus en plus utilisés dans le domaine de l'environnement.
- La deuxième partie traite de la migration des polluants non-miscibles (de type hydrocarbures ou solvants chlorés) dans la zone non saturée provenant d'une source de pollution accidentelle liée à un accident routier. Après une analyse bibliographique sur l'accident de référence, sur les polluants les plus transportés sur les routes et sur les logiciels disponibles, on présente la zone d'étude et les essais effectués au laboratoire pour déterminer le coefficient de perméabilité à saturation et les paramètres de Van Genuchten de la couche de couverture. On donne ensuite les résultats de l'étude paramétrique sur un exemple de référence à l'aide du code NAPL-Simulator (Guarnaccia *et al.*, 1997). Cette étude permet de dégager les paramètres prépondérants. Ces paramètres sont ensuite considérés pour la construction d'une base de données qui sert à la calibration d'un modèle basé sur les « réseaux de neurones ». Ce modèle est utilisé dans le cas de l'étude de l'impact de l'aménagement de la RN2 entre Avesnes sur Helves et Maubeuge sur les champs captants du synclinal de Bachant.
- La troisième partie traite de la migration d'une pollution diffuse d'origine agricole (nitrates) dans la zone non saturée. On présente la zone d'étude et les résultats des suivis in situ, en ce qui concerne d'une part les apports d'engrais en surface (historiques culturaux) et d'autre part les mesures de profils en nitrates effectués pour certains sondages. On présente ensuite la construction de la base de données. Les variables d'entrée retenues sont les historiques culturaux en surface (apports d'azote), l'épaisseur de la couche de couverture limoneuse en dessous de la zone racinaire, la profondeur de la nappe et le temps. Finalement, on présente le modèle de réseaux de neurones artificiels et son application à la construction de cartes de contamination en nitrates de la partie supérieure de la nappe.

Mots clés : Eau souterraine, étude expérimentale, étude numérique, hydrocarbures, nitrates, pollution accidentelle, pollution diffuse, réseaux de neurones artificiels, route, séchage-humidification, sol partiellement saturé, trichloroéthylène.

ABSTRACT

The work described in this thesis relates to the protection of the subsoil water resources against accidental and agricultural pollutions.

It comprises three parts:

- The first part presents a bibliographical analysis of pollutants transfer mechanisms in the unsaturated zone. It exposes the numerical resolution techniques of the equations governing these transfers (mechanist approach). Approaches of the type " data processing " are also presented. Special attention is addressed to artificial neural networks, which are used more and more in the environmental field.
- The second part deals with non-miscible pollutants migration (of hydrocarbons type or chlorinated solvents) in the unsaturated zone, coming from an accidental pollution source related to a road accident. After a bibliographical analysis on the reference accident, on the pollutants most transported on roads and the software available, we present the study zone and the tests carried out at the laboratory to determine the saturation permeability coefficient and the Van Genuchten parameters of the cover layer. Then, we give the results of the parametric study on a reference example using the code NAPL-Simulator (Guarnaccia *et al.*, 1997). This study allows identifying key parameters. These parameters are then considered for the construction of a database, which is used for a model calibration based on the "neural networks". This model is used in the case of the impact study of the RN2 project between Avesnes on Helves and Maubeuge on the drinking water catchments of Bachant synclinal.
- The third part deals with diffuse pollution migration of agricultural origin (nitrates) in the unsaturated zone. We present the study zone and the in situ monitoring results, with regard to, on the one hand the manure contributions on the surface (cultural histories), and on the other hand measurements of nitrates profiles carried out for certain surveys. We present then the construction of the database. The input variables selected are the cultural histories at the surface (nitrogen contributions), the thickness of the silty cover layer below the root zone, the depth of the water table, and time. Finally, we present the artificial neural network model and its application to the construction of nitrates contamination maps of the water table surface.

Key words: Accidental pollution, artificial neural network, diffuse pollution, drying-humidification, experimental study, hydrocarbons, nitrates, numerical study, road, subsoil water, trichloroethylene, unsaturated soil.

SOMMAIRE

AVANT-PROPOS	1
RÉSUMÉ	3
ABSTRACT.....	4
SOMMAIRE	5
LISTE DES ABRÉVIATIONS.....	9
PRINCIPALES SYMBOLES UTILISÉS	10
LISTE DES TABLEAUX	11
LISTE DES FIGURES	13
INTRODUCTION GENERALE.....	18
PARTIE A: MECANISMES DU TRANSFERT DES POLLUANTS DANS LA ZONE NON SATURÉE DES SOLS-SYNTHESE BIBLIOGRAPHIQUE	21
CHAPITRE I : MECANISMES DU TRANSFERT DES POLLUANTS DANS LA ZONE NON SATURÉE DES SOLS - SYNTHESE BIBLIOGRAPHIQUE	
I.1- Introduction	22
I.2- Le devenir des polluants dans les sols	22
<i>I.2.1- Processus intervenants dans l'atténuation naturelle (Nowak et al., 2002).....</i>	<i>22</i>
<i>I.2.2- Paramètres régissant les transferts de polluants dans les sols</i>	<i>24</i>
<i>I.2.2.1- Caractéristiques physico-chimiques des contaminants.....</i>	<i>24</i>
<i>I.2.2.2- Propriétés du milieu traversé</i>	<i>26</i>
I.3- Modèles hydro-mécaniques des transferts.....	27
<i>I.3.1- Ecoulement de l'eau dans un sol partiellement saturé.....</i>	<i>27</i>
<i>I.3.1.1- Equation de continuité.....</i>	<i>27</i>
<i>I.3.1.2- Equation dynamique</i>	<i>28</i>
<i>I.3.1.3- Equation d'écoulement</i>	<i>28</i>
<i>I.3.2- Ecoulement de fluides miscibles</i>	<i>29</i>
<i>I.3.3- Ecoulement polyphasiques</i>	<i>31</i>
<i>I.3.3.1- Saturation</i>	<i>31</i>
<i>I.3.3.2- Pression capillaire.....</i>	<i>32</i>
<i>I.3.3.3- Perméabilité relative</i>	<i>33</i>
<i>I.3.3.4- Equations d'écoulement</i>	<i>35</i>
<i>I.3.4- Avantages et inconvénients de l'approche hydro-mécanique</i>	<i>35</i>
I.4- Approche « traitements de données ».....	35
<i>I.4.1- La régression</i>	<i>36</i>
<i>I.4.2- Réseaux de neurones artificiels</i>	<i>38</i>
<i>I.4.2.1- Introduction</i>	<i>38</i>
<i>I.4.2.2- Description des réseaux de neurones artificiels.....</i>	<i>38</i>
<i>I.4.2.3- Les perceptrons multicouches à rétropropagation de l'erreur (MLP).....</i>	<i>40</i>
I.5- Conclusions	45

PARTIE B: POLLUTION ACCIDENTELLE-SYNTHESE BIBLIOGRAPHIQUE .. 46

CHAPITRE II : POLLUTION ACCIDENTELLE - SYNTHESE BIBLIOGRAPHIQUE	47
II.1- Introduction	47
II.2- Sources de pollution et types de polluants	47
II.2.1- Origines des polluants.....	47
II.2.2- Transport de matières dangereuses (TMD)	48
II.2.2.1- Le trafic des TMD	48
II.2.2.2- Le transport par route	49
II.2.2.3- Caractéristiques des produits concernés	49
II.3- Accident de référence.....	52
II.3.1- Fréquence des accidents	52
II.3.2- Circonstances des accidents.....	52
II.3.3- Nature des déversements.....	52
II.3.4- Types d'accidents	54
II.4- Polluants considérés dans cette étude.....	55
II.4.1- Classes de toxicité – Influence sur la qualité de l'eau potable.....	55
II.4.2- Paramètres physico-chimiques des polluants étudiés.....	56
II.5- Conclusions	57
CHAPITRE III : PRESENTATION DU CAS ETUDIE	58
III.1- Introduction.....	58
III.2- Contexte de l'étude	58
III.2.1- Contexte géologique.....	58
III.2.2- Contexte hydrogéologique	59
III.3- Données de la zone d'étude	59
III.3.1- Données hydrogéologiques.....	59
III.3.2- Perméabilité et propriétés de rétention des limons des plateaux	60
III.3.2.1. Mesure de la perméabilité des limons saturés	60
III.3.2.2- Détermination expérimentale des courbes de rétention	67
III.4- Conclusions.....	73
CHAPITRE IV : MODELISATION NUMERIQUE PAR ELEMENTS FINIS	74
IV.1- Introduction.....	74
IV.2- Outils de calculs.....	74
IV.2.1- Les logiciels disponibles	74
IV.2.2- Un exemple de code de calcul : NAPL-Simulator.....	75
IV.3- Exemple de référence	77
IV.4- Discrétisation du domaine et phases de calcul	79
IV.5- Résultats.....	80
IV.6- Etude paramétrique	81
IV.6.1- Paramètres physiques	82
IV.6.1.1- Perméabilité intrinsèque k de la couche de couverture	82
IV.6.1.2- Influence des paramètres de capillarité de la couche de couverture.....	83
IV.6.2- Paramètres hydrogéologiques	83
IV.6.2.1- Epaisseur de la couche de couverture H_c	83
IV.6.2.2- Influence de la profondeur de la nappe P_N	85
IV.6.3- Paramètres liés aux circonstances de l'accident.....	86
IV.6.3.1- Influence du temps de contact polluant-surface du sol.....	86
IV.6.3.2- Influence de l'épaisseur du polluant.....	87
IV.6.3.3. Effet de la nature du polluant.....	87
IV.6.3.4- Influence du lessivage par temps de pluie.....	88
IV.7- Conclusions.....	90

CHAPITRE V : ETUDE DU RISQUE DE CONTAMINATION PAR LES RESEAUX DE NEURONES

ARTIFICIELS	91
V.1- Introduction	91
V.2- Modèles de prévision à partir des données simulées	91
V.2.1- Base de données	91
V.2.2- Modèle de régression linéaire multiple	94
V.2.3- Modèles de réseaux de neurones artificiels.....	94
V.2.3.1- Architecture des modèles.....	94
V.2.3.2- Performance des modèles.....	97
V.3- Prévison de la profondeur de la zone contaminée dans le cas du projet de la RN2 .	100
V.3.1- Cartographie en plan	100
V.3.2- Profil de pollution suivant l'axe du projet routier	105
V.4- Etude de différents scénarios d'accidents	108
V.4.1- Zone à risque faible	109
V.4.1.1- Influence du délai d'intervention.....	109
V.4.1.2- Influence du lessivage par temps de pluie.....	111
V.4.1.3- Effet d'une période de pluie avant le déversement.....	111
V.4.2- Zone présentant un risque notable	115
V.4.2.1- Influence du délai d'intervention.....	115
V.4.2.2- Influence du lessivage par temps de pluie.....	115
V.4.2.3- Effet d'une période de pluie avant le déversement.....	115
V.5- Conclusions	120

PARTIE C: POLLUTION DIFFUSE DES NITRATES D'ORIGINE AGRICOLE.. 121

CHAPITRE VI : POLLUTION DIFFUSE DES NITRATES D'ORIGINE AGRICOLE.....	122
VI.1- Introduction.....	122
VI.2- Travaux antérieurs sur la migration des nitrates vers les nappes.....	123
VI.3- Présentation de la zone d'étude et résultats des suivis in situ.....	126
VI.3.1- Délimitation de la zone d'étude	126
VI.3.2- Contexte hydrogéologique	126
VI.3.3- Résultat des suivis in situ	129
VI.3.3.1- Campagne de sondages.....	129
VI.3.3.2- Contexte pédologique.....	130
VI.3.3.3- Données piézométriques.....	130
VI.3.3.4- Suivi agronomique	132
VI.4- Modélisation numérique	134
VI.4.1- Principaux logiciels pour le transfert des solutés.....	134
VI.4.2- Les logiciels utilisés : AgriFlux2.0 et WHI UnSat Suite Plus	135
VI.4.2.1- AgriFlux2.0	135
VI.4.2.2- WHI UnSat Suite Plus	136
VI.4.3- Cas de référence pour le problème étudié	139
VI.4.3.1- Présentation du cas de référence	139
VI.4.3.2- Phases de calcul.....	141
VI.4.3.3- Résultats	142
VI.4.4- Etude paramétrique.....	145
VI.4.4.1- Influence du temps de simulation (t).....	145
VI.4.4.2- Influence de l'épaisseur de la couche de couverture (H'_c).....	146
VI.4.4.3- Influence de la profondeur de la nappe (P'_N).....	146
VI.4.4.4- Influence du type de culture présent à la surface du sol.....	146
VI.4.4.5- Influence de la précipitation annuelle totale	146

VI.5- Pr�vision de la migration des nitrates vers la nappe de la craie par RNA.....	148
VI.5.1- <i>Approches traitements de donn�es</i>	148
VI.5.1.1- <i>Base de donn�es</i>	149
VI.5.1.2- <i>Mod�le de r�gression lin�aire multiple (RLM)</i>	150
VI.5.1.3- <i>Mod�le de r�seau de neurones artificiels</i>	151
VI.5.2- <i>R�sultats et discussions</i>	155
VI.6- Conclusions.....	155
CONCLUSION GENERALE	158
R�F�RENCES BIBLIOGRAPHIQUES	160
SITES INTERNET	174
ANNEXES	176
ANNEXE 1	177
ANNEXE 2.....	196
ANNEXE 3.....	209
ANNEXE 4.....	214
ANNEXE 5.....	219
ANNEXE 6.....	236

LISTE DES ABRÉVIATIONS

Notation	Définition
AFNOR	Association Française de NORmalisation.
BRGM	Bureau de Recherche Géologique et Minière.
CE	Commission Européenne.
CIRC	Centre International de Recherche sur le Cancer.
DAEI	Département des Affaires Européennes et Internationales.
DDE	Direction Départementale de l'Équipement du Nord.
DIREN	Direction Régionale de l'Environnement.
DMJ	Dose Moyenne Journalière.
DNAPL	Dense Non Aqueous Phase Liquid.
DT	Dissipation Time.
EDR	Evaluation Détaillée des Risques.
EPA	Environment Protection Agency.
ESR	Evaluation Simplifiée des Risques.
FAO	Food and Agriculture Organisation.
HAP	Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques.
IARC	International Agency for research on Cancer.
IFP	Institut Français du Pétrole.
INERIS	Institut National de l'Environnement industriel et des RISques.
INRS	Institut National de Recherche et de Sécurité.
LRPC	Laboratoire Régional des Ponts et Chaussées.
MATE	Ministère de l'Aménagement du Territoire et de l'Environnement.
MEDD	Ministère de l'Écologie et du Développement Durable.
MLP	Multi-Layer Perceptron.
NAPL	Non Aqueous Phase Liquid.
NF	Norme Française.
OCDE	Organisation de Coopération et de Développement Economique.
OMS	Organisation Mondiale de la Santé.
RG	Recensement Général Agricole.
RLM	Régression Linéaire Multiple
RN2	Route Nationale entre Avesnes sur Helyes et Maubeuge.
RNA	Réseaux de Neurones Artificiels.
RTMDR	Règlement pour le Transport des Matières Dangereuses par Route.
SAGE	Schéma d'Aménagement et de Gestion des Eaux.
SDAGE	Schéma Directeur d'Aménagement et de Gestion des Eaux.
SETRA	Service d'Etudes Techniques des Routes et Autoroutes.
SEQ	Système d'Evaluation de la Qualité.
TCE	Trichloroéthylène.
TMD	Transport de Matières Dangereuses.
UE	Union Européenne.
ZNS	Zone Non Saturée.
ZS	Zone Saturée.

PRINCIPALES SYMBOLES UTILISÉS

Notation	Unité	Définition
\bar{S}_α	-	Degré de saturation effective de la phase α .
α	-	Représente les phases eau, air ou polluant.
ϕ	-	Porosité du milieu poreux.
Θ	-	Teneur en eau réduite.
σ	-	Tension interfaciale.
ρ_α	$\text{kg}\times\text{m}^{-3}$	Densité de la phase α .
μ_α	$\text{Pa}\times\text{s}$	Viscosité de la phase α .
σ_{es}	-	Tension interfaciale eau-solide.
β_{ij}	-	Facteur d'échelle propre à la paire de fluide i et j.
σ_{pe}	-	Tension interfaciale polluant-eau.
σ_{ps}	-	Tension interfaciale polluant-solide.
θ_r	-	Teneur en eau volumique résiduelle.
θ_s	-	Teneur en eau volumique saturée.
a	m^{-1}	Paramètre de calage dans l'équation de Van Genuchten.
D	m	Profondeur de la zone contaminée.
e	m	Charge de polluant à la surface du sol.
F	-	Fonction d'activation de type sigmoïde.
f_{oc}	-	Fraction de carbone organique.
g	$\text{m}\times\text{s}^{-2}$	Accélération de la pesanteur.
H_c	m	Épaisseur de la couche de couverture.
k	m^2	Perméabilité intrinsèque de la couche de couverture.
K_d	-	Coefficient de distribution.
K_{oc}	m^3/kg	Coefficient de sorption.
$K_{r\alpha}$	-	Perméabilité relative à la phase α .
n	-	Paramètre de calage dans l'équation de Van Genuchten.
P_α	kPa	Pression de la phase α .
P_{cij}	kPa	Pression capillaire entre les fluides i et j.
P_N	m	Profondeur de la nappe phréatique.
Q	m^3	Quantité de polluant injectée dans le sol.
S_α	-	Degré de saturation de la phase α .
t_c	j	Temps de contact polluant-surface du sol.
W_{ij}	-	Poids de connexion entre deux neurones i et j.
X_i	-	Vecteur de valeurs d'entrées du réseau de neurones artificiels.
Y_k	-	Vecteur de valeurs de sorties du réseau de neurones artificiels.
Z	m	Profondeur.

LISTE DES TABLEAUX

Tableau I.1 : Influence des propriétés physico-chimiques des polluants sur les processus d'atténuation naturelle (modifié Nowak et al., 2002).....	25
Tableau I.2 : Influence des propriétés du milieu sur les processus de migration des polluants (Nowak et al., 2002).	26
Tableau II.1 : Classement par famille « comportementales » des produits organiques (BRGM, 1999).....	50
Tableau II.2 : Principaux produits composant la phase soluble dans les produits pétroliers (Martin et Roux, 1999).	51
Tableau II.3 : Nature des produits liquides concernés par les accidents avec déversement (d'après Martin et Roux, 1999).	53
Tableau II.4 : Caractéristiques des accidents avec déversement (Martin et Roux, 1999).	54
Tableau II.5 : Classement des produits selon la toxicité (Martin et Roux, 1999).	55
Tableau II.6 : Concentration admissible des trois produits étudiés dans les eaux de consommations.	56
Tableau II.7 : Propriétés physico-chimiques des 3 polluants étudiés.	56
Tableau III.1 : Résultats des essais Lefranc pour les sondages L1, L2, L3 et L4 (SOLEN, 2002).	65
Tableau III.2 : Paramètres de Van Genuchten pour les 4 sondages mesurés par l'oedomètre et l'extracteur à pression d'air.	69
Tableau IV.1 : Principales caractéristiques des différents modèles trouvés dans la littérature.....	75
Tableau IV.2 : Synthèse concernant l'utilisation des codes multiphasiques (Bour, 2003).....	75
Tableau IV.3 : Propriétés hydrodynamiques retenues pour l'exemple traité (INERIS, 2003 ; Dana et Shahrou, 2002).....	78
Tableau IV.4: Différents types du maillage du modèle.....	79
Tableau IV.5 : Valeurs de Q pour 3 différents cas de perméabilité.....	82
Tableau IV.6 : Quantité du polluant infiltrée dans le sol (Q) pour 5 différentes valeurs de temps de contact.	87
Tableau V.1 : Coefficients R^2 entre les valeurs « réelles » et estimées par les différents modèles.	97
Tableau VI.1 : Valeurs d'épaisseur de la couche de couverture, épaisseur de la craie et profondeur de la nappe pour chaque sondage (PONTIGNAC, 2002).	129
Tableau VI.2 : Types de rotation de cultures attribuées aux communes du bassin.	132
Tableau VI.3 : Liste des principaux logiciels disponibles.	134
Tableau VI.4 : Caractéristiques du module Hydriflux.	135
Tableau VI.5 : Propriétés hydrodynamiques retenues pour le cas de référence.	140
Tableau VI.6 : Historiques des types de cultures dans la zone des sondages (Source : Chambre d'Agriculture du Pas- de-Calais).....	141
Tableau VI.7 : Valeurs de R^2 entre les valeurs réelles et les valeurs prévues pour toutes les phases de simulations.	155
Tableau A.1 : Valeurs typiques de tension interfaciales σ	182
Tableau A.2 : Quelques méthodes d'analyse granulométrique (extrait de Wills, 1988).	184
Tableau A.3 : Succion exercée par différentes solutions salines saturées (Tessier, 1975).....	193
Tableau A.4 : Méthodes de mesure et d'imposition de la succion (Skandaji, 1996).....	193

Tableau A.5 : Equations d'ajustement pour des courbes de rétention..... 194
**Tableau A.6 : Valeurs moyennes des paramètres de Van Genuchten et Mualem pour différents types de sols
sélectionnés selon leurs gammes de texture données par Carsel et Parrish (1988). 195**

LISTE DES FIGURES

Figure I.1 : Phénomène d’hystérésis – cas de deux liquides non miscibles eau – polluant. Courbes de pression capillaire en fonction de la saturation (Zilliox, 1980).....	32
Figure I.2 : Variation de la perméabilité relative k_r pour deux fluides en fonction de la saturation S_w du fluide mouillant.	34
Figure I.3 : Mise en correspondance neurone biologique / neurone artificiel.....	39
Figure I.4 : Calcul d’un état d’un neurone.	39
Figure I.5 : Définition des couches d’un réseau multicouche.	40
Figure I.6 : Réseau à connexions locales.	40
Figure I.7 : Réseau à connexions récurrentes.....	40
Figure I.8 : Architecture d’un MLP avec trois couches.....	41
Figure I.9 : Critère de convergence et architecture optimale du réseau.	43
Figure I.10 : Evaluation des performances du modèle.	44
Figure II.1 : statistiques sur le trafic (D.T.T., 1997).....	48
Figure III.1 : Profils dans l’axe de la route (Référence : carte RN2, liaisons Avesnes Sud-Maubeuge Sud, opération 21M59A, N° de la pièce 2-2).....	59
Figure III.2 : Position des sondages (Référence : d’après carte RN2, liaisons Avesnes Sud-Maubeuge Sud, opération 21M59A, N° de la pièce 2-2).....	61
Figure III.3 : Iso-valeurs des épaisseurs de couverture en cm, interpolées à partir des valeurs mesurées dans les différents sondages (Référence : d’après carte RN2, liaisons Avesnes Sud-Maubeuge Sud, opération 21M59A, N° de la pièce 2-2).	62
Figure III.4 : Iso-valeurs des profondeurs de la nappe en cm, interpolées à partir des valeurs mesurées grâce aux piézomètres (en jaune) en septembre 2000 (Référence : d’après carte RN2, liaisons Avesnes Sud-Maubeuge Sud, opération 21M59A, N° de la pièce 3-3).	63
Figure III.5 : Iso-valeurs des profondeurs de la nappe en cm, interpolées à partir des valeurs mesurées grâce aux piézomètres (en jaune) en février 2001 (Référence : d’après carte RN2, liaisons Avesnes Sud-Maubeuge Sud, opération 21M59A, N° de la pièce 3-3).	64
Figure III.6.a : Photo de l’oedomètre hydraulique de type Rowe.....	65
Figure III.6.b : Montage de la cellule.	65
Figure III.7 : essai de perméabilité (profondeur : 2m à 3m)	66
Figure III.8 : Schéma de l’appareil de Richards (Richards, 1941).	67
Figure III.9 : Remontée de l’eau dans un capillaire.....	68
Figure III.10 : Un échantillon préparé pour l’oedomètre à succion contrôlée.	68
Figure III.11 : Des échantillons préparés pour l’extracteur à pression d’air.	68
Figure III.12 : Ajustement de la courbe de rétention par le modèle de Van Genuchten pour les différents sondages (drainage).....	70
Figure III.13 : Ajustement de la courbe de rétention par le modèle de Van Genuchten pour les différents sondages (imbibition).....	71
Figure IV.1 : Exemple de référence, Profil de sol.....	77
Figure IV.2 : Courbes de rétention utilisées dans l’exemple de référence.	78
Figure IV.3 : Etapes de simulation et conditions initiales et aux limites.	80

Figure IV.4.a : Exemple de référence, profil initial de saturation en eau.	81
Figure IV.4.b : Exemple de référence, profil de saturation en polluant en fonction du temps.	81
Figure IV.4.c : Exemple de référence, évolution de la profondeur de la zone contaminée en fonction du temps.	81
Figure IV.5.a : Influence de la perméabilité sur la migration du polluant durant la phase d'injection (contact polluant-surface du sol $t_c = 7$ jours).....	82
Figure IV.5.b : Evolution de la profondeur de la zone contaminée.	82
Figure IV.6.a : Influence de la capillarité de la couche de couverture sur le profil de saturation en polluant ($t=7$ jours).	83
Figure IV.6.b : Evolution de la profondeur de la zone contaminée en fonction du temps.....	83
Figure IV.7 : Profil du sol.....	84
Figure IV.8.a : Influence de l'épaisseur de la couverture sur la migration du polluant (phase d'injection) pour 7 jours de temps de contact polluant-surface du sol.	84
Figure IV.8.b : Evolution de la profondeur de la zone contaminée en fonction du temps.....	84
Figure IV.9.a : Influence de la profondeur de la nappe sur la migration du polluant (phase d'injection) pour un temps de contact de 7 jours.....	85
Figure IV.9.b : Influence de la profondeur de la nappe sur la quantité du polluant infiltrée.....	85
Figure IV.9.c : Influence de la profondeur de la nappe sur la profondeur de la zone contaminée ($t_c = 7$ jours).	86
Figure IV.10.a : Influence de t_c sur le profil de saturation en polluant.	86
Figure IV.10.b : Evolution de la profondeur de la zone contaminée en fonction du temps pour différents t_c ..	86
Figure IV.11.a : Influence de l'épaisseur du polluant sur la migration du polluant.	87
Figure IV.11.b : Influence de l'épaisseur du polluant sur la quantité du polluant infiltré.....	87
Figure IV.12.a : Influence de différents polluants sur leur migration (phase d'injection) pour un temps de contact de 7 jours.	88
Figure IV.12.b : Evolution de la profondeur de la zone contaminée en fonction du temps.....	88
Figure IV.13 : Etapes de simulation et conditions initiales et aux limites.	89
Figure IV.14.a : Influence du lessivage sur la migration du polluant (phase 3). Phase d'injection ($t=7$ jours). 89	89
Figure IV.14.b : Evolution de la profondeur de la zone contaminée en fonction du temps.....	89
Figure V.1 : Représentation graphique d'un extrait de la base de données : évolution de D pour $k = 10^{-13} \text{ m}^2$	92
Figure V.2 : Représentation graphique d'un extrait de la base de données : évolution de Q pour $k=10^{-13} \text{ m}^2$. 93	93
Figure V.3 : Comparaison entre les valeurs réelles et valeurs prévues par la RLM.....	95
Figure V.4 : Structures de deux cas de MLP.....	96
Figure V.5 : Evaluation des ASE de l'échantillon de test en fonction du nombre de neurones dans la couche cachée.	96
Figure V.6 : Comparaison entre les résultats des MLP et celles réelles connues pour les modèles 2.a et 2.b.. 98	98
Figure V.7 : Comparaison entre les résultats des MLP et celles réelles connues pour le modèle 3.	99
Figure V.8 : Carte de la profondeur de pénétration du polluant en cm, temps de contact $t_c = 0,5$ jour, nappe septembre 2000.....	101
Figure V.9 : Carte de la profondeur de pénétration du polluant en cm, temps de contact $t_c = 0,5$ jour, nappe février 2001.....	102
Figure V.10 : Carte du facteur de risque de contamination, temps de contact $t_c = 0,5$ jour, nappe septembre 2000.	103

Figure V.11 : Carte du facteur de risque de contamination, temps de contact $t_c = 0,5$ jour, nappe février 2001.	104
Figure V.12 : Profils dans l'axe de la route.....	105
Figure V.13 : Simulation de la profondeur de contamination dans l'axe de la route, pour $t_c = 0,5$ jour et une position de la nappe correspondant à septembre 2000.	106
Figure V.14 : Simulation de la profondeur de contamination dans l'axe de la route, pour $t_c = 0,5$ jour et une position de la nappe correspondant à février 2001.....	107
Figure V.15 : Simulation du facteur de risque R dans l'axe de la route, pour $t_c = 0,5$ jour et une position de la nappe correspondant à septembre 2000 et février 2001.	108
Figure V.16 : Topographie du sol après construction de la route.....	110
Figure V.17 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 0,5$ jour et $t_c = 3$ jours, pour deux profondeurs de la nappe P_N	112
Figure V.18 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 3$ jours, une nappe à 3m et différentes durées t_p de lessivage par temps de pluie.	113
Figure V.19 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 3$ jours, une nappe à 3m et différentes durées t_p de pluie avant le déversement.	114
Figure V.20 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 0,5$ jour et $t_c = 3$ jours, pour deux profondeurs de la nappe P_N	117
Figure V.21 : Front de pénétration des 3 polluants pour $t_c = 3$ jours, une nappe à 10 m et différentes durées t_p de lessivage par temps de pluie.	118
Figure V.22 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 3$ jours, une nappe à 10m et différentes durées t_p de pluie avant le déversement	119
Figure VI.1 : Profils nitrates et chlorures obtenus en 1978 et 1991 en Champagne (Chiesi, 1993)	125
Figure VI.2 : Plan d'implantation des sondages, piézomètres et des forages A.E.P. (Bastin-Lacherez, 2004).	127
Figure VI.3 : Délimitation de la zone d'étude et localisation des sondages (d'après Serhal, 2004).	128
Figure VI.4 : Profils azotés mesurés (réalisés par SOREG en 2002).	130
Figure VI.5 : Carte piézométrique (1974, basses eaux) (Serhal, 2004).	131
Figure VI.6 : Classification des communes selon les activités agricole (Serhal, 2004).	133
Figure VI.7 : Cycle de l'eau utilisé dans Hydriflux (Banton et al., 1995).....	136
Figure VI.8 : Cycle de l'azote utilisé dans Nitriflux (Banton et al., 1995).....	136
Figure VI.9 : Exemple de référence, profil de sol (Sondage type).....	140
Figure VI.10 : Moyenne des valeurs de concentrations en nitrates mesurées expérimentalement fin 2002 dans les différents sondages à des profondeurs au moins égale à 25m.....	141
Figure VI.11 : Différentes étapes de simulations.....	142
Figure VI.12 : Comparaison entre la simulation et les mesures pour les différents sondages (fin 2002).	143
Figure VI.13 : Evolution des profils des concentrations en nitrates en fonction du temps.....	147
Figure VI.14 : Influence de l'épaisseur de la couverture sur la migration des nitrates dans la zone non saturée (fin 2002).	147
Figure VI.15 : Influence de la profondeur de la nappe sur la migration des nitrates dans la zone non saturée (fin de l'année 2002).	147
Figure VI.16 : Influence du type de culture présent à la surface du sol sur la migration des nitrates dans la zone non saturée (fin de l'année 2002).	147
Figure VI.17 : Influence de la précipitation annuelle totale sur la migration des nitrates dans la zone non saturée (fin de l'année 2002).....	148

Figure VI.18 : Évolution de la concentration des nitrates pour les 4 rotations de cultures en fin 2002 (extraite de la base de données).....	150
Figure VI.19 : Comparaison entre les valeurs réelles et valeurs prévues par la régression linéaire multiple.	152
Figure VI.20 : Schéma illustrant l'architecture du réseau de neurones utilisé.....	153
Figure VI.21 : Evaluation des erreurs quadratiques moyennes (ASE) de l'échantillon de test en fonction du nombre de neurones dans la couche cachée.....	153
Figure VI.22 : Comparaison entre les valeurs réelles et valeurs prévues par le réseau de neurones artificiels.	154
Figure VI.23 : Carte de flux d'eau à la surface de la nappe à la fin de l'année 1986.	156
Figure VI.24 : Carte de concentration en nitrates à la surface de la nappe à la fin de l'année 1986.....	156
Figure A.1 : Définition de la tension interfaciale.....	181
Figure A.2 : Causes moléculaires de la tension interfaciale.....	181
Figure A.3 : Mesure de la tension interfaciale par un tube capillaire.	181
Figure A.4 : Angle de contact et tension interfaciale (Craig, 1971).	183
Figure A.5 : Contact eau –polluant non miscible au voisinage d'une paroi solide (Razakarisoa, 1990).	183
Figure A.6 : Courbe de rétention, phénomène d'hystérésis (Croney, 1958)	188
Figure A.7 : Courbe de rétention pour différents types de sols (Young et Warkentin, 1975).....	188
Figure A.8 : Illustration du phénomène de l'encrier (Yong et Warkentin, 1975).	189
Figure A.9 : Schéma de l'appareil de Richard (Richards, 1941).	191
Figure A.10 : Remontée de l'eau dans un capillaire.....	192
Figure A.11 : Représentation graphique d'un extrait de la base de données : évolution de D pour $k=10^{-14} \text{ m}^2$	210
Figure A.12 : Représentation graphique d'un extrait de la base de données : évolution de Q pour $k=10^{-14} \text{ m}^2$	211
Figure A.13 : Représentation graphique d'un extrait de la base de données : évolution de D pour $k=10^{-15} \text{ m}^2$	212
Figure A.14 : Représentation graphique d'un extrait de la base de données : évolution de Q pour $k=10^{-15} \text{ m}^2$	213
Figure A.15 : Simulation de la profondeur de contamination dans l'axe de la route, pour $t_c = 1$ jour et une position de la nappe correspondant en septembre 2000 et février 2001.....	215
Figure A.16 : Simulation du facteur de risque R dans l'axe de la route, pour $t_c = 1$ jour et une position de la nappe correspondant en septembre 2000 et février 2001.	215
Figure A.17 : Simulation de la profondeur de contamination dans l'axe de la route, pour $t_c = 3$ jours et une position de la nappe correspondant en septembre 2000 et février 2001.....	216
Figure A.18 : Simulation du facteur de risque R dans l'axe de la route, pour $t_c = 3$ jours et une position de la nappe correspondant en septembre 2000 et février 2001.	216
Figure A.19 : Simulation de la profondeur de contamination dans l'axe de la route, pour $t_c = 5$ jours et une position de la nappe correspondant en septembre 2000 et février 2001.....	217
Figure A.20 : Simulation du facteur de risque R dans l'axe de la route, pour $t_c = 5$ jours et une position de la nappe correspondant en septembre 2000 et février 2001.	217
Figure A.21 : Simulation de la profondeur de contamination dans l'axe de la route, pour $t_c = 7$ jours et une position de la nappe correspondant en septembre 2000 et février 2001.....	218
Figure A.22 : Simulation du facteur de risque R dans l'axe de la route, pour $t_c = 7$ jours et une position de la nappe correspondant en septembre 2000 et février 2001.	218

Figure A.23 : Front de pénétration des 3 polluants pour $t_c = 0,5$ jour, une nappe à 4 m et différentes durées t_p de lessivage par temps de pluie.	220
Figure A.24 : Front de pénétration des 3 polluants pour $t_c = 0,5$ jour, une nappe à 10 m et différentes durées t_p de lessivage par temps de pluie.	221
Figure A.25 : Front de pénétration des 3 polluants pour $t_c = 3$ jours, une nappe à 4 m et différentes durées t_p de lessivage par temps de pluie.	222
Figure A.26 : Front de pénétration des 3 polluants pour $t_c = 3$ jours, une nappe à 10 m et différentes durées t_p de lessivage par temps de pluie.	223
Figure A.27 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 0,5$ jour, une nappe à 4 m et différentes durées t_p de pluie avant le déversement.	224
Figure A.28 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 0,5$ jour, une nappe à 10 m et différentes durées t_p de pluie avant le déversement.	225
Figure A.29 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 3$ jours, une nappe à 4 m et différentes durées t_p de pluie avant le déversement.	226
Figure A.30 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 3$ jours, une nappe à 10 m et différentes durées t_p de pluie avant le déversement.	227
Figure A.31 : Front de pénétration des 3 polluants pour $t_c = 0,5$ jour, une nappe à 0,5 m et différentes durées t_p de lessivage par temps de pluie.	228
Figure A.32 : Front de pénétration des 3 polluants pour $t_c = 0,5$ jour, une nappe à 3 m et différentes durées t_p de lessivage par temps de pluie.	229
Figure A.33 : Front de pénétration des 3 polluants pour $t_c = 3$ jours, une nappe à 0,5 m et différentes durées t_p de lessivage par temps de pluie.	230
Figure A.34 : Front de pénétration des 3 polluants pour $t_c = 3$ jours, une nappe à 3 m et différentes durées t_p de lessivage par temps de pluie.	231
Figure A.35 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 0,5$ jour, une nappe à 0,5 m et différentes durées t_p de pluie avant le déversement.	232
Figure A.36 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 0,5$ jour, une nappe à 3 m et différentes durées t_p de pluie avant le déversement.	233
Figure A.37 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 3$ jours, une nappe à 0,5 m et différentes durées t_p de pluie avant le déversement.	234
Figure A.38 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 3$ jours, une nappe à 3 m et différentes durées t_p de pluie avant le déversement.	235
Figure A.39 : Schéma du cycle écologique de l'azote (Laval-Martin et Mazliak, 1995).	238

INTRODUCTION GENERALE

Les eaux souterraines sont en France la principale source d'approvisionnement en eau et fournissent environ 70% de la quantité d'eau potable nécessaire. La préservation de la qualité de ces eaux souterraines est donc primordiale. L'activité humaine génère des quantités de polluants. Ceci nécessite une connaissance des modalités de transfert des polluants entre la surface du sol et la surface de la nappe (zone non saturée).

Les modalités de transfert des polluants dans la zone non saturée sont très variables selon les types de polluants et selon les sols. Une nappe peut être protégée contre un type de pollution et pas contre un autre. Le traitement de contamination des eaux souterraines est généralement onéreux, voire impossible : il importe donc d'en prévenir l'apparition. La compréhension de l'ensemble des phénomènes impliqués dans le devenir et la circulation des polluants dans les sols (zone non saturée) est la base de la prévision des risques de contamination. Cette prévision passe par la formalisation et la hiérarchisation de l'ensemble des phénomènes (Soulas et Lagacherie, 1990 ; Calvet, 1995 ; Baer, 1996 ; Soulas, 1996-b). Pour ce faire, il faut gérer des données concernant les entrées des polluants dans les sols, il faut comprendre les phénomènes de rétention et de dégradation, et il faut décrire les modalités de transport en relation avec la circulation d'eau et des particules. Une bonne connaissance de ces phénomènes est fondamentale pour aider les décideurs à préserver de façon durable la ressource d'eau souterraine.

En France, les risques liés à la présence d'un site potentiellement pollué sont définis suivant les méthodes ESR (évaluation simplifiée des risques) et EDR (évaluation détaillée des risques). Ces évaluations sont généralement réalisées en prenant comme cible l'homme et de manière peu fréquente la ressource. Le risque pour la santé apparaît s'il y a simultanément une source de pollution, un mode de transfert et une cible. Dans les ESR, le risque est évalué (BRGM Edition – mars 2000) à partir d'une notation complexe tenant compte de différents paramètres : le potentiel danger de la source, le potentiel de mobilité et de transfert des polluants, les cibles et les impacts constatés. L'objectif de l'ESR est de fournir les éléments permettant de différencier, après une étude de courte durée et peu approfondie, et en faisant appel à des options volontairement simplificatrices (diagnostic initial, BRGM Editions - mars 2000), les sites ne présentant pas de menace pour la santé humaine et l'environnement, de ceux susceptibles de générer des nuisances notables et pérennes. Dans les EDR, l'impact de la pollution sur la cible est évalué à partir des concentrations d'expositions (concentration dans l'eau, dans l'air et dans les sols) soit par des mesures directes de ces concentrations, soit à l'aide d'équations de transfert entre les différents milieux (eau, sol, air). Dans ce cadre, l'utilisation d'un modèle numérique peut s'avérer utile pour résoudre les équations de transferts des polluants dans la zone non saturée et pour prévoir le risque pour un polluant d'atteindre la nappe phréatique. Les propriétés géologiques et hydrodynamiques d'une zone d'étude varient parfois fortement d'un point à un autre. Etudier et modéliser les transferts des polluants dans la zone non saturée du sol nécessitent d'englober cette variabilité au travers des paramètres du modèle, dont le nombre est souvent élevé.

Dans cette étude, on propose une méthodologie pour évaluer le risque qu'une source de pollution provenant de la surface du sol atteigne la nappe phréatique. Celle-ci est basée sur l'utilisation conjointe d'un logiciel d'éléments finis pour simuler la migration verticale d'un polluant (miscible ou non miscible à l'eau) en certains points donnés de la zone d'étude, et d'un outil de généralisation ou d'interpolation de cette simulation à l'ensemble de la zone : les réseaux

de neurones artificiels. La méthodologie proposée consiste à utiliser un logiciel pour simuler la migration des polluants dans la zone non saturée pour certaines combinaisons des paramètres hydrogéologiques du sol (épaisseur de la couverture, profondeur de la nappe, perméabilité de la couche de couverture) et des paramètres les plus influents sur la migration des polluants selon le type de pollution. Les différents « cas » ainsi identifiés constituent la base de données à partir de laquelle la simulation des variables de sortie (profondeur contaminée, quantité de polluant injectée) peut être élargie à toute combinaison de valeurs des variables d'entrées (paramètres hydrogéologiques...) en utilisant les réseaux de neurones artificiels. Cette approche permet alors l'évaluation rapide de la contamination du sol sur toute la zone, de distinguer facilement les zones à fort risque et de construire des cartes de contamination du sol. Elle constitue une étape pour l'établissement d'un plan d'intervention pour éradiquer la pollution et assurer la préservation des ressources en eau souterraine.

Cette approche est mise au service de l'objectif général poursuivi, à savoir d'étudier l'impact d'une source de pollution sur des zones de champs captants d'eau potable et les mesures de protection de ces champs contre cette pollution. Une attention particulière est apportée à la compréhension de l'effet de certains paramètres physiques en définissant l'ampleur et les temps nécessaires pour les contaminants pour atteindre la nappe d'eau souterraine ; à l'estimation du temps maximal avant qu'une intervention appropriée soit accomplie ; et enfin pour construire une carte de vulnérabilité pour la zone d'étude. Cette démarche générale a été appliquée pour deux types de pollution : une pollution ponctuelle liée à un accident routier (polluants non miscibles à l'eau) et une pollution diffuse d'origine agricole (nitrates).

Le présent rapport est présenté en trois parties :

- La première présente une analyse bibliographique concernant les paramètres et mécanismes de transfert de polluants dans les sols. Elle expose les techniques de résolution numérique des équations régissant ces transferts (approche mécaniste). Des approches par « traitement de données » sont adoptées dans la littérature pour certains problèmes environnementaux. On présente les techniques de la régression et de réseaux de neurones artificiels.
- La deuxième partie traite de la migration des polluants non-miscibles (de type hydrocarbures ou solvants chlorés) dans la zone non saturée provenant d'une source liée à un accident routier. Après une analyse bibliographique sur l'accident de référence, sur les polluants les plus transportés sur les routes et sur les logiciels disponibles, on présente la zone d'étude et les essais effectués pour déterminer les propriétés du sol. On donne ensuite les résultats de l'étude paramétrique sur un exemple de référence à l'aide du code NAPL-Simulator (Guarnaccia *et al.*, 1997). Cette étude permet de déterminer les variables prépondérantes, qui sont ensuite considérées pour la construction d'une base de données. Cette base est ensuite utilisée pour la construction d'un modèle à base de réseaux de neurones artificiels. Le modèle est utilisé dans l'étude de l'impact de l'aménagement de la RN2 (route nationale entre Avesnes sur Hèles et Maubeuge) sur les champs captants du synclinal de Bachant.
- La troisième partie traite de la migration d'une pollution diffuse d'origine agricole (nitrates) dans la zone non saturée. On y présente d'abord une synthèse des travaux réalisés sur ce sujet. On présente ensuite la zone d'étude et les résultats des suivis in situ, en ce qui concerne d'une part les apports d'engrais en surface (historiques culturaux) et d'autre part les mesures de profils en nitrates effectuées pour certains sondages. On présente ensuite la construction de la base de données de cas de transferts verticaux, incluant deux phases de simulations numériques, l'une concernant la zone racinaire du sol à l'aide du logiciel Agriflux2.0 (Banton et Larocque, 1997), l'autre le reste de la partie non saturée du sol à l'aide du module VS2DT du logiciel WHI UnSat Suite Plus. Les variables d'entrée retenues sont les historiques culturaux en surface (apports d'azote), l'épaisseur de la couche de couverture limoneuse en dessous de la zone

racinaire, la profondeur de la nappe en dessous de la zone racinaire et le temps. Finalement, on présente le modèle de réseaux de neurones artificiels construit sur la base de ces données. Ce modèle est ensuite appliqué à la construction de cartes de contamination en nitrates de la partie supérieure de la nappe pour différentes durées après épandage.

PARTIE A

SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE

ETUDE DU TRANSFERT DES POLLUANTS DANS
LA ZONE NON SATURÉE DES SOLS.

Chapitre I : Mécanismes du Transfert des polluants dans la zone non saturée des sols - Synthèse bibliographique

I.1- Introduction

Dans cette partie, nous présentons une analyse bibliographique des mécanismes du transfert des polluants dans la zone non saturée des sols. Nous exposons les techniques de résolution numérique des équations régissant ces transferts (approche mécaniste). Ensuite, nous présentons les approches de type « traitement de données ». L'accent est mis sur les réseaux de neurones, qui sont de plus en plus utilisés dans le domaine de l'environnement.

I.2- Le devenir des polluants dans les sols

Le transfert des polluants dans les sols se fait en interaction avec le milieu ambiant. Cette interaction entraîne généralement un retard dans la migration ou un appauvrissement en substances polluantes (atténuation naturelle). L'atténuation naturelle est ainsi le résultat de la combinaison de plusieurs phénomènes physiques, chimiques et biologiques dans un sol, qui peuvent modifier le comportement du ou des contaminant(s) et peuvent aboutir à sa disparition ou modifier sa forme chimique (spéciation), en rendant le polluant plus ou moins mobile voire plus ou moins toxique.

I.2.1- Processus intervenants dans l'atténuation naturelle (Nowak *et al.*, 2002)

a) Dissolution

Elle dépend fortement de la solubilité des substances polluantes considérées, et de la température du milieu dans lequel se trouvent ces polluants. Elle peut constituer une source continue et 'pérenne' de contamination des eaux souterraines (Blondel, 2001).

b) Dispersion

Pour un composé dissout, la dispersion est le changement de direction et de vitesse d'une particule, changement souvent lié aux mouvements de la nappe et à l'hétérogénéité de l'aquifère.

Le transport de solutés par le mouvement d'un fluide en déplacement, en l'occurrence l'écoulement de la nappe phréatique, est la convection. C'est le phénomène principal intervenant dans le transfert des substances dissoutes. En réalité, le front de contaminants s'étale, du fait des processus de dispersion mécanique et de diffusion moléculaire.

La **dispersion mécanique** dépend des caractéristiques du milieu : taille des pores, hétérogénéité, granulométrie, etc ... La dispersion provoque un étalement du front de pollution et une dilution du panache avec des eaux non contaminées.

La **diffusion moléculaire** d'un soluté se produit sous l'effet de gradient de concentrations : la substance migre d'une zone de forte concentration vers une zone de faible concentration. La diffusion moléculaire devient significative dans les milieux très peu perméables (à partir de 10^{-8} m.s⁻¹) et concerne plus particulièrement la zone non saturée du sol. Dans les nappes, c'est la dispersion convective qui prédomine.

c) Volatilisation

C'est le passage d'une substance à l'état gazeux. La volatilisation conduit à diminuer la concentration du contaminant dans le milieu, mais n'est jamais destructive (transformation, mais non disparition).

d) Adsorption

L'adsorption est la propriété qu'ont certains corps solides de retenir les molécules d'autres corps (à l'état gazeux ou liquide) à leur surface. On distingue deux mécanismes d'adsorption : l'adsorption physique qui est due à des forces électrostatiques (forces de van der Waals) et l'adsorption chimique ou chimisorption qui met en jeu des liaisons chimiques entre le solide adsorbant et le fluide adsorbé avec activation de ses molécules.

L'adsorption physique peut être réversible (phénomène de désorption) et présente le risque de libérer une partie de substances piégées. Il en résulte un retard de migration des polluants dissous dans l'eau de la nappe. L'adsorption chimique met en jeu des liaisons beaucoup plus énergétiques qui peuvent rendre le phénomène irréversible (résidus liés). Dans ce cas, il en résulte une baisse de la concentration de contaminant dissous dans l'eau de la nappe.

Dans le milieu naturel, les deux types d'adsorption coexistent en fonction de la composition du milieu. Les milieux riches en matière organique et/ou en minéraux fins (granulométrie < 2µm) sont les plus favorables aux mécanismes de sorption.

e) Destructurations abiotiques

La photolyse, les réactions d'oxydo-réduction, et l'hydrolyse chimique sont les trois processus principaux à l'origine de la dégradation abiotique de contaminant.

- La **photolyse** est une décomposition chimique (oxydation) de substances sous l'action de la lumière. Elle n'a lieu qu'en surface des milieux d'exposition (sols, eaux et végétaux) et provoque des hydroxydations ou des pertes de chaînes aliphatiques.
- Les **réactions d'oxydo-réduction abiotiques** mettent en jeu des couples redox sans intervention biologique. Elles peuvent avoir lieu dans les sols et dans les eaux superficielles et souterraines. Selon la nature du polluant et les conditions redox du milieu, ces réactions peuvent augmenter la mobilité ou la toxicité du polluant.
- L'**hydrolyse** a lieu dans les phases aqueuses des milieux. Il s'agit de l'action de l'eau sur un polluant, consécutive à la dissociation ionique de l'eau.

f) Destruction biotique ou biodégradation

La biodégradation est l'ensemble des mécanismes de transformation d'un contaminant en différents sous-produits, par l'action des microorganismes. Ce processus est destructif, conduisant à l'atténuation naturelle à condition que les produits néoformés (métabolites) aient une toxicité moindre. Il en résulte généralement une diminution de la concentration de polluant initial. En revanche, selon les cas, les métabolites peuvent aboutir à un ralentissement ou à une accélération de la vitesse de propagation et un étalement ou à un resserrement du front de migration.

I.2.2- Paramètres régissant les transferts de polluants dans les sols

Les contaminants étudiés sont des substances chimiques organiques (hydrocarbures, solvants...) ou inorganiques (nitrates, nitrites, fluorures), à l'exclusion de tout contaminant biologique. Dès son déversement à la surface, le polluant pénètre dans le sol. Son mouvement dans le sous sol est à la fois contrôlé par la nature du déversement (quantité et débit), les propriétés physico-chimiques du produit et les caractéristiques du milieu traversé (Poulsen et Kueper, 1992) (voir annexe 1).

I.2.2.1- Caractéristiques physico-chimiques des contaminants

Un certain nombre de propriétés intrinsèques des substances chimiques organiques (hydrocarbures, solvants, phytosanitaires, ...) ou inorganiques (nitrates, métaux lourds, ...) jouent un rôle essentiel dans leur comportement (tableau I.1). En effet, elles vont être déterminantes sur la manière dont les substances vont migrer, et donc de fait sur les conséquences d'une pollution.

Propriétés caractéristiques du contaminant	Polluant organique	Polluant inorganique	Comportement du contaminant
Solubilité dans l'eau (mg/l), fonction de la température et de la pression. Il s'agit de la masse maximale de produit qui peut se solubiliser dans un litre d'eau.	X	X	Si le composé n'est pas soluble, ou présent dans le milieu dans des concentrations supérieures à la solubilité, il flottera à la surface de la nappe ou se déposera sur le fond, selon sa densité.
Densité du liquide par rapport à l'eau. La densité d'une substance définit l'écoulement vertical du fluide par gravité.	X	X	Pour un composé non soluble, sa position par rapport à l'eau dépendra de la densité relative du matériau. Les composés plus légers que l'eau (densité <1) flotteront et les composés plus lourds que l'eau (densité >1) se concentreront dans la partie inférieure de la nappe.
Viscosité dynamique , notée μ et exprimée en P (Poise=Kg.s/cm ²). Elle indique la force exercée par le fluide en opposition à son déplacement.	X		Le déplacement du fluide est d'autant plus lent que son coefficient de viscosité est élevé.
Pression de vapeur , exprimée en Pascal (Pa). La pression de vapeur du produit indique sa capacité à se volatiliser.	X		Pour une valeur supérieure à 133 Pa à 25°C, le produit est relativement volatil (cas des solvants chlorés).
Température d'ébullition (°C). C'est la température à partir de laquelle, sous la pression atmosphérique, un liquide se vaporise.	X		Quand la température d'ébullition d'une substance est atteinte, celle-ci se volatilise.

Propriétés caractéristiques du contaminant	Polluant organique	Polluant inorganique	Comportement du contaminant
Constante de Henry , notée K_h ($\text{Pa}\cdot\text{m}^3/\text{mol}$) correspond au ratio des concentrations dans la phase gazeuse et phase liquide (pure ou dissoute). Elle influe à la fois sur la capacité d'un produit à se volatiliser et sur les phénomènes d'adsorption.	X		Les composés ayant une constante de Henry élevée passent facilement de la phase liquide à la phase vapeur. On considère que le produit est volatil pour des vapeurs de K_h supérieures à 100 (soit $0,001 \text{ atm}\cdot\text{m}^3/\text{mol}$). Quand $K_h < 100$, les phénomènes d'adsorption jouent un rôle prépondérant.
Densité des vapeurs (calculée par rapport à l'air). La migration verticale des vapeurs est fonction de cette propriété.	X		Plus la densité des vapeurs du composé est élevée ($d > 1$), plus l'air du sol chargé de la fraction volatile s'accumulera en surface de la nappe. Si $d < 1$, la fraction volatile aura tendance à se disperser vers l'atmosphère.
Coefficient de partage eau/octanol (K_{ow}). Il permet d'apprécier l'hydrophobie de la substance et par conséquent son affinité pour la matrice solide. Cela conditionne les phénomènes d'adsorption, de migration, et de biodisponibilité de la substance.	X		En fonction des propriétés du milieu (contenu en carbone et minéraux argileux), celui-ci peut piéger le produit dans les niveaux riches en matières organiques.
Coefficient de partage eau/solide (K_d). Il quantifie la répartition relative du composé entre une phase solide et l'eau.		X	Plus le coefficient K_d est élevé, plus le produit est adsorbé sur la phase solide.
Coefficient de partage eau/carbone organique (K_{oc}). Il correspond au K_d rapporté à la teneur en carbone organique du sol. Il quantifie la répartition relative du composé entre la matière organique et l'eau. Le K_{oc} est également relié au K_{ow} .	X		Plus le coefficient K_{oc} est élevé, plus le produit a une affinité pour la fraction organique du sol.
Durée de vie (DT_{50} (<i>Dissipation Time</i>)). Il correspond au temps nécessaire pour dégrader 50% de la substance chimique.	X	X	Si DT_{50} est supérieur à 90 jours la substance est considérée comme persistante. Si DT_{50} est compris entre 30 et 90 jours la substance est considérée comme moyennement persistante. Si DT_{50} est inférieure à 30 jours la substance est considérée comme non persistante.

Tableau I.1 : Influence des propriétés physico-chimiques des polluants sur les processus d'atténuation naturelle (modifié Nowak et al., 2002).

I.2.2.2- Propriétés du milieu traversé

Les paramètres propres à chacun des milieux concernés par le transfert ont une influence majeure sur le processus d'infiltration des polluants dans les sols. Ils sont décrits dans le tableau (I.2) ci-dessous. Les conditions climatiques du site peuvent en outre considérablement modifier les conditions des milieux concernés.

Propriétés du milieu	Influences sur les processus de l'atténuation naturelle
Milieu eau	
Nature des couches géologiques constituant l'aquifère.	Influe sur les phénomènes de sorption du contaminant : fonction du contenu en carbone organique et en minéraux argileux. Influe sur la dilution du contaminant.
Géochimie des eaux.	Influe sur la biodégradation du contaminant et sur les phénomènes de sorption et par conséquent sur le transfert du contaminant dans le milieu.
Conditions d'oxydo-réduction.	Influent sur la dégradation abiotique.
pH	Influe sur la présence et le développement microbien, donc sur la biodégradation du contaminant. Influe sur l'hydrolyse (dégradation abiotique) et sur les phénomènes de sorption du contaminant.
Température	Influe sur les processus biologiques et sur la dissolution du contaminant.
Présence d'une population bactérienne	Influe sur la biodégradation du contaminant.
Disponibilité en éléments nutritifs	Influe sur le développement de la population microbienne présente dans le milieu, donc sur la biodégradation du contaminant.
Milieu sol	
Nature du sol (granulométrie, minéralogie, composition chimique globale)	Influe sur les phénomènes de sorption du contaminant : fonction du contenu en carbone organique, en minéraux argileux (fraction de taille inférieure à 2 µm), en oxydes et hydroxydes métalliques, en carbonates et en silicates. Influe sur le transfert du contaminant dans le milieu : la convection, la dispersion et la diffusion.
Porosité/perméabilité de l'aquifère	Influe sur le transfert du contaminant dans le milieu : la convection, la dispersion et la diffusion.
Saturation en eau	Influe sur le transfert du contaminant dans le milieu : la convection, la dispersion et la diffusion. Influe sur la dissolution et l'hydrolyse du contaminant. Influe sur l'activité microbienne et donc sur la biodégradation du contaminant.
Conditions d'oxydo-réduction	Influe sur la mobilité des métaux. Influe sur la dégradation abiotique de certains polluants organiques.
pH	Influe sur la solubilité des métaux. Influe sur les phénomènes de sorption. Influe sur la présence et le développement microbien, donc sur la biodégradation du contaminant.
Capacité d'échange cationique	Influe sur les phénomènes de sorption des contaminants cationiques (métaux lourds).
Présence d'une population microbienne	Influe sur la biodégradation du contaminant.
Disponibilité en éléments nutritifs.	Influe sur le développement de la population microbienne présente dans le sol, donc sur la biodégradation du contaminant.

Tableau I.2 : Influence des propriétés du milieu sur les processus de migration des polluants (Nowak et al., 2002).

I.3- Modèles hydro-mécaniques des transferts

Dans ce cas, les variables et les paramètres sont en général pris en compte comme des grandeurs déterministes et les fonctions qui décrivent les phénomènes sont soit expérimentales (*modèles empiriques*), soit fondées sur une certaine connaissance des processus impliqués (*modèles mécanistes*).

Les modèles les plus utilisés dans cette approche sont essentiellement fondés sur la notion de vitesse ou de flux de matière (Vauclin et Angulo-Jaramillo, 1995). Le transport d'un polluant étant indissociable de l'écoulement du fluide qui le véhicule (eau pour une pollution miscible et phase non aqueuse pour une pollution non miscible), le devenir d'une pollution dans un milieu géologique donné est donc nécessairement sous la dépendance des lois et des paramètres descriptifs de l'écoulement de la phase fluide.

Ces lois, variables et paramètres, en particulier la loi de Darcy et la perméabilité, seront toujours à la base d'une description des écoulements mais revêtiront des formes différentes selon le nombre de phases et selon que l'on étudie la pollution dans la zone non saturée (sous entendu en eau) ou dans la nappe.

Dans ce qui suit, on commence par rappeler les équations régissant l'écoulement de l'eau dans un sol partiellement saturé, puis on rappelle quelles sont les équations et les grandeurs hydrodynamiques (variables et paramètres) régissant l'évolution d'une pollution en distinguant le cas des polluants miscibles à l'eau (une seule phase à considérer : la phase eau) de celui des polluants non miscibles (deux ou plus de deux phases à considérer suivant les cas).

I.3.1- Ecoulement de l'eau dans un sol partiellement saturé

La complexité de la structure des sols fait que l'étude de l'écoulement d'un fluide dans un volume de sol ne peut se faire à l'échelle des pores. La difficulté de décrire les chemins d'écoulement influencés par la variabilité des dimensions et des formes des pores microscopiques, a conduit à introduire la notion de volume élémentaire représentatif (VER). Il s'agit d'un volume de sol suffisamment réduit pour que l'écoulement y soit considéré comme étant régulièrement réparti.

Les équations décrivant l'écoulement dans un milieu non saturé qui vont être développées par la suite reposent sur les hypothèses suivantes (Bentoumi, 1995) :

- l'écoulement est isotherme,
- le liquide considéré est l'eau,
- seul le mouvement de l'eau sera pris en considération,
- l'air présent dans le sol est partout soumis à la pression atmosphérique,
- il n'y a pas d'interaction entre le sol et la phase liquide (pas de gonflement),
- la loi de Darcy généralisé est valable.

I.3.1.1- Equation de continuité

L'équation de continuité, dite équation de conservation de la masse, établit une proportionnalité entre toute modification locale de pression et la différence de flux qui lui est associée. Elle s'écrit sous la forme générale suivante :

$$\frac{\partial (\rho_w \theta)}{\partial t} = -\text{div} (\rho_w q) \quad (\text{I.1})$$

Avec ρ_w : masse volumique de l'eau,
 θ : teneur en eau volumique du milieu,

q : débit unitaire de l'eau,
t : temps.

Si la masse volumique de l'eau est prise constante, l'équation (I.1) s'écrit comme suit :

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = -\text{div}(q) = -\left(\frac{\partial q_x}{\partial x} + \frac{\partial q_y}{\partial y} + \frac{\partial q_z}{\partial z}\right) \quad (\text{I.2})$$

I.3.1.2- Equation dynamique

La loi de Darcy, proposée à l'origine pour décrire l'écoulement dans un sol saturé, fut étendue par Richards (1931) à l'écoulement en sol non saturé. La conductivité est cette fois fonction de la succion Ψ ($K=K(\Psi)$). Si on considère que l'axe z est dirigé positivement vers le haut, l'équation de Darcy généralisée est donnée par :

$$q = -K(\Psi) \cdot \text{grad}(H) \quad (\text{I.3})$$

$$H = z + \Psi \quad (\text{I.4})$$

Où q : débit unitaire [LT^{-1}]

H : la charge hydraulique (englobe les termes de gravité et de succion) [L]

I.3.1.3- Equation d'écoulement

Afin d'obtenir l'équation générale de l'écoulement, on introduit l'équation de Darcy généralisée dans l'équation de continuité (équation I.3).

Diverses formulations de l'équation générale sont possibles, selon que les divers termes composant cette équation sont exprimés comme des fonctions de la teneur en eau ou de la succion.

Dans la forme la plus simple, soit avec la teneur en eau pour variable principale, elle s'écrit :

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = \text{div}(K(\Psi) \text{grad}(H)) \quad (\text{I.5})$$

Si on considère la succion comme variable principale, cette équation devient :

$$C(\theta) \frac{\partial \Psi}{\partial t} = \text{div}(K(\Psi) \text{grad}(H)) \quad (\text{I.6})$$

$$C(\theta) = \frac{d\theta}{d\Psi} \quad (\text{I.7})$$

$C(\theta)$ s'appelle la capacité spécifique de rétention en eau. C'est la variation de teneur en eau par unité de variation de succion. Elle est donnée par la pente de la courbe de rétention $\theta(\Psi)$ à une valeur particulière de la teneur en eau. Les deux équations (I.5) et (I.6) représentent les deux formes de l'équation de Richards.

Pour transformer l'équation d'écoulement, on utilise le gradient de teneur en eau au lieu du gradient de succion :

$$\frac{\partial \Psi}{\partial x} = \frac{\partial \Psi}{\partial \theta} \cdot \frac{\partial \theta}{\partial x} = \frac{1}{C(\theta)} \cdot \frac{\partial \theta}{\partial x} \quad (\text{I.8})$$

La loi de Darcy généralisée peut se réécrire :

$$q_x = -K(\theta) \frac{\partial H}{\partial x} = -K(\theta) \left(\frac{1}{C(\theta)} \frac{\partial \theta}{\partial x} \right) = -D(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial x} \quad (\text{I.9})$$

$$q_y = -K(\theta) \frac{\partial H}{\partial y} = -K(\theta) \left(\frac{1}{C(\theta)} \frac{\partial \theta}{\partial y} \right) = -D(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial y} \quad (\text{I.10})$$

$$q_z = -K(\theta) \frac{\partial H}{\partial z} = -K(\theta) \left(\frac{1}{C(\theta)} \frac{\partial \theta}{\partial z} + 1 \right) = -D(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial z} - K(\theta) \quad (\text{I.11})$$

$D(\theta)$ est une fonction appelée diffusivité (Childs et Collis-George, 1950), définie par :

$$D(\theta) = \frac{K(\theta)}{C(\theta)} \quad (\text{m}^2/\text{s}) \quad (\text{I.12})$$

En substituant les expressions des équations (I.9-I.10-I.11) dans l'équation de continuité (I.5), on obtient l'équation générale aux dérivées partielles pour les écoulements non saturés :

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(D(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(D(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial z} \right) + \frac{\partial K(\theta)}{\partial z} \quad (\text{I.13})$$

ou sous forme vectorielle :

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = \text{div} (D(\theta) \text{grad}(\theta)) + \frac{\partial K(\theta)}{\partial \theta} \frac{\partial \theta}{\partial z} \quad (\text{I.14})$$

L'avantage de cette équation réside dans le fait que le domaine de variation de la diffusivité hydraulique est plus réduit que celui de la perméabilité (Kara, 1998).

Par contre l'utilisation de cette équation dans la gamme des teneurs en eau élevées n'est pas possible. En effet dans cette gamme la diffusivité devient indéterminée et tend vers l'infini. Pour pallier ce problème l'utilisation de l'équation en Ψ s'avère plus intéressante pour des valeurs proches de la saturation.

I.3.2- Ecoulement de fluides miscibles

Dans le cas d'un écoulement de fluides miscibles, une seule phase est considérée, et la principale variable est la concentration d'une substance (soluté) dans une autre (solvant).

Très classiquement, le transport isotherme d'une espèce chimique (i) est modélisé, à l'échelle macroscopique, par l'équation suivante :

$$\frac{\partial (\rho \times S_i)}{\partial t} + \frac{\partial (\theta \times C_i)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left\{ \theta \times D_i(\theta, q) \frac{\partial C_i}{\partial z} \right\} - \frac{\partial}{\partial z} (q \times C_i) + \sum_{j=1}^n \phi_{i,j}(C_i, S_i) + A_{c,i}(z, t) \quad (\text{I.15})$$

(a) (b) (c) (d) (e) (f)

Où C_i et S_i sont les concentrations de la substance (i) associées aux phases fluide et solide respectivement, D_i est le coefficient apparent de dispersion hydrodynamique de l'élément (i) ; ρ

est la masse volumique du sol sec, θ la teneur volumique en eau du sol, $\sum_{j=1}^n \phi_{i,j}(C_i, S_i)$ représente

les consommations de l'espèce (i), et q la densité de flux volumique donnée par la loi de Darcy généralisée :

$$q = -K(\Psi) \left(\frac{\partial \Psi}{\partial z} - 1 \right) \quad (I.16)$$

Dans laquelle ψ est la succion du sol, qui dépend de θ ; $K(\psi)$ est la conductivité hydraulique ; z est l'axe des profondeurs, orienté positivement vers le haut.

Dans le cas d'un écoulement transitoire, ce flux hydrique résulte de la solution de l'équation :

$$C(\Psi) \frac{\partial \Psi}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left\{ K(\Psi) \left(\frac{\partial \Psi}{\partial z} - 1 \right) \right\} + A_w(z, t) \quad (I.17)$$

Où $C(\psi) = d\theta/d\psi$ est la capacité capillaire du sol, et A_w représente un terme de source ou de puits (par exemple le prélèvement d'eau par le système racinaire).

Chaque terme de l'équation (I.15) est représentatif d'un mécanisme distinct :

- Le premier terme (a) décrit le taux de passage de l'espèce (i) de la phase liquide vers la phase solide et vice-versa. Il représente les processus d'adsorption-désorption et d'échanges ioniques ;
- Le terme (b) rend compte du taux de variation (positive ou négative) de l'espèce (i) dans la phase liquide ;
- Le terme (c) décrit le transfert dispersif associant la diffusion moléculaire (ou ionique) au mélange mécanique provoqué par les variations spatiales de la vitesse de l'écoulement à l'échelle microscopique. Le coefficient de dispersion D , observé à l'échelle macroscopique est donc censé intégrer et moyenniser les fluctuations microscopiques ;
- Le terme (d) représente le transfert convectif, l'élément (i) étant transporté par le flux d'eau, q ;
- Le terme (e) prend en compte les termes sources de l'espèce (i) ;
- Le dernier terme (f) représente l'éventuel prélèvement de la substance (i) par le système racinaire.

A travers les termes (a) et (e), l'équation (I.15) décrivant le transport est couplée à différents sous-modèles chimiques brièvement décrits ci-dessous.

Le terme (e) de l'équation (I.15) peut inclure différents processus chimiques tels que les réactions de précipitation/dissolution, les oxydo-réductions, les transformations d'origine microbiologique d'une espèce en une autre, la décroissance radioactive, etc. Mis à part ce dernier phénomène, ce terme est en général difficile à modéliser. D'une part l'identification des mécanismes n'est pas toujours évidente, et d'autre part les interactions avec d'autres facteurs de l'environnement ne sont pas que locales. Cela conduit bien souvent à introduire des relations paramétriques pseudo-empiriques. Ainsi, ce terme est très souvent approché par une expression du type (Vauclin, 1994) :

$$\sum_{j=1}^n \phi_{i,j} = -\mu_l^i \times \theta \times C_i - \mu_s^i \times \rho \times S_i + \gamma_l^i \times \theta + \gamma_s^i \times \rho \quad (I.18)$$

Où μ_l^i et μ_s^i caractérisent les taux de disparition de l'élément (i) dans les phases liquide et solide respectivement, γ_l^i et γ_s^i étant les taux de production de liquide et de solide. Ces différents coefficients doivent faire l'objet de détermination expérimentale.

Le terme (a) de l'équation (I.15) décrit le taux avec lequel une substance chimique interagit ou échange avec la phase solide du sol. Sa modélisation est l'objet de nombreuses études et débats. Des hypothèses d'équilibre et de non équilibre local sont utilisées pour décrire ces processus.

- a) L'hypothèse d'équilibre local (LEA) conduit à considérer ces processus comme instantanés, comparés aux temps caractéristiques de la convection et de la

dispersion. Ils sont décrits par des isothermes d'équilibre $S(C)$ de différents types [linéaires, Freundlich, Langmuir, etc. (voir BOLT, 1979)] et présentant bien souvent une hystérésis entre l'adsorption et la désorption, notamment pour les substances organiques (Van Genuchten *et al.*, 1974 ; Calvet *et al.*, 1980). Le modèle probablement le plus utilisé est une simple relation linéaire entre S et C :

$$S=K_dxC \quad (I.19)$$

Où K_d est appelé coefficient de distribution.

- b) L'hypothèse de non équilibre local (NLEA) est très souvent invoquée pour expliquer des discordances importantes entre les résultats de modèles fondés sur l'équilibre local et les observations. Elle a conduit au développement de deux types de modélisations.
- i) Ceux fondés sur la prise en compte d'une cinétique chimique à un site (Lapidus et Amundson, 1952) ou deux sites (Van Genuchten *et al.*, 1990).
 - ii) Ceux fondés sur l'existence physique d'une distribution bi-modale de vitesse de pore conduisant à l'introduction du concept de fractions d'eau mobile et immobile avec cinétique d'échange (Van Genuchten et Wierenga, 1974 ; Gaudet *et al.*, 1977, etc.).

I.3.3- Ecoulement polyphasiques

La notion d'écoulement polyphasique intervient lorsque le milieu poreux est le siège d'un mouvement simultané de plusieurs fluides non miscibles (Cas des hydrocarbures et des solvants chlorés, par exemple). Les variables utilisées pour décrire les écoulements sont dans ce cas les pressions dans chaque phase et les saturations.

I.3.3.1- Saturation

La saturation (S_i) d'un fluide i est le rapport du volume V_i occupé par ce fluide au volume V_p des pores.

$$S_i = \frac{V_i}{V_p} \quad (I.20)$$

Ce paramètre est très important car il est directement lié à la pression capillaire et à la perméabilité relative de ce produit dans le milieu. Dans un système eau-polluant, il existe une saturation minimale en eau dite saturation en eau irréductible et une saturation minimale en polluant appelée saturation résiduelle.

La saturation en polluant résiduelle est la valeur à partir de laquelle celui-ci devient discontinu et immobilisé par les forces capillaires. Cette saturation dépend de plusieurs paramètres (Mercer et Cohen, 1990) :

- La distribution de la taille des pores du milieu poreux, elle tend à augmenter avec la diminution de la porosité,
- Le rapport de viscosité et le rapport de densité du fluide,
- Les forces de gravité,
- L'augmentation du gradient hydraulique et la réduction de la tension interfaciale peuvent provoquer une mobilisation du polluant résiduel.

I.3.3.2- Pression capillaire

A l'interface entre deux fluides non miscibles, il existe une différence de pression appelée pression capillaire. Par convention, la différence de pression s'écrit entre le fluide non mouillant (indice nw) et le fluide mouillant (indice w) occupant préférentiellement les parois des pores :

$$P_{cnw,w} = P_{nw} - P_w \quad (I.21)$$

Ou, en hauteur d'eau équivalente:

$$h_{nw,w} = h_{nw} - h_w \quad (I.22)$$

Dans la zone saturée en eau, la pénétration du liquide non mouillant est retardée par les forces capillaires. Pour qu'il puisse pénétrer dans le milieu poreux saturé en eau, son front de pression doit dépasser la résistance des forces capillaires (Schwille, 1988).

Dans la zone non saturée, où la pression de l'eau dans le sol est négative, la pression capillaire maintient une frange capillaire. L'épaisseur de cette zone de transition est fonction des caractéristiques du milieu poreux, elle influence fortement l'extension horizontale du corps d'imprégnation.

La pression capillaire est très dépendante de la saturation (figure I.1). Les variations des pressions capillaires en fonction de la saturation sont sujettes à un phénomène d'hystérésis : dans le cas d'un système biphasique (eau-air par exemple), la forme prise par les interfaces n'est pas la même selon qu'on imbibe le réservoir sec, ou que l'on draine le milieu humide, car des bulles de fluides peuvent être piégées et les angles de raccordement des interfaces changeront avec le sens de déplacement (Jellali, 2000).

Ces phénomènes d'hystérésis liés à la mouillabilité et à la forme variable des interstices font apparaître à travers ces courbes (figure I.1), que la liaison entre pression capillaire et saturation n'est pas unique.

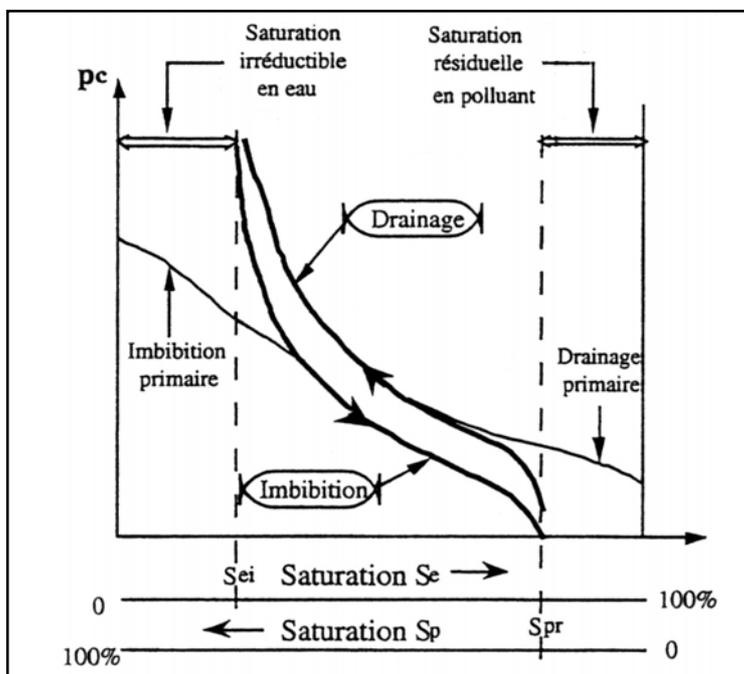


Figure I.1 : Phénomène d'hystérésis – cas de deux liquides non miscibles eau – polluant. Courbes de pression capillaire en fonction de la saturation (Zilliox, 1980).

En supposant que l'ordre croissant de mouillabilité est eau > NAPL > air, on écrira, pour les systèmes diphasiques suivants :

- NAPL et eau : $h_p - h_E = h_{PE} (S_E^{PE})$
- air et NAPL : $h_G - h_p = h_{GP} (S_p^{GP})$
- air et eau : $h_G - h_E = h_{GE} (S_E^{GE})$

Où : S_j^{ij} est la saturation du fluide mouillant j dans le système diphasique (i,j).
(i,j) = (P,E), (G,P) ou (G,E), l'indice j étant affecté au fluide mouillant.

Les lois de saturation sont en général exprimées en fonction d'une saturation dite réduite, définie par :

$$\bar{S}_j^{ij} = \frac{S_j^{ij} - S_m}{1 - S_m} \quad (I.23)$$

Où : S_m est la saturation irréductible, supposée indépendante du fluide.

Plusieurs lois ont été établies empiriquement pour relier pressions capillaires et saturations (loi de Van Genuchten (1980), Brooks-Corey (1964), etc.). Ces lois permettent d'assurer le couplage entre les équations des écoulements des phases présentes. Leur utilisation dans un modèle nécessite donc la connaissance de leurs paramètres.

Dans le cas d'un système triphasique, le problème est encore plus complexe (difficulté de mesurer les pressions et les saturations de chacun des fluides dans un système triphasique) ; on l'aborde en supposant :

- Que la saturation en eau dépend uniquement de la pression capillaire entre NAPL et eau :

$$S_E^{GPE} = S_E^{PE}(h_{PE}) \quad (I.24)$$

- Que la saturation globale de la phase liquide S_t (NAPL et eau : $S_t = S_p + S_E$) dépend uniquement de la tension interfaciale au contact air-liquide et est fonction de la pression capillaire h_{GP} entre air et NAPL.

I.3.3.3- Perméabilité relative

La notion de la perméabilité relative est introduite dans le cas d'un système d'écoulements à plusieurs fluides pour tenir compte de l'influence mutuelle de ces fluides sur la perméabilité effective. Pour un fluide i, la perméabilité relative k_{ri} est définie par :

$$k_{ri} = \frac{k_i}{k} \quad 0 < k_{ri} \leq 1 \quad (I.25)$$

- k est la perméabilité intrinsèque du milieu (m^2).
- k_i est la perméabilité effective du milieu (m^2) relativement au fluide i compte tenu de la présence des autres fluides et pour un état de saturation S_i de ce fluide.

Le produit $k.k_{ri}$ représente la réduction de la perméabilité intrinsèque due à la présence de plusieurs fluides.

Lorsqu'il y a plusieurs fluides dont de l'eau (i = E), la perméabilité $K(S_i)$, au sens des hydrogéologues, a pour définition :

$$K(S_i) = \frac{k \times k_{ri}}{\mu_i} \times \rho_E \times g \quad (I.26)$$

Pour deux fluides, i_1 et i_2 , à saturation totale, le rapport des perméabilités est l'inverse du rapport des viscosités :

$$\frac{K_{i2}}{K_{i1}} = \frac{\mu_{i1}}{\mu_{i2}} \quad (I.27)$$

La figure (I.2) fournit un exemple de la variation de la perméabilité relative k_r pour deux fluides, l'un mouillant (indiqué w), l'autre non mouillant (indiqué nw) en fonction de la saturation S_w du fluide mouillant.

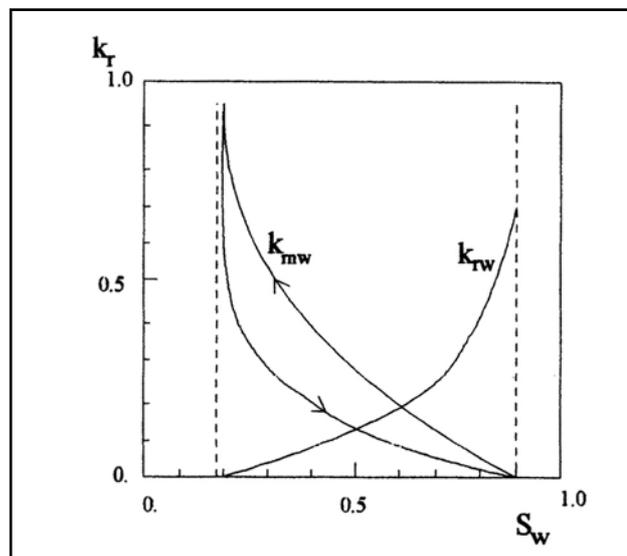


Figure I.2 : Variation de la perméabilité relative k_r pour deux fluides en fonction de la saturation S_w du fluide mouillant.

Ce diagramme montre :

- 1) que la somme des perméabilités relatives n'est pas égale à 1;
- 2) que la perméabilité relative des deux fluides tend vers 0 pour des valeurs de la saturation qui ne sont pas les bornes de l'intervalle de variation (0 et 1). Ces valeurs particulières de la saturation sont appelées saturations résiduelles. Un fluide présent dans le milieu avec une teneur inférieure à la saturation résiduelle ne peut plus s'écouler car sa continuité d'un pore à un autre n'est plus assurée.
- 3) que la courbe de perméabilité relative n'est pas la même suivant qu'il s'agit d'un drainage ou d'une imbibition (hystérésis).

Pour deux fluides, l'un mouillant (indiqué w), l'autre non mouillant (indiqué nw), des lois de variation de la perméabilité relative exprimées en fonction de la saturation effective S_e existent dans la littérature. On cite ci-après les principales d'entre elles.

A noter que dans les expressions qui suivent, la saturation effective S_e s'écrit $S_e = \frac{(S_w - S_{resi})}{(S_{maxi} - S_{resi})}$, où :

- S_{maxi} est la saturation maximale atteinte par la phase mouillante ;
- S_{resi} est la saturation résiduelle de la phase mouillante.

Lois de Parker :

- Perméabilité relative du fluide mouillant :

$$k_{rw} = S_e^{1/2} \left[1 - \left(1 - S_e^{1/m} \right)^m \right]^2 \tag{I.28}$$

- Perméabilité relative du fluide non mouillant :

$$k_{rnw} = (1 - S_e)^{1/2} \left(1 - S_e^{1/m} \right)^{2m} \tag{I.29}$$

La valeur du paramètre m est comprise entre 0 bonet 1.

Lois de Brooks-Corey :

- Perméabilité relative du fluide mouillant :

$$k_{rw} = S_e^{(2+3\lambda)/\lambda} \quad (I.30)$$

- Perméabilité relative du fluide non mouillant :

$$k_{rnw} = (1 - S_e)^2 (1 - S_e^{(2+\lambda)/\lambda}) \quad (I.31)$$

Dans ces deux lois m et λ sont des paramètres dont la valeur dépend des caractéristiques granulométriques du sol, en particulier la taille des pores.

I.3.3.4- Equations d'écoulement

Pour chaque phase i , les flux ($m^3/m^2/s$) sont donnés par la loi de Darcy généralisée :

$$U_i = -k \times \frac{k_{ri}}{\mu_i} (\text{grad} P_i - \rho_i \times g) \quad (I.32)$$

- Où
- k : Perméabilité intrinsèque du milieu ;
 - k_{ri} : Perméabilité relative de la phase i , fonction de la saturation de la phase mouillante ;
 - μ_i : Viscosité de la phase i ;
 - P_i : Pression de la phase i ;
 - ρ_i : Masse volumique de la phase i .

I.3.4- Avantages et inconvénients de l'approche hydro-mécanique

Les modèles hydro-mécaniques permettent d'étudier en détail les interactions physico-chimiques dans les sols et de conduire des études de sensibilité à tel ou tel phénomène ou paramètre. Cette approche présente cependant certaines limitations, analysées par exemple dans Vauclin (1994) et résumées ci-après.

Ces modèles nécessitent la connaissance préalable des paramètres dont le nombre dépend du degré de sophistication des modèles. La difficulté de leur obtention directe fait qu'ils sont déterminés le plus souvent par ajustement du modèle à des données expérimentales en utilisant des procédures d'optimisation. Se pose alors le problème de l'unicité de la solution trouvée, ce qui confère aux modèles un caractère semi-empirique lié au mode d'obtention des paramètres phénoménologiques. De plus, la pertinence de ces paramètres est rarement évaluée sur d'autres données que celles qui sont utilisées dans la procédure d'identification elle-même, ce qui pose le problème de la validation des modèles.

Mais le développement récent de nouvelles techniques de traitement de données, où aucune connaissance préalable des mécanismes physiques en oeuvre n'est requise (approche de type « boîte noire »), permet la simulation de processus complexes, comme ceux qui interviennent en particulier en génie de l'environnement (Dan *et al.*, 2002 ; Del Frate *et al.*, 2002). Ces techniques, qui ont été mises à profit dans notre étude, vont être présentées dans le chapitre suivant.

I.4- Approche « traitements de données »

Une zone d'étude n'est jamais uniforme et homogène. Ses propriétés géologiques et hydrodynamiques varient d'un point à un autre. Etudier et modéliser les transferts des polluants

dans la zone non saturée du sol sur l'ensemble de la zone d'étude nécessite a priori d'utiliser des modèles hydro-mécaniques complexes, qui requièrent un effort de calcul important afin d'englober cette variabilité.

L'approche « traitement de données » est une alternative permettant de prendre en compte cette variabilité des paramètres dans la simulation des transferts. Elle repose sur la connaissance préalable d'une base de données. Puis à partir de cette base de données on peut construire un modèle de type « boîte noire » permettant de généraliser à l'ensemble du site la connaissance contenue dans les cas constituant la base de données. Il peut s'agir d'outils classiques de type régression statistique, ou de modèles à base de réseaux de neurones artificiels.

Dans cette étude, nous avons utilisé la démarche suivante : Tout d'abord, nous avons construit une base de données à partir d'un logiciel hydro-mécanique. Ensuite, nous avons construit des modèles de réseaux de neurones artificiels. Finalement, nous avons comparé la performance de ces modèles à celle des modèles de régression linéaire multiple.

I.4.1- La régression

La notion de régression consiste à analyser une relation entre deux variables quantitatives et à l'exploiter pour estimer la valeur inconnue de l'une à l'aide de la valeur connue de l'autre.

On étudie en régression deux variables quantitatives, dont l'une, appelée variable expliquée, est considérée comme dépendante de l'autre, appelée variable explicative ou indépendante. On notera Y la variable expliquée, et X la variable explicative.

Le modèle de régression s'écrit (Montgomery et Peck, 2001):

$$Y = f(X) + \varepsilon \quad (I.33)$$

La variable Y est donc supposée approximativement égale à une fonction f de X, le terme ε caractérisant la marge d'erreur ou d'imprécision du modèle appelée variable résiduelle.

On suppose en outre que le modèle vérifie deux propriétés :

- La variable résiduelle ne dépend pas de X ;
- La moyenne de la variable résiduelle est nulle.

Pour effectuer la régression, on dispose de données qui se présentent sous la forme d'une suite de n couples $[x(i), y(i)]$, numérotés de $i = 1$ à n (données individuelles).

On considère souvent le modèle le plus simple, c'est-à-dire la liaison linéaire entre les variables, de la forme :

$$Y_i = \beta_0 + \beta_1 X_{1i} + \beta_2 X_{2i} + \dots + \beta_p X_{pi} + \varepsilon_i \quad (I.34)$$

La représentation matricielle du modèle est la suivante :

$$Y = X\beta + \varepsilon \quad \text{où} \quad X = \begin{bmatrix} 1 & X_{10} & X_{p0} \\ 1 & & \\ \vdots & & \\ 1 & X_{1n} & X_{pn} \end{bmatrix} \quad \text{et} \quad \beta = \begin{bmatrix} \beta_0 \\ \beta_1 \\ \vdots \\ \beta_p \end{bmatrix} \quad (I.35)$$

Le vecteur estimé des paramètres est noté b. L'estimation des paramètres est obtenue par la minimisation de la somme des carrés des erreurs du modèle (algorithme des moindres carrés). Les valeurs estimées de la variable dépendante sont obtenues par $\hat{Y} = Xb$. La somme des carrés des erreurs d'estimation est obtenue par $(Y - \hat{Y})^T (Y - \hat{Y})$, ou encore $(Y - Xb)^T (Y - Xb)$ qu'il s'agit de minimiser. La solution est $b = (X^T X)^{-1} (X^T Y)$. Il n'existe donc de solution que si $(X^T X)$ est inversible, ce qui implique qu'aucune variable explicative ne soit la combinaison linéaire d'autres variables.

On peut, sur la base de l'estimation du vecteur des coefficients b, obtenir les grandeurs suivantes:

- La somme du carré des erreurs (SSE) : $SSE = e^t e$ où $e = Y - \hat{Y}$

- La somme du carré de la régression (SSR) : $SSR = (\hat{Y} - \bar{Y})(\hat{Y} - \bar{Y})$
- La somme totale des carrés (SST) : $SST = SSE + SSR$.
- Le nombre de degré de liberté des résidus : nombre de couples - nombre de paramètres à estimer ($DFRES = n - (p+1)$).
- Le nombre de degré de liberté de la régression : $DFREG = p$ (nombre de variables indépendantes).
- Le nombre total de degré de liberté : $DFTOT = DFRES + DFREG = n-1 = p+n-(p+1)$.

La variance des résidus est donc donnée par $MSE = \frac{SSE}{DFRES}$ et la variance de la régression par $MSR = \frac{SSR}{DFREG}$.

On cherche d'abord à tester l'hypothèse de base du modèle de régression, à savoir qu'il existe une relation linéaire entre les différentes variables indépendantes et la variable dépendante :

$$H_0 : \beta_0 = \beta_1 = \dots = \beta_p \quad (I.36)$$

L'hypothèse H_0 est alors testée à l'aide du test de Fisher : $F = \frac{MSR}{MSE}$ avec $DFREG$ et $DFRES$ degrés de liberté.

Pour estimer la contribution de chaque variable explicative, on teste l'hypothèse $H_0 : \beta_i = 0$ en utilisant le test de Student : $t = \frac{b_i}{SEb_i}$ où b_i est la valeur estimée de β_i et SEb_i est l'erreur standard du paramètre b_i . L'estimation de SEb_i se fonde sur le calcul de la matrice de variance/covariance entre les différentes variables et l'estimation de l'erreur moyenne MSE. SEb_i est donc le terme diagonal n° i de la matrice $(X^tX)^{-1} MSE$. Le nombre de degrés de liberté est $DFRES$.

La qualité de l'ajustement peut être évaluée à l'aide du coefficient de détermination $R^2 = \frac{SSR}{SST}$. Cependant dans le contexte de la régression multiple se pose le problème de la sur-paramétrisation du modèle. Plus l'on ajoute de variables explicatives, plus le R^2 augmente, même si les nouvelles variables explicatives sont très liées à la variable dépendante. Pour éviter ce phénomène, on calcule le coefficient de détermination ajusté :

$$R_{aj}^2 = 1 - \frac{\frac{SSE}{DFRES}}{\frac{SST}{DFTOT}} \quad (I.37)$$

Ce qui permet de tenir compte à la fois de l'accroissement du nombre de variables explicatives et de la réduction de SSE par rapport à SST.

La démarche dans l'élaboration du modèle de régression multiple obéit donc aux étapes suivantes :

- 1) Construction de la base de données : identification des variables expliquées et explicatives, et prélèvement des observations sur les diverses variables supposées explicatives.
- 2) Le modèle général : spécification de l'équation de régression qui sera analysée.
- 3) Les tests d'hypothèses : estimation globale de la signification du modèle et contribution marginale de chaque variable explicative.

Pour plus de détails sur la méthode de la régression le lecteur peut consulter Montgomery *et al.* (2001) et Draper et Smith (1998).

I.4.2- Réseaux de neurones artificiels

I.4.2.1- Introduction

Tout comme la régression linéaire multiple (RLM), les réseaux neuronaux associent des variables descriptives X_j (appelées entrées) et une variable décrite y (appelée cible). Dans le cadre de la régression linéaire multiple, la relation est supposée linéaire. Si l'on souhaite dépasser cette contrainte, l'utilisation de réseaux de type perceptrons multi-couches à rétropropagation de l'erreur, dits « MLP » (pour Multi-Layer Perceptron) est une bonne alternative à l'utilisation des régressions non linéaires traditionnelles (Robinson et Fallside, 1991).

Un réseau de neurones artificiel (RNA) est un outil d'analyse statistique permettant de construire un modèle de comportement à partir de données qui sont des exemples de ce comportement. Le fonctionnement du RNA est inspiré de celui du système nerveux humain. Le grand avantage des RNA réside dans leur capacité d'auto-apprentissage, ce qui permet de résoudre des problèmes sans nécessiter le recours à des modèles complexes, tout en étant tolérants aux erreurs (Najjar et Zhang, 2000 ; Najjar, 1999).

Cette technique a été utilisée avec succès dans la modélisation des systèmes linéaires et non linéaires. Par exemple, les réseaux neuronaux ont été utilisés pour modéliser la relation pluie-débit (Tokar et Johnson, 1999 ; Hsu *et al.*, 1995 ; Smith et Eli, 1995), et la prévision des débits des réservoirs et des rivières (Coulibaly *et al.*, 2000 ; Karunanithi *et al.*, 1994), ou la simulation et la prévision des débits dans un milieu crayeux fissuré (Lallahem et Mania, 2002a). Elle est aussi appliquée à la simulation de l'humidité dans un sol (Del Frate *et al.*, 2003). Les RNA ont également reçu de nombreuses applications en géotechnique (Shahin *et al.*, 2001). Dans le domaine de la pollution des sols, on peut aussi citer Dan *et al.* (2002) qui ont utilisé cette approche pour mettre en évidence des relations entre la distribution en polluants observée dans des prélèvements de sol et le type d'activité industrielle génératrice de la pollution, ainsi que Nadal *et al.* (2003) qui ont utilisé cette approche pour déterminer la concentration en certains métaux dans un sol à partir de la nature des zones étudiées.

I.4.2.2- Description des réseaux de neurones artificiels

I.4.2.2.1- Le neurone artificiel

Un réseau de neurones artificiel est composé d'un ensemble d'unités de calcul (neurones). La figure (I.3) montre la structure d'un neurone artificiel, qui est inspiré du fonctionnement d'un neurone biologique. Chaque neurone artificiel est un processeur élémentaire. Il reçoit un nombre variable d'entrées en provenance de l'extérieur ou d'autres neurones du réseau. A chacune de ces entrées est associée un poids w représentatif de la force de la connexion. Chaque processeur élémentaire est doté d'une sortie unique, qui se ramifie ensuite pour alimenter un nombre variable de neurones.

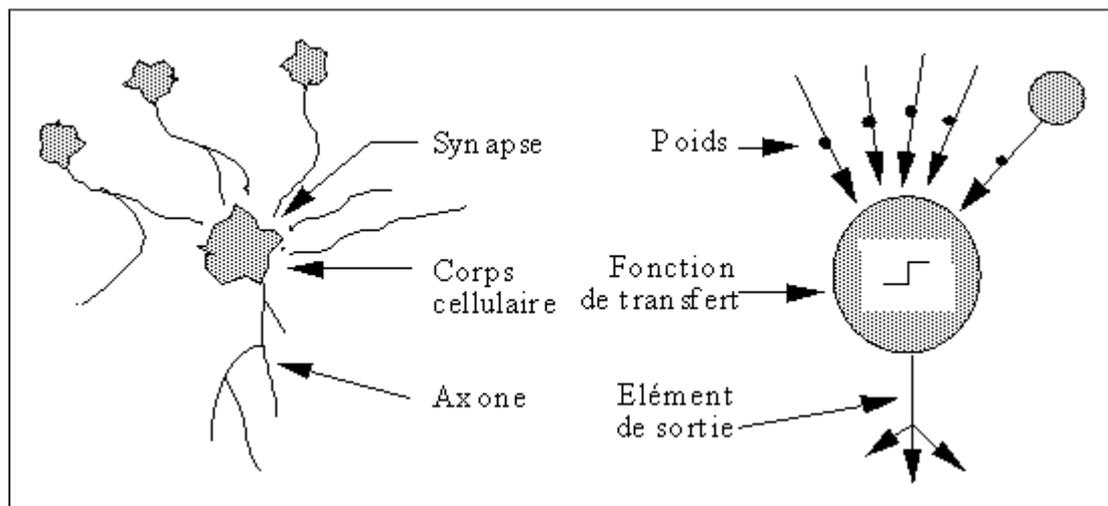


Figure 1.3 : Mise en correspondance neurone biologique / neurone artificiel.

Dans le comportement d'un neurone artificiel, on distingue deux phases. La première est habituellement le calcul de la somme pondérée des entrées selon l'expression suivante :

$$A_i = W_{i0} + \sum_j W_{ij} \times X_j \quad (I.38)$$

- Où
- X_i : Etat d'un neurone i ;
 - A_i : Activité du neurone i ;
 - W_{ij} : Poids reliant le neurone j au neurone i ;
 - W_{i0} : Biais ou seuil d'activation du neurone i .

A partir de cette valeur, dite d'activation, une fonction de transfert calcule la valeur de sortie, ou de production, du neurone. C'est cette valeur qui sera transmise aux neurones voisins. Comme il est illustré dans la figure (I.4), l'état X_i du neurone i est une fonction des états des neurones j , de son voisinage, et des poids des connexions W_{ij} .

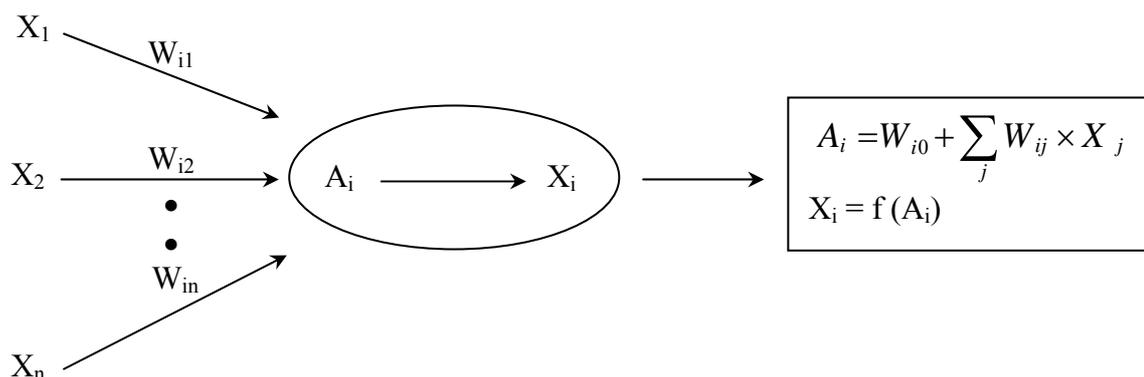


Figure 1.4 : Calcul d'un état d'un neurone.

La fonction de transfert f peut avoir plusieurs formes. Les fonctions les plus utilisées sont la fonction identique, la fonction à seuil et la fonction sigmoïde. On remarquera qu'à la différence des neurones biologiques dont l'état est binaire, la plupart des fonctions de transfert sont continues, offrant une infinité de valeurs possibles comprises dans l'intervalle $[0, +1]$ (ou $[-1, +1]$). Dans le cadre de notre travail, nous utiliserons la fonction sigmoïde (équation I.39), qui est continue, différentiable et bornée.

$$f(x) = \frac{A}{e^{-kx} + 1} \quad (I.39)$$

On note que quand $x \rightarrow \infty$ l'expression $f(x)$ tend vers A. Le paramètre A règle donc la valeur de saturation ; le paramètre k, réel positif, sert à réguler la pente de la courbe en tout point hors saturation. Le paramètre $\frac{AK}{2}$ spécifie la pente à l'origine.

I.4.2.2- Structures d'interconnexion

Les connexions entre les neurones qui composent le réseau décrivent l'architecture du modèle. Celle-ci rentre en général dans une des catégories suivantes :

- *Réseau multicouche* : les neurones sont arrangés par couche. Il n'y a pas de connexion entre neurones d'une même couche et les connexions ne se font qu'avec les neurones des couches avales (figure I.5). Habituellement, chaque neurone d'une couche est connecté à tous les neurones de la couche suivante et celle-ci seulement. Ceci permet d'introduire la notion de sens de parcours de l'information (de l'activation) au sein d'un réseau et donc de définir les concepts de neurone d'entrée, neurone de sortie. Par extension, on appelle couche d'entrée l'ensemble des neurones d'entrée, couche de sortie l'ensemble des neurones de sortie. Les couches intermédiaires n'ayant aucun contact avec l'extérieur sont appelés couches cachées.
- *Réseau à connexions locales* : Il s'agit d'une structure multicouche, mais où chaque neurone entretient des relations avec un nombre réduit et localisé de neurones de la couche aval (figure I.6). Les connexions sont donc moins nombreuses que dans le cas d'un réseau multicouche classique.
- *Réseau à connexions récurrentes* : les connexions récurrentes ramènent l'information en arrière par rapport au sens de propagation défini dans un réseau multicouche. Ces connexions sont le plus souvent locales (figure I.7).

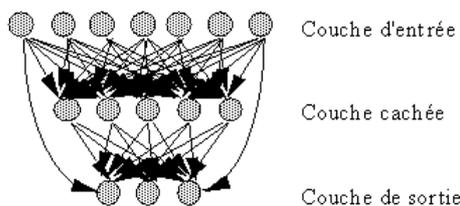


Figure I.5 : Définition des couches d'un réseau multicouche.

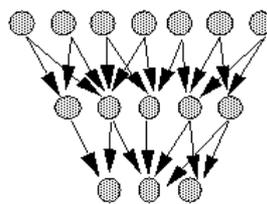


Figure I.6 : Réseau à connexions locales.

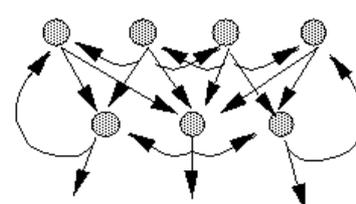


Figure I.7 : Réseau à connexions récurrentes.

I.4.2.3- Les perceptrons multicouches à rétropropagation de l'erreur (MLP)

Parmi les réseaux neuronaux les plus utilisés on trouve les perceptrons multicouches (MLP) à rétropropagation de l'erreur (Najjar, 1999). Le schéma de principe de ce réseau est illustré dans la figure (I.8). Il comporte une couche d'entrée, une couche cachée et une couche de sortie. Chaque couche contient des unités de calcul (neurones) connectées aux neurones de la couche suivante, chaque connexion portant un certain poids (ces poids constituent les paramètres du réseau). Le nombre de neurones des couches cachées permet d'adapter le réseau à la complexité (non-linéarité, en particulier) des phénomènes à modéliser. Dans le cas d'une seule couche cachée, la topologie du réseau est donnée par trois chiffres (n, m, p) représentant respectivement le nombre de neurones des couches d'entrée, cachée et de sortie. Le MLP utilisé peut comporter plusieurs valeurs de sortie.

Mathématiquement, un MLP à trois couches, où i est le nombre de nœuds d'entrée, j le nombre de nœuds cachés et k le nombre de nœuds de sortie, est basé sur l'équation suivante :

$$Y_k = f_1 \left(\sum_{j=1}^m W_{jk} f_2 \left(\sum_{i=1}^n W_{ij} X_i^{norm} + W_{j0} \right) + W_{k0} \right) \quad (I.40)$$

Où : Y_k sont les sorties du réseau ; X_i les entrées du réseau ; $X_i^{norm} = \frac{X_i - X_{min}}{X_{max} - X_{min}}$ les entrées du réseau normalisées relativement à leurs valeurs maximum et minimum observées dans les données ; W_{ij} les poids de connexion entre les nœuds de la couche d'entrée et la couche cachée ; W_{jk} les poids de connexion entre les nœuds de la couche cachée et la couche de sortie ; W_{j0} le biais de la $j^{ième}$ neurone caché ; W_{k0} le biais de la $k^{ième}$ neurone de sortie ; f_1 et f_2 sont des fonctions d'activation de type sigmoïde. Avec la fonction sigmoïde les données sont normalisées entre 0 et 1.

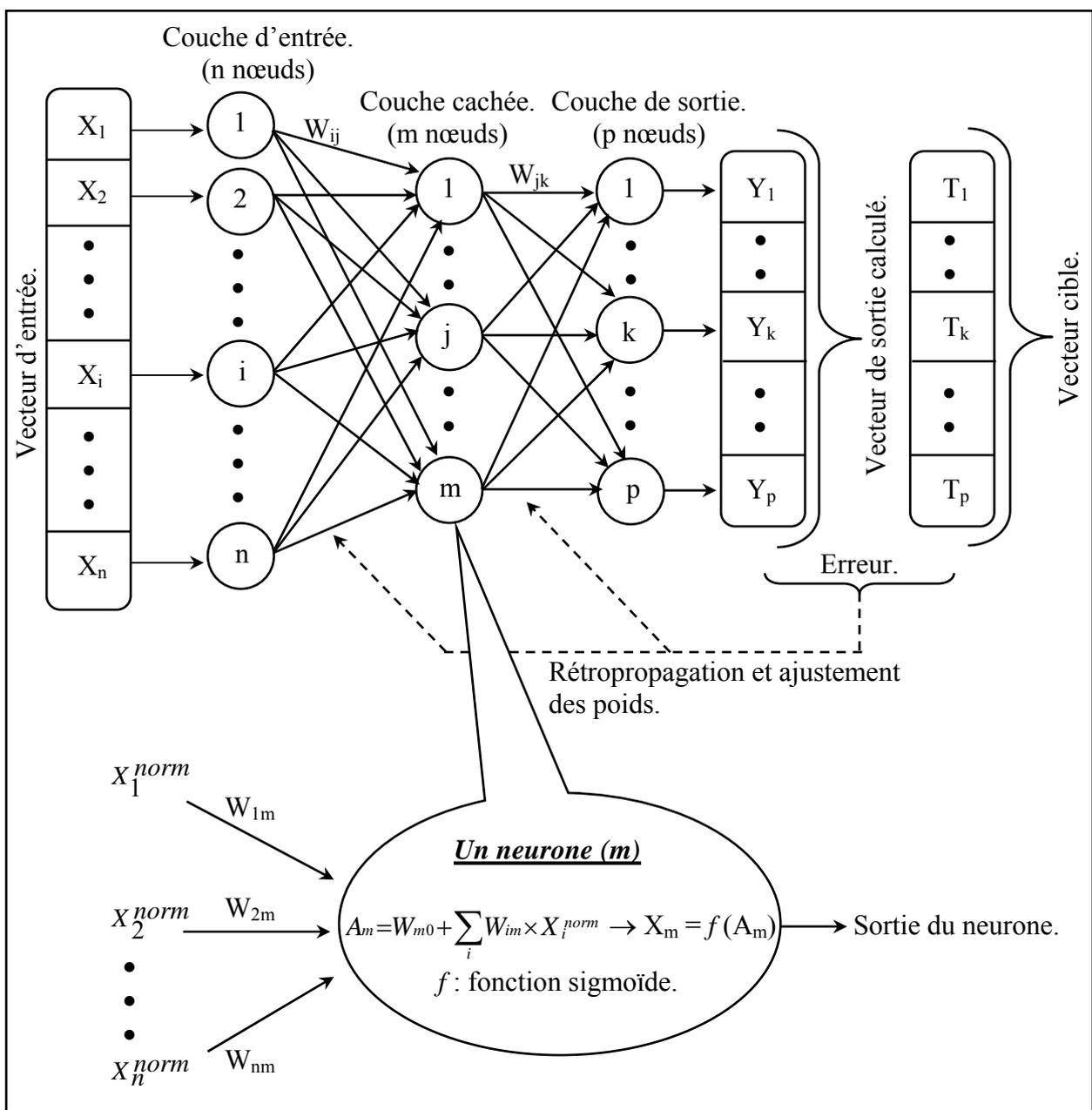


Figure I.8 : Architecture d'un MLP avec trois couches.

1.4.2.3.1- Phase d'apprentissage des MLP

L'apprentissage est réalisé par rétropropagation de l'erreur (Najjar *et al.*, 1997 ; Basheer *et* Najjar, 1995 ; Haykin, 1994 ; Beale et Jackson, 1990), afin de régler la valeur des poids de connexion pour obtenir les meilleurs paramètres.

Lors du processus d'apprentissage, on dispose d'une base de connaissances constituée de réalisations (données et résultats) d'un phénomène à modéliser et on utilise cette base pour entraîner le réseau à « raisonner ». Les données de chaque élément de la base sont soumises en entrées au réseau, et sont propagées vers la sortie. Pendant la propagation, le réseau neuronal transfère les données d'entrée dans le modèle comme le montre l'équation (I.41), où X_i^{norm} est le niveau d'activation normalisé de l'unité i , W_{ij} est le poids de la liaison de l'unité i à l'unité j (les unités i et j sont dans les couches d'entrée et cachée, respectivement), W_{j0} est le biais du $j^{ième}$ neurone caché et A_j est la somme des entrées pondérées pour la $j^{ième}$ unité de la couche cachée.

$$A_j = W_{j0} + \sum_{i=1}^n W_{ij} X_i^{norm} \quad (I.41)$$

La $j^{ième}$ unité de la couche cachée a une fonction de transfert sigmoïde qui calcule la production $f(A_j)$ comme le montre l'équation (I.42) :

$$f(A_j) = \frac{1}{1 + e^{-A_j}} \quad (I.42)$$

La production $f(A_j)$ devient la prochaine entrée pour l'unité k . La somme des entrées pondérées de l'unité k (équation I.43) subit à son tour une transformation par la fonction de transfert f , exprimée par l'équation (I.44). Le résultat de cette transformation constitue la sortie Y_k du réseau de neurones.

$$A_k = \sum_{j=1}^m W_{jk} \times f(A_j) + W_{k0} \quad (I.43)$$

$$f(A_k) = \frac{1}{1 + e^{-A_k}} = Y_k \quad (I.44)$$

La procédure de la rétropropagation de l'erreur, quant à elle, assure le calcul, pour toutes les unités de traitements, des valeurs des erreurs pendant l'ajustement des poids de connexions.

Les équations (I.45) et (I.46) calculent respectivement les valeurs des erreurs δ_k et δ_j pour l'unité k de la couche de sortie et l'unité j de la couche cachée.

$$\delta_k = (T_k - Y_k) f'(A_k) \quad (I.45)$$

$$\delta_j = \left[\sum_{k=1}^p \delta_k \times W_{jk} \right] \times f'(A_j) \quad (I.46)$$

Dans ces équations, T_k et Y_k sont les valeurs observées et calculées de l'unité k , $f'(x)$ est la dérivé de la fonction sigmoïde f , A_j et A_k sont les sommes des entrées pondérées pour les nœuds j et k . Le poids de chaque liaison est ajusté en prenant en considération la valeur de δ de l'unité qui reçoit l'entrée de cette interconnexion. L'ajustement du poids est basé sur l'équation (I.47), où η est le taux d'apprentissage, le δ_j est la valeur de l'erreur de l'unité-cible et X_i^{norm} est la valeur normalisée de l'entrée i (Dayhoff, 1990).

$$\Delta W_{ij} = \eta \times \delta_j \times X_i^{norm} \quad (I.47)$$

Cet aller-retour est effectué pour tout cas de la base d'apprentissage, et répété jusqu'à ce que les sorties simulées et les valeurs cibles du réseau coïncident, à une certaine tolérance près.

Les critères d'arrêt de l'apprentissage et de performance des réseaux sont détaillés dans les sections suivantes.

1.4.2.3.2- Critère d'arrêt de l'apprentissage

L'erreur globale à minimiser fréquemment utilisée est l'erreur quadratique moyenne (*average squared error*, ASE), définie dans l'équation (I.48) :

$$ASE = \frac{1}{p} \times \frac{1}{N} \times \sum_{i=1}^N \sum_{k=1}^p (T_{ik} - Y_{ik})^2 \quad (I.48)$$

- Où
- Y_{ik} et T_{ik} sont, respectivement, la valeur de la sortie calculée par le RNA et la valeur de la sortie réelle connue de la $k^{\text{ième}}$ nœud dans la couche de sortie pour le $i^{\text{ième}}$ donné ;
 - N est le nombre total de cas ;
 - p est le nombre de nœuds dans la couche de sortie.

Si on peut en théorie approcher d'aussi près qu'on veut les valeurs cibles à condition d'augmenter suffisamment le nombre de cycles d'apprentissage, il faut noter que ceci se fait, à partir d'un certain nombre de cycles, au détriment de l'aptitude du réseau à généraliser ses prédictions à des cas non utilisés au cours de cette phase d'apprentissage, ce qui est pourtant le but poursuivi. La technique de validation croisée (*cross-validation*) consiste alors à calculer l'erreur globale ASE simultanément sur les données d'apprentissage et sur des données de test, indépendantes, jusqu'à atteindre le minimum de l'erreur sur ces données de test (figure I.9). L'apprentissage est alors considéré comme terminé

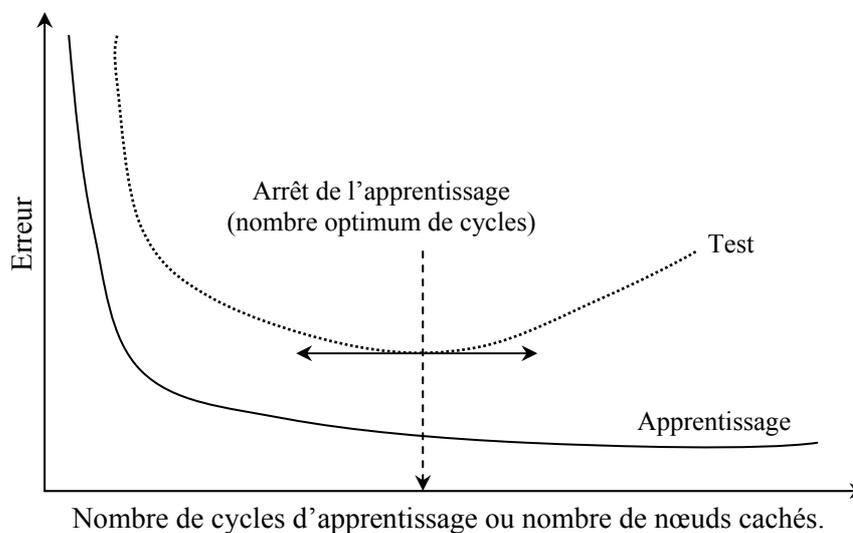


Figure I.9 : Critère de convergence et architecture optimale du réseau.

Le modèle utilisé dans notre travail (Najjar, 1999) est adaptatif, dans le sens où le nombre de nœuds dans la couche cachée peut ne pas être déterminé a priori. On commence par quatre nœuds dans la couche cachée puis on augmente ce nombre en examinant la capacité de généralisation du réseau à prévoir des cas non utilisés précédemment (échantillons de test). Le nombre de nœuds dans la couche cachée au-delà duquel l'erreur ASE (équation I.48) calculée dans la prévision des échantillons de test commence à augmenter est pris comme optimum.

I.4.2.3.3- Performance des modèles MLP

Les critères de performance du modèle de réseaux de neurones sont de nature statistique : on trouve fréquemment dans la littérature (voir par exemple Lachtermacher et Fuller, 1994) la racine carrée de l'erreur quadratique moyenne (RMSE, équation I.49), le coefficient de détermination (R^2 , équation I.50) et la moyenne des erreurs (MAE, équation I.51). La RMSE donne une indication quantitative sur l'erreur de simulation obtenue pendant la phase de modélisation. Le coefficient de détermination R^2 représente la proportion de variation de la valeur de sortie qui est « expliquée » par le modèle. Les valeurs idéales pour RMSE et MAE sont 0, pour R^2 c'est l'unité.

$$RMSE = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (T_i - Y_i)^2}{N}} \quad (I.49)$$

$$R^2 = 1 - \frac{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (T_i - Y_i)^2}{\frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^N (T_i - \bar{T}_i)^2} \quad (I.50)$$

$$MAE = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N |T_i - Y_i| \quad (I.51)$$

- Où
- T est la valeur de la sortie réelle connue ;
 - Y est la valeur de la sortie calculée par le MLP ;
 - \bar{T} est la valeur moyenne de l'ensemble des valeurs réelles connues ;
 - N est le nombre total de cas.

Le coefficient de détermination R^2 permet une interprétation graphique des performances du modèle. Il est en effet possible de représenter les sorties estimées par le réseau en fonction des valeurs cibles, connues. L'écart des points obtenus à la première bissectrice (figure I.10) donne une estimation de la performance du modèle. Or l'écart à la linéarité du nuage de points est quantifié par la valeur de R^2 . Des valeurs élevées du coefficient de détermination et une position de la droite de tendance proche de la première bissectrice indiquent une bonne capacité du modèle à reproduire les valeurs cibles.

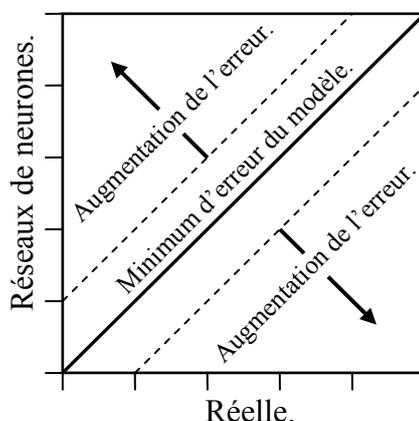


Figure I.10 : Evaluation des performances du modèle.

I.5- Conclusions

Ce chapitre a comporté une analyse bibliographique sur les facteurs qui contrôlent le transfert de polluants dans les sols. D'une manière générale, l'interaction entre le polluant et le milieu traversé aboutira à un ralentissement de sa migration. Ce ralentissement dépend à la fois des propriétés des substances polluantes et de celles du milieu traversé. De nombreux modèles de transfert de polluants dans les sols non saturés existent. Ces modèles sont complexes sur le plan physique et mathématique. Leur utilisation nécessite une grande maîtrise des phénomènes physiques mis en jeu et des techniques numériques utilisées. En effet, la génération d'un maillage cohérent, l'ajustement des paramètres numériques, l'identification et la neutralisation d'éventuels artéfacts numériques posent des difficultés qui ne peuvent être surmontées sans le "background" adéquat. Ces modèles deviennent lourds dans le cas où il s'agit de simuler une pollution dans une zone hétérogène.

Une alternative consiste à utiliser les réseaux de neurones artificiels. Cette approche permet alors l'évaluation rapide de la contamination du sol sur toute la zone, de distinguer facilement les zones à fort risque et de construire des cartes de contamination du sol. L'entraînement de ces modèles nécessite une base de données sur le transfert de polluants dans les sols dans différentes configurations. Cette base peut être construite à l'aide d'une simulation numérique. Des exemples d'utilisation de cette approche sont exposés dans les parties B et C.

PARTIE B

ETUDE DU TRANSFERT DE POLLUANTS NON
MISCIBLES DANS LA ZONE NON SATURÉE
DES SOLS.

APPLICATION:

POLLUTION ACCIDENTELLE PAR DES HYDROCARBURES
OU DES PRODUITS CHLORÉS LIÉE À UN ACCIDENT
ROUTIER.

Chapitre II : Pollution accidentelle - Synthèse bibliographique

II.1- Introduction

Les grands axes routiers et les autoroutes sont des lieux à haut risque de pollution accidentelle des eaux de surface et souterraines de par l'intensité du trafic poids lourds contenant des matières dangereuses. L'objectif principal de cette partie est d'étudier l'impact d'un projet routier dans le nord de la France sur une zone de champs captants d'eau potable et les mesures de protection de ces champs captants contre des pollutions accidentelles résultant d'un déversement de produits dangereux après un accident routier.

L'objectif de ce chapitre est de présenter une synthèse sur les accidents survenus sur les routes afin de définir les caractéristiques de l'accident de référence qui servira aux évaluations successives, et de définir les produits les plus dangereux transportés sur les routes. Enfin, les caractéristiques de 3 produits dangereux retenus dans le cadre de cette étude sont présentées.

II.2- Sources de pollution et types de polluants

II.2.1- Origines des polluants

Différents types de pollution peuvent être à l'origine de nuisances en milieu routier : la pollution temporaire, chronique, saisonnière ou bien accidentelle (Pagotto, 1999).

- ❖ *La pollution temporaire* est liée aux travaux de construction de la route (poussières, rejets d'huile d'engins...).
- ❖ *La pollution chronique* a lieu de façon continue et a un lien direct avec l'utilisation de la route. L'abrasion et la corrosion des matériaux constitutifs des véhicules (pneumatiques, freins, carrosserie), la combustion du carburant, les fuites de divers liquides (huile moteur, antigel), l'usure de la chaussée et la corrosion des glissières de sécurité participent à cette pollution.
- ❖ *La pollution saisonnière* est liée à la maintenance des infrastructures routières (entretien hivernal, désherbage des bas-côtés). Ces opérations sont nécessaires au maintien de bonnes conditions de circulation et nécessitent l'emploi de produits qui peuvent présenter des risques pour l'environnement (sels et herbicides) (SETRA-CSTR *et al.*, 1989).
- ❖ *La pollution accidentelle* est consécutive à un accident de la circulation au cours duquel des matières dangereuses sont déversées avec des conséquences plus ou moins graves, selon la quantité et la nature du produit mis en jeu et la sensibilité du milieu récepteur.

Pour leur caractère imprévisible et le risque d'impact durable, voire irréversible, qu'elles ont sur les eaux souterraines, les pollutions accidentelles constituent le risque majeur de pollution des eaux par les infrastructures de transport. Il est donc impératif de prévoir des dispositions constructives adaptées pour maîtriser ce risque.

II.2.2- Transport de matières dangereuses (TMD)

Le réseau routier français est emprunté chaque jour par plusieurs millions de véhicules (Ellena *et al.*, 2003), parmi lesquels certains sont des TMD (Transport de Matières Dangereuses). On définit comme matière dangereuse une substance qui, par ses propriétés physiques ou chimiques, ou bien par la nature des réactions qu'elle est susceptible de mettre en œuvre, peut présenter un danger grave pour l'homme ou l'environnement. Elle peut être inflammable, toxique, explosive, corrosive ou radioactive. La survenue d'un accident impliquant ce type de véhicules engendre des conséquences (pollution de la nappe) et implique la gestion de la crise induite (mesures de sécurité, décision d'évacuation, ...).

Afin de mettre en œuvre les mesures de prévention, il faut identifier les polluants les plus transportés par le réseau routier et étudier l'évolution de leur migration dans la zone non saturée à partir de la surface du sol en cas de déversement accidentel. On peut ainsi localiser les endroits à forte vulnérabilité et prévoir l'épaisseur de sol contaminé par le polluant.

II.2.2.1- Le trafic des TMD

Le transport de marchandises par la route a représenté 1654,9 millions de tonnes en 1996, pour un total 1750,4 millions de tonnes tous modes confondus soit 94 % du trafic (D.A.E.I., 1998).

La part du transport de matières dangereuses par la route représente environ 5 % du transport de marchandises par ce même mode de transport. Le transport de matières dangereuses représente donc environ un trafic annuel de 100 millions de tonnes assuré à 76 % par la route (76,3 millions de tonnes) et à 17 % par le chemin de fer (17,9 millions de tonnes), ou 53 % et 42% si on raisonne en tonne-kilomètres (D.T.T., 1997). Le transport des hydrocarbures représente à lui seul près de 70 % du transport du TMD tous modes confondus. A titre de comparaison, en Allemagne (SETRA, 1999), le trafic de matières dangereuses représentait 380 millions de tonnes par an, soit 16 % du fret transportable. La part en tonnage du transport fluvial 57 %, celle du chemin de fer 23 % et celle de la route 20 %.

Pour le transport routier, les trois familles de produits se répartissent de la façon suivante : 75 % pour les hydrocarbures et assimilés, 20 % pour la chimie et 5 % pour le gaz (D.T.T., 1997).

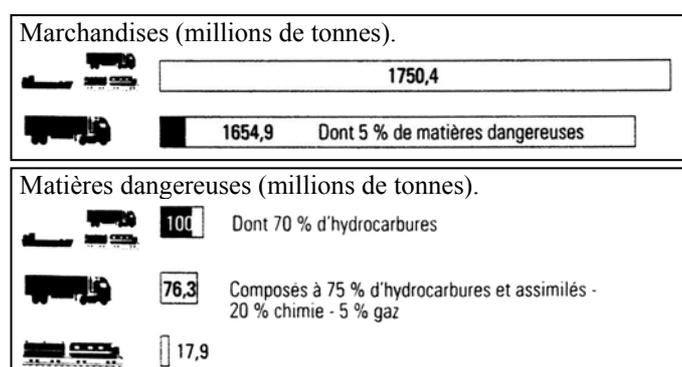


Figure II.1 : statistiques sur le trafic (D.T.T., 1997).

Il faut noter que le transport routier est le plus exposé aux accidents, dont les causes sont alors multiples : état du véhicule, faute de conducteur ou d'un tiers, météo...

II.2.2.2- Le transport par route

Plus de 800 produits sont recensés par le Règlement pour le Transport des Matières Dangereuses par Route (RTMDR) (Martin et Roux, 1999). Les études recensées par le BRGM (BRGM, 1999) portent sur 130 produits liquides organiques les plus toxiques pour lesquels les caractéristiques de solubilité et de toxicité étaient disponibles.

D'après la Mission Interministérielle sur les Transports de Matières Dangereuses, il ressort que les produits les plus transportés sont les produits pétroliers (essence auto, supercarburant avec ou sans plomb, gas-oil, fioul domestique, fioul lourd) puisque 60% des véhicules citernes sont destinés à ce type de produits. On peut noter que les normes de construction sont moins « contraignantes » pour les produits pétroliers, ce qui augmente le risque de déversement en cas de choc.

II.2.2.3- Caractéristiques des produits concernés

Ils sont regroupés d'une façon analytique (produits s'analysant d'une façon similaire), ou hydrochimiques (produits se comportant de façon similaire dans les nappes). Le tableau (II.1) donne le classement des produits liquides organiques par famille.

Les données sur la composition des carburants sont assez variables du fait des différentes origines du pétrole brut à partir duquel ils sont fabriqués, mais aussi du fait des modes de production (distillation par coupes). Certains composants se retrouvent de façon systématique bien qu'en qualité variable. La phase soluble des produits pétroliers est principalement composée d'aromatiques tels que benzène, toluène et xylène. Le tableau (II.2) permet d'identifier les principaux produits contenus dans la phase soluble de différents produits pétroliers.

Familles	Composés	Principales caractéristiques
<i>Immiscibles dans l'eau.</i>	NAPL (Non-Aqueous Phase Liquid) : Contaminants Liquides Organiques Insolubles (dans l'eau) ou Immiscibles.	Tous les composés organiques se séparant de l'eau (immiscibles) et formant une phase liquide distincte des nappes.
DNAPL	Denses.	Densité supérieure à 1, migrent au fond des nappes.
LNAPL	Légers.	Densité inférieure à 1, surnagent sur les nappes et sur les eaux de surface.
<i>Volatils</i>		Formant une phase vapeur distincte.
COV (en anglais : VOC)	Non-Halogenated Volatil Organic Compounds (groupe hétérogène de composés organiques).	Forte volatilité, et/ou le comportement hydrochimique (circulation sous la double forme liquide et vapeur dans la porosité du sol).
Les COV halogénés	(en anglais : Halogenated VOC).	Faible solubilité, faible miscibilité et propriétés variant avec la masse moléculaire (densité, volatilité).
SVOC	(en anglais : Semi-volatil Organic Compounds).	Volatilité moindre, tension de vapeur inférieure à 5,35 bars. Autres propriétés et leur comportement différent peu de ceux des COV. La circulation sous la double forme liquide et vapeur dans la porosité du sol reste possible mais la volatilisation est bien moindre.
SVOC halogénés		Faible solubilité, faible miscibilité et propriétés variant avec la masse moléculaire (densité, volatilité).
CAV	(composés aromatiques volatils)	Forment un groupe voisin des COV, de composés aromatiques défini par les propriétés physiques (forte volatilité) et/ou le comportement hydrochimique (circulation sous la double forme liquide et vapeur dans la porosité du sol).
BTEX	Acronyme formé des initiales des CAV les plus usuels : Benzène, Toluène, Ethylbenzène, Xylène.	
<i>Autres</i>		
Phénols	Composés phénoliques chlorés et non chlorés.	Solubilité non négligeable.
PCB	Polychlorobiphényles	
Carburant lourd	Goudrons, naphta, fuel lourd, (HAP).	S'accumuleront au plancher de la nappe (densité supérieure à 1).
Carburant léger.	Essence, diesel (BTEX, CAV).	S'accumuleront sélectivement en surface de la nappe (densité inférieure à 1).

Tableau II.1 : Classement par famille « comportementales » des produits organiques (BRGM, 1999).

Mélange pétrolier	Fraction soluble dans l'eau*.	Principaux produits composant la fraction soluble et % dans le carburant.
Supercarburant (leaded gasoline)	50 à 55 % vol.	Benzène 2 à 5 % vol. Ethylbenzène 5 % vol. Toluène 6 à 7 % vol. Xylènes 6 à 7 % vol. Plomb tétraéthyle. Autres produits : - n-butylbenzène 0,2 à 0,5 % vol. - 1,1 -dichloroéthane 0,03% mas. - 3-méthyl-1-butène 0,07 % vol. - 1,3,5-triméthylbenzène 1,3 % vol. - dibromoéthane 0,02 % mas. - HAP.
Super sans plomb	50 à 55 % vol.	Benzène 1 % vol. MTBE 7 % vol. Autres produits: aromatiques Ethylbenzène 5 % vol. Toluène 6 à 7 % vol. Xylènes 6 à 7 % vol.
Essence auto	Environ 55 % masse.	Benzène 1 % masse. Toluène 12 % masse. Xylènes 19 % masse.
Gas oil Fuel oil domestique.	Inconnu	Benzène. Toluène. Xylènes. Ethylbenzène.
Fuel lourd.	Environ 10 % masse.	Benzène. Toluène. Xylènes. Ethylbenzène.
Carburant avion	Inconnu	Benzène 0,02 % vol. Autres produits : - Butylbenzène 2 % vol. - 1,2-diméthyl-3-propylbenzène 5,4 % vol. - 1-méthyl-4-propylbenzène 3,3 % vol. - 1,2,3-triméthylbenzène 6,6 % vol. - Propylbenzène 4 % vol. - Polyaromatiques (HAP).
Solvant naphta	50 à 100 % d'aromatiques dans le solvant naphta.	Xylènes. Ethylbenzène. Toluène (traces). Autres produits : - Triméthylbenzène. - Tétraméthylbenzène. - Butylbenzène. - Méthyléthylbenzène. - Indène. - Indane.

* La fraction soluble est le pourcentage (en masse ou en volume) qui se solubilisera dans l'eau à son contact.

Tableau II.2 : Principaux produits composant la phase soluble dans les produits pétroliers (Martin et Roux, 1999).

II.3- Accident de référence

Une étude sur l'accident de référence concernant le transport de matières dangereuses sur autoroute a été publiée en janvier 1993 par SCETAUROUTE-SETRA (Martin et Roux, 1999). Elle prend en compte les accidents survenus dans 32 districts autoroutiers sur une période de 2 à 7 ans à partir de 1986.

II.3.1- Fréquence des accidents

Sur 92 accidents répertoriés, 55 (soit 59,8 %) ont été à l'origine d'épandage de produits polluants. On notera que la proportion d'accidents impliquant des matières dangereuses sur le réseau routier national est moins forte (33 %) que sur le réseau autoroutier. La probabilité d'accidents avec déversement de matières dangereuses est d'un accident par an pour 100 Km d'autoroute (Martin et Roux, 1999).

II.3.2- Circonstances des accidents

Les accidents se produisent plutôt le jour (55,4 %) avec une pointe entre 6 et 8 heures et la majorité se produit par temps sec (61,9 %). 17,4 % interviennent par temps de pluie ou de neige et 11,9 % par verglas, brouillard et chaussée humide sans ruissellement. En ce qui concerne les accidents ayant occasionné un déversement, 60 % d'entre eux se sont produits par temps sec, 23,6 % par pluie ou neige, 10,9 % par temps humide, brouillard ou verglas.

Sur la totalité des accidents, 53 % des containers sont des citernes, 15 % des chargements de fûts et 7,6 % des bidons de 5 à 30 l. Dans 83 % des cas, l'accident intervient en section courante, et dans 80 % des cas, le véhicule reste sur la plate-forme. S'il y a déversement de produit, dans un cas sur deux, celui-ci reste sur la chaussée, dans l'autre cas, il rejoint les fossés ou les cunettes, et pour deux accidents seulement, le produit a été récupéré dans les bassins de rétention placés à l'aval.

II.3.3- Nature des déversements

Le tableau (II.3) montre qu'il y a 35 catégories de produits liquides différents qui sont impliquées dans les accidents avec déversement. Parmi ceux-ci, 61 % sont non solubles, dont 40,7 % plus légers que l'eau, et 25,5 % sont solubles. Les hydrocarbures représentent à eux seuls 28,8 % des produits déversés moins denses que l'eau. Sur les 55 déversements, 36 produits (65%) sont restés à l'état liquide. Les volumes déversés correspondent à des centaines de litres dans 40 % des cas, et à des milliers de litres dans 27 % des cas (tableau II.4).

La durée de la fuite est rarement connue. Les informations disponibles indiquent que :

- dans deux cas, les fuites ont été colmatées entre 4h30 et 10h40 après l'accident ;
- dans deux cas, la totalité de la citerne s'est vidée et le produit a été récupéré dans les bassins de rétention. Le délai d'intervention sur les bassins est compris entre 8h et 3 jours ;
- dans trois cas, le produit a été retenu par pose de batardeau dans les fossés.

Dans 40,6 % des cas, la surface contaminée est comprise entre 100 et 500 m² et dans 31 % des cas entre 10 et 100 m². La profondeur de la zone contaminée est rarement connue : 1 cas entre 0 et 0,1 m, 6 cas entre 0,1 et 0,5m, 1 cas entre 0,5 et 1m.

	Famille	Produits liquides concernés par les accidents.	Nombres d'accidents.
Non solubles plus légers que l'eau.	Hydrocarbures.	Carburant (gasoil, essence, super)	10
		Huile	4
		Xylène	1
		White Spirit	1
Non solubles plus lourds que l'eau.	Huile végétale Ester	Butyrate d'amyle	1
		Acétate de butyle	1
		Méthacrilate de méthyle	1
	Pesticides		4
	Total		24
Non solubles plus lourds que l'eau.	Hydrocarbures	Bitume	5
	Colorant		1
	Peinture		1
	Ester	Diisocyanate de toluylène Diisocyanate de diphenylméthane.	1
	Pesticides		4
	Total		12
Solubles dans l'eau.	Acides	Chlorhydrique	1
		Formique	1
		Nitrique	1
		Sulfurique	1
		Glyoxilique ?	2
	Alcools	Butylique Butanol	
	Phénol		
	Acétone		1
	Soude		1
	Cyanure de potassium Sulfate de sodium Latex		1 1 1
Amine et amide	Ethylène diamine Acrylamide	1	
Ester	Toluidine Acétate d'éthyle	1	
Méthylchlorosilane		1	
Anhydride phosphorique		1	
	Total		15

Tableau II.3 : Nature des produits liquides concernés par les accidents avec déversement (d'après Martin et Roux, 1999).

Nature des produits transportés (51 cas sur 55)	
Produits non solubles :	61 %
- Plus légers.	24 (40,7 %) dont hydrocarbures 28,8 %
- Plus lourd.	12 (20,3 %)
Produits solubles :	15 (25 %)
Volume déversé (30 cas sur 55)	
Totalité chargement	23 %
Milliers de litres	27 %
Centaines de litres	40 %
Quelques litres	10 %
Surface concernée (32 cas sur 55)	
Quelques m ²	9,5 %
10 à 100 m ²	31 %
100 à 500m ²	40,6 %
500 à 1000m ²	6,2 %
1000 à 3000 m ²	12,5 %
Epaisseur de sol contaminé (51 cas sur 55)	
0 à 10 cm	3 cas
10 à 50 cm	6 cas
50 cm à 1m	1 cas

Tableau II.4 : Caractéristiques des accidents avec déversement (Martin et Roux, 1999).

II.3.4- Types d'accidents

On distingue trois accidents-type (SETRA, 1993):

- *L'accident représentatif* est l'accident ayant le plus de probabilités de se produire ; il regroupe des conditions moyennes. Les circonstances sont les suivantes :
 - horaire de l'accident : 2 à 8h,
 - temps sec,
 - produit non soluble, plus léger que l'eau,
 - déversement de quelques centaines de litres,
 - durée de la fuite : 4 à 11 h,
 - lame infiltrée : 1 cm.
- *L'accident de référence* est choisi afin que les circonstances réunissent une proportion suffisante de la totalité des événements analysés :
 - horaire de l'accident : 2 à 16h,
 - temps sec ou pluie biennale,
 - produits non solubles et solubles,
 - déversement de la totalité du chargement (36 m³) sur la plate-forme,
 - durée de la fuite : plusieurs heures,
 - lame infiltrée : 4 cm.
- *L'accident majorant* réunit les conditions les plus défavorables. Il est peu fréquent :
 - ❖ horaire de l'accident : 2 et 8h,
 - ❖ temps pluvieux,
 - ❖ produits non solubles et solubles,
 - ❖ déversement de la totalité du produit en dehors du réseau d'assainissement,
 - ❖ durée de la fuite : supérieure à 24 h,
 - ❖ lame infiltrée : supérieure à 8 cm,
 - ❖ aquifère et captages pollués.

II.4- Polluants considérés dans cette étude

De nombreux produits de nature chimique variable étant transportés par route, il n'est pas réalisable de les étudier tous exhaustivement et une sélection s'avère nécessaire. Des produits représentatifs des principaux groupes de liquides organiques les plus fréquemment transportés par route ont été retenus, en particulier, selon les risques potentiels qu'ils engendrent pour l'eau potable souterraine. En fonction de ces critères de sélection, cette étude inclura les produits suivants :

- ❖ Trichloroéthylène (TCE) et le 1,1-Dichloroéthane (produits non solubles plus légers que l'eau),
- ❖ Benzène (produits non solubles plus lourds que l'eau).

Le benzène appartient à la famille des hydrocarbures aromatiques monocycliques. Le trichloroéthylène et le 1,1-dichloroéthane appartiennent à la famille des hydrocarbures aliphatiques chlorés.

L'utilisation industrielle fréquente du trichloroéthylène en tant que dégraissant le rend responsable de nombreux cas de pollution et justifie une étude spécifique sur son comportement (INERIS, 2003). Il est reconnu comme cancérigène probables chez l'homme (Official Journal of the European Communities, 21.08.2001). Le benzène, sous-produit du pétrole, entre naturellement dans la composition de l'essence automobile (INERIS, 2004). Le 1,1-dichloroéthane est principalement utilisé comme intermédiaire dans la synthèse du chlorure de vinyle (ATSDR, 1990). Le benzène est classé comme cancérigène (INERIS, 2004) et le 1,1-dichloroéthane comme cancérigène probable chez l'homme (ATSDR, 1990).

II.4.1- Classes de toxicité – Influence sur la qualité de l'eau potable

Dans le cadre de cette étude, la voie d'exposition de l'homme aux produits est l'ingestion, via l'eau consommée. En effet, le risque principal est lié à l'ingestion d'eau contaminée à la suite d'une pollution accidentelle d'une nappe d'eau souterraine exploitée pour la production d'eau potable.

En l'absence de données toxicologiques chiffrées pour l'homme, c'est le critère de classement adopté par le CEE pour les dossiers préalables à la mise sur le marché de nouveaux produits chimiques qui a été retenu (Directive du Conseil n° 67/548/CEE du 18 septembre 1979). Le mode de classement, par ordre décroissant, est le suivant :

- substance très toxique : DL50 (orales, rat) \leq 25 mg/kg ;
- substance toxique : DL50 (orales, rat) comprise entre 25 et 200 mg/kg ;
- substance nocive : DL50 (orales, rat) comprise entre 200 et 2000 mg/kg.

Le DL50 étant la dose qui cause la mort de 50% des rats dans la population soumise au test. Le tableau (II.5) donne le classement des trois produits étudiés selon la toxicité.

Nom du produit	DL50 (mg/kg) rat, ingestion	Classe de toxicité Le classement réglementaire a été donné en priorité (INRS)
Trichloroéthylène	4000 environ	Nocif (INRS)
Benzène	810 à 4800	Toxique (INRS)
1,1 Dichloroéthane	725	Nocif

Tableau II.5 : Classement des produits selon la toxicité (Martin et Roux, 1999).

Pour définir une eau potable, des normes fixent les teneurs limites à ne pas dépasser pour un certain nombre de substances nocives. Une eau conforme aux normes, c'est à dire potable, ne

signifie pas qu'elle soit exempte de matières polluantes, mais que leur concentration a été jugée suffisamment faible pour ne pas mettre en danger la santé du consommateur.

Le tableau II.6 donne la concentration maximale admissible du trichloroéthylène, benzène et le 1,1-dichloroéthane dans les eaux potables selon les normes françaises, européenne (UE) et de l'Organisation Mondiale de la Santé (OMS).

Nom du produit	Concentration admissible dans les eaux de consommations ($\mu\text{g/l}$).		
	France	UE	OMS
	<i>Référence</i> : Décret n° 2001 – 1220 du 20 décembre 2001 relatif aux eaux destinées à la consommation humaine à l'exclusion des eaux minérales naturelles.	<i>Référence</i> : Directive 98/83/CE du Conseil du 3 novembre 1998 relative à la qualité des eaux destinées à la consommation humaine.	<i>Référence</i> : Directives qualité pour l'eau de boisson (1996).
<i>Trichloroéthylène</i>	10*	10*	70**
<i>Benzène</i>	1	1	10 $\mu\text{g/l}$ pour un excès de risque unitaire de 10^{-5}
<i>1,1-Dichloroéthane</i>	Non concerné.	3	Non concerné.

* Somme de la concentration en trichloroéthylène et tétrachloroéthylène.

** Valeur provisoire.

Tableau II.6 : Concentration admissible des trois produits étudiés dans les eaux de consommations.

II.4.2- Paramètres physico-chimiques des polluants étudiés

L'aptitude d'une substance à contaminer l'environnement dépend de ses propriétés physico-chimiques, de son comportement dans les différents milieux environnementaux (air, eau, sols), de sa capacité à séjourner dans ces milieux et à s'accumuler ou à se transformer dans les organismes vivants. Les principaux paramètres caractérisant ces propriétés pour les 3 polluants étudiés (trichloroéthylène, benzène et le 1,1-dichloroéthane) sont donnés dans le tableau II.7. Ils seront utiles pour simuler la migration de ces polluants dans la zone non saturée des sols.

Propriétés des polluants	<i>Trichloroéthylène</i>	<i>Benzène</i>	<i>1,1-dichloroéthane</i>
	<i>Référence</i> : INERIS (2003), Dana et Shahrour (2002).	<i>Référence</i> : INERIS (2004), ANTEA (2000).	<i>Référence</i> : ANTEA (2000).
Densité relative ρ (Kg/m^3)	1456	880	1176
Viscosité μ ($\text{Kg}/(\text{mxs})$)	0,000556	0,00065	0,00044
Tension superficielle eau polluant (dynes/m).	3174	3500	3950
Tension superficielle polluant air (dynes/m).	4750	2900	3174
Diffusion moléculaire polluant eau (m^2/s).	10^{-9}	10^{-9}	10^{-9}
Diffusion moléculaire polluant air (m^2/s).	$7,9 \times 10^{-6}$	$9,3 \times 10^{-6}$	7×10^{-6}
Taux limite de dissolution du polluant dans l'eau (Kg/m^3).	1100	1760	5500
Coefficient de partition du carbone organique k_{oc} (l/kg)	111	38	43
Constante de Henry H (sans dimension).	0,4	0,22	0,18

Tableau II.7 : Propriétés physico-chimiques des 3 polluants étudiés.

II.5- Conclusions

L'analyse bibliographique a conduit à retenir trois produits à risque (trichloroéthylène, benzène et 1,1-dichloroéthane) parmi plus de 800 transportés sur route. Elle a de plus permis de déterminer les événements redoutés et les scénarios d'accidents conduisant à ces événements redoutés.

Plus précisément dans le cas présent, elle a permis d'établir une classification par criticité des différents scénarios d'accidents recensés, afin de connaître l'ensemble des risques présentés dans le transport des matières dangereuses et de sélectionner les scénarios particulièrement critiques ou représentatifs pour étudier leurs conséquences. Le recensement des scénarios d'accidents permettra également de déterminer les plans d'intervention en cas de pollution accidentelle.

Chapitre III : Présentation du cas étudié

III.1- Introduction

L'objectif principal de ce chapitre est de présenter le cas étudié. Plus particulièrement, il a pour but de donner les caractéristiques physiques des sols (perméabilités, rétention, ...) et de rassembler des données sur la géologie et hydrogéologie du secteur.

III.2- Contexte de l'étude

Dans le cadre de la construction d'une infrastructure routière nouvelle de 21 km environ entre le sud de Maubeuge et le sud d'Avesnes sur Helpe (élargissement de la RN2), une étude d'impact environnemental a été lancée par la DDE du Nord. Dans la partie nord de son tracé, en effet, le projet traverse sur environ 3,6 kilomètres le synclinal de Bachant. Ce secteur est répertorié dans le SDAGE (Schéma Directeur d'Aménagement et de Gestion des Eaux) Artois-Picardie comme une zone à protéger en priorité du fait de la présence de champs captants irremplaçables. Parmi ceux-ci figurent ceux de Limont Fontaine et de Ferrière-la-Petite dont l'exploitation assure l'alimentation en eau potable de plus de 50% de la population de l'arrondissement. Compte tenu de sa forte vulnérabilité hydrogéologique et de son intérêt stratégique pour l'Avesnois, la protection du synclinal de Bachant apparaît au premier rang des préoccupations du maître d'ouvrage.

Après expertise hydrogéologique, le choix a été fait d'un passage à l'est de la RN2 actuelle, dans une zone proche du dôme piézométrique et éloignée des points de captages. Les formations carbonifères, qui contiennent l'aquifère exploité, y sont protégées par une couche de limons, homogène et de faible perméabilité, assez importante.

Toutefois, une sortie de route d'un véhicule de transport de polluants pouvant causer une contamination très grave du sol, et même dans certaines conditions entraîner la migration du polluant jusqu'à un captage d'eau alimentaire, l'objectif général de cette partie est d'étudier les impacts sur la zone de champs captants d'eau potable du synclinal de Bachant suite à une telle pollution accidentelle.

III.2.1- Contexte géologique

Comme précisé dans le rapport de l'étude SOGREAH (2000), *"le tracé de la future RN2 repose sur des terrains essentiellement d'âge Primaire, dont une importante superficie est recouverte de formations superficielles du Quaternaire"*.

Ces formations superficielles sont majoritairement des limons des Plateaux, dont l'épaisseur varie en général de 5 à 15 m sous le tracé de la RN2. Ils offrent donc en général une bonne protection aux couches sous-jacentes. Par endroit cependant, leur épaisseur peut être plus faible, les formations du Carbonifère étant alors subaffleurantes. La figure (III.1) donne la configuration du terrain le long de cet axe. On a représenté la surface du terrain naturel et le profil en long du projet, faisant apparaître les zones en déblai et les zones en remblai.

III.2.2- Contexte hydrogéologique

L'étude SOGREAH (2000) identifie trois types de nappes dans la zone concernée par le projet: la nappe de la couche carbonifère dinantien, celle des sables tertiaires et celle des limons des plateaux. Les nappes des sables tertiaires et des limons des plateaux sont peu étendues et non exploitées. La nappe de la couche carbonifère du synclinal de Bachant est par contre l'aquifère principal de la région. Cette couche a une perméabilité de fracture élevée, bien que très variable, et la nappe y est peu profonde (5 à 25 m).

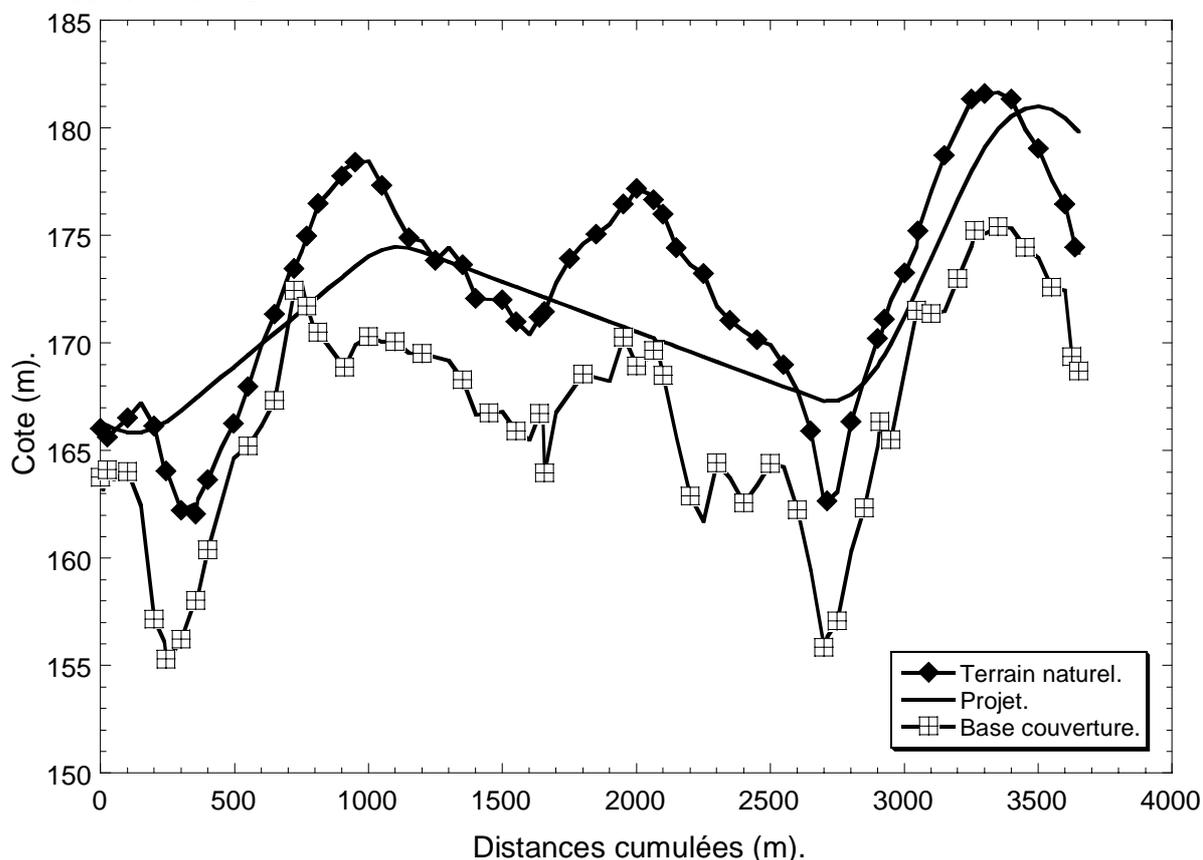


Figure III.1 : Profils dans l'axe de la route (Référence : carte RN2, liaisons Avesnes Sud-Maubeuge Sud, opération 21M59A, N° de la pièce 2-2).

III.3- Données de la zone d'étude

III.3.1- Données hydrogéologiques

La carte représentée en figure (III.2) montre l'emplacement des sondages ayant servi à l'établissement des cartes d'épaisseur de la couche de couverture et de profondeur de la nappe (Référence : carte RN2, liaisons Avesnes Sud-Maubeuge Sud, opération 21M59A, N° de la pièce 2-2).

On dénombre 20 sondages piézométriques (PZ), 5 sondages carottés (SC), 6 sondages pressiométriques (PR) et 26 sondages à la carrière (T). Un logiciel de cartographie (Surfer 7) a été utilisé pour interpoler à l'ensemble de la zone les données suivantes, obtenues à partir des sondages de la figure (III.2) :

- Epaisseur de la couche des limons (couche de couverture),

➤ Profondeur de la nappe (donnée tous les mois de Septembre 2000 à Avril 2002).

La carte des isovaleurs des épaisseurs de couverture est représentée en figure (III.3). Les coupes géologiques obtenues pour certains sondages à la tarière montrent des schistes altérés sous les limons. Bien que probablement non aquifères, nous les avons identifiés aux craies pour les simulations. Par contre les schistes non altérés ont été considérés comme faisant partie de la couche de couverture et se sont vus attribuer les propriétés des limons. Sur la figure (III.3) on a également schématisé les parties du tracé qui sont en déblai (symboles blancs) et celles qui sont en remblai (symboles jaunes). Ainsi que, les parties où se trouvent des couches carbonifères affleurants (vers 700m et 2100m à partir du limite sud du synclinal).

Les figures (III.4) et (III.5) représentent la cartographie de la profondeur de la nappe respectivement en septembre 2000 (position basse) et en février 2001 (position haute). Il faut noter que dans cette étude le terme « nappe » représente la profondeur en dessous de laquelle le sol est saturé d'eau, que cette nappe corresponde à un aquifère ou pas. Nous avons cependant représenté sur les figures (III.4) et (III.5) par des symboles différents les niveaux relevés dans les limons (croix seule) ou dans la couche carbonifère (croix encadrée).

III.3.2- Perméabilité et propriétés de rétention des limons des plateaux

Pour simuler la migration des polluants et afin de mieux caler les coefficients de perméabilité et les propriétés de rétention de la couche de couverture sur le tracé de la future RN2, nous avons été amenés à conduire des essais de laboratoire pour la détermination de ces propriétés. Les échantillons ont été prélevés, à partir des sondages carottés effectués le long du tracé à des profondeurs de 2 à 3 m, correspondant à des limons plus ou moins sableux ou argileux suivant les cas.

III.3.2.1. Mesure de la perméabilité des limons saturés

On a mesuré en laboratoire la perméabilité à saturation du limon pour les 4 sondages SCA, SCB, SCC et SC271 en utilisant un oedomètre hydraulique de type Rowe (figures III.6.a et III.6.b), qui permet d'appliquer une contrepression, améliorant ainsi la saturation des échantillons.

L'essai est conduit à charge constante (contrôle des pressions et mesure des volumes en entrée et en sortie de l'échantillon au cours du temps). On laisse d'abord l'échantillon se saturer sous une contrainte verticale modérée (50 kPa) et une charge hydraulique d'environ 1 m (10 kPa), pendant 24 h. La contrainte verticale appliquée a été augmentée par palier pour estimer l'influence de la consolidation sur la perméabilité. Par ailleurs une contrainte plus forte améliore le contact échantillon-anneau ce qui conduit à des valeurs plus fiables. Le diamètre de l'échantillon du sol est égal à 5cm, sa hauteur est de 2cm.



Figure III.2 : Position des sondages (Référence : d'après carte RN2, liaisons Avesnes Sud-Maubeuge Sud, opération 21M59A, N° de la pièce 2-2).



Figure III.3 : Iso-valeurs des épaisseurs de couverture en cm, interpolées à partir des valeurs mesurées dans les différents sondages (Référence : d'après carte RN2, liaisons Avesnes Sud-Maubeuge Sud, opération 21M59A, N° de la pièce 2-2).



Figure III.4 : Iso-valeurs des profondeurs de la nappe en cm, interpolées à partir des valeurs mesurées grâce aux piézomètres (en jaune) en septembre 2000 (Référence : d'après carte RN2, liaisons Avesnes Sud-Maubeuge Sud, opération 21M59A, N° de la pièce 3-3).



Figure III.5 : Iso-valeurs des profondeurs de la nappe en cm, interpolées à partir des valeurs mesurées grâce aux piézomètres (en jaune) en février 2001 (Référence : d'après carte RN2, liaisons Avesnes Sud-Maubeuge Sud, opération 21M59A, N° de la pièce 3-3).

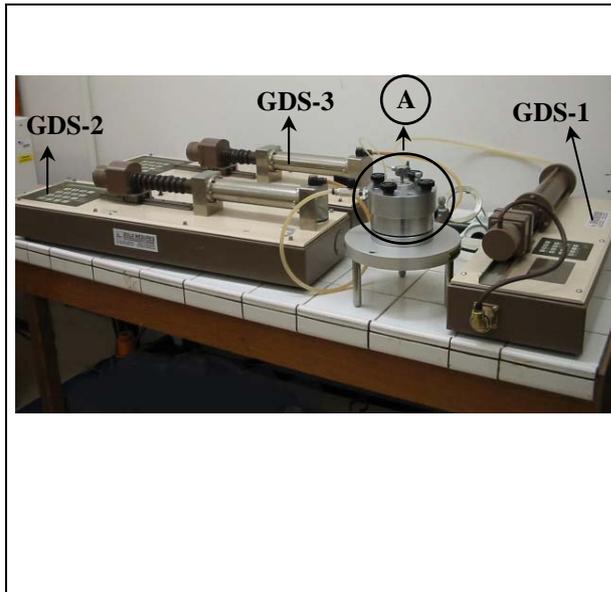


Figure III.6.a : Photo de l'œdomètre hydraulique de type Rowe.

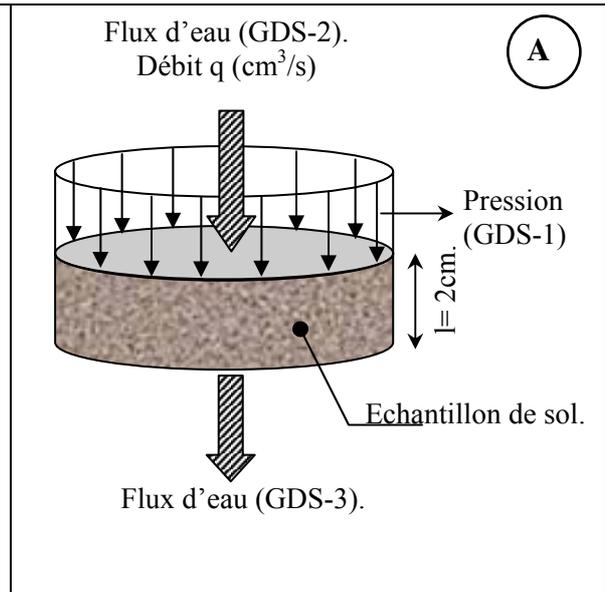


Figure III.6.b : Montage de la cellule.

Le coefficient de perméabilité est calculé en utilisant la loi de Darcy :

$$K = \frac{v}{i} \tag{III.1}$$

Avec :

- v est la vitesse de filtration sous un gradient hydraulique i (m/s),
- $i = \frac{dh}{ds}$, dh étant la perte de charge le long de l'élément d'arc ds d'une ligne de courant (différence de pression ramenée à l'unité de longueur),
- K est le coefficient de perméabilité (m/s).

Les résultats obtenus sont rassemblés dans la figure (III.7). On constate une faible influence de la contrainte appliquée. On obtient une valeur moyenne de la perméabilité pour cette profondeur de prélèvement comprise entre 10^{-10} et 2×10^{-9} m/s.

Les résultats des essais de perméabilité au laboratoire ont pu être comparés à ceux d'essais de perméabilité in situ de type Nasberg (essais Lefranc au-dessus du niveau de la nappe) réalisés par SOLEN (2002) au voisinage des sondages carottés dont provenaient les échantillons de laboratoire. Les résultats obtenus sont rassemblés dans le tableau (III.1). Les essais L1, L2, L3 et L4 ont été réalisés au voisinage immédiat des sondages SCA, SCB, SCC et SC271 respectivement.

Sondage	Nature du sol	Profondeur de l'essai (m)		Perméabilité K moyenne (m/s)
		de	à	
L1	Limon	0,90	1,90	$5,22 \times 10^{-8}$
	Argile	2,50	3,60	$8,22 \times 10^{-10}$
L2	Limon	0,90	1,90	$2,75 \times 10^{-8}$
	Limon	2,70	3,90	$2,00 \times 10^{-8}$
L3	Limon argileux	0,90	1,85	$1,78 \times 10^{-8}$
	Limon argileux	2,70	3,90	$2,75 \times 10^{-8}$
	Limon argileux	4,50	5,50	$1,03 \times 10^{-8}$
L4	Limon argileux	0,9	1,9	$3,71 \times 10^{-8}$
	Limon argileux	2,7	3,7	$6,50 \times 10^{-7}$
	Limon argileux	4,5	5,5	$4,93 \times 10^{-8}$
	Limon argileux	6	6,9	$13,23 \times 10^{-8}$

Tableau III.1 : Résultats des essais Lefranc pour les sondages L1, L2, L3 et L4 (SOLEN, 2002).

Assez classiquement, on constate des valeurs obtenues au laboratoire sont beaucoup plus faibles que celles obtenues in situ. Ceci peut être dû à la taille du volume de sol intéressé, qui est nettement plus importante pour l'essai Lefranc, et à la direction de l'écoulement pendant l'essai, qui est purement verticale pendant l'essai de laboratoire, alors que l'essai Lefranc fait intervenir des écoulements horizontaux et verticaux, plus ou moins prépondérants suivant la forme de la cavité. Or la perméabilité horizontale est toujours plus forte. Quoi qu'il en soit, nous garderons l'hypothèse la plus pessimiste, c'est à dire la perméabilité la plus forte de la couche de couverture. Elle est de l'ordre de 10^{-7} m/s pour l'ensemble des essais Lefranc réalisés

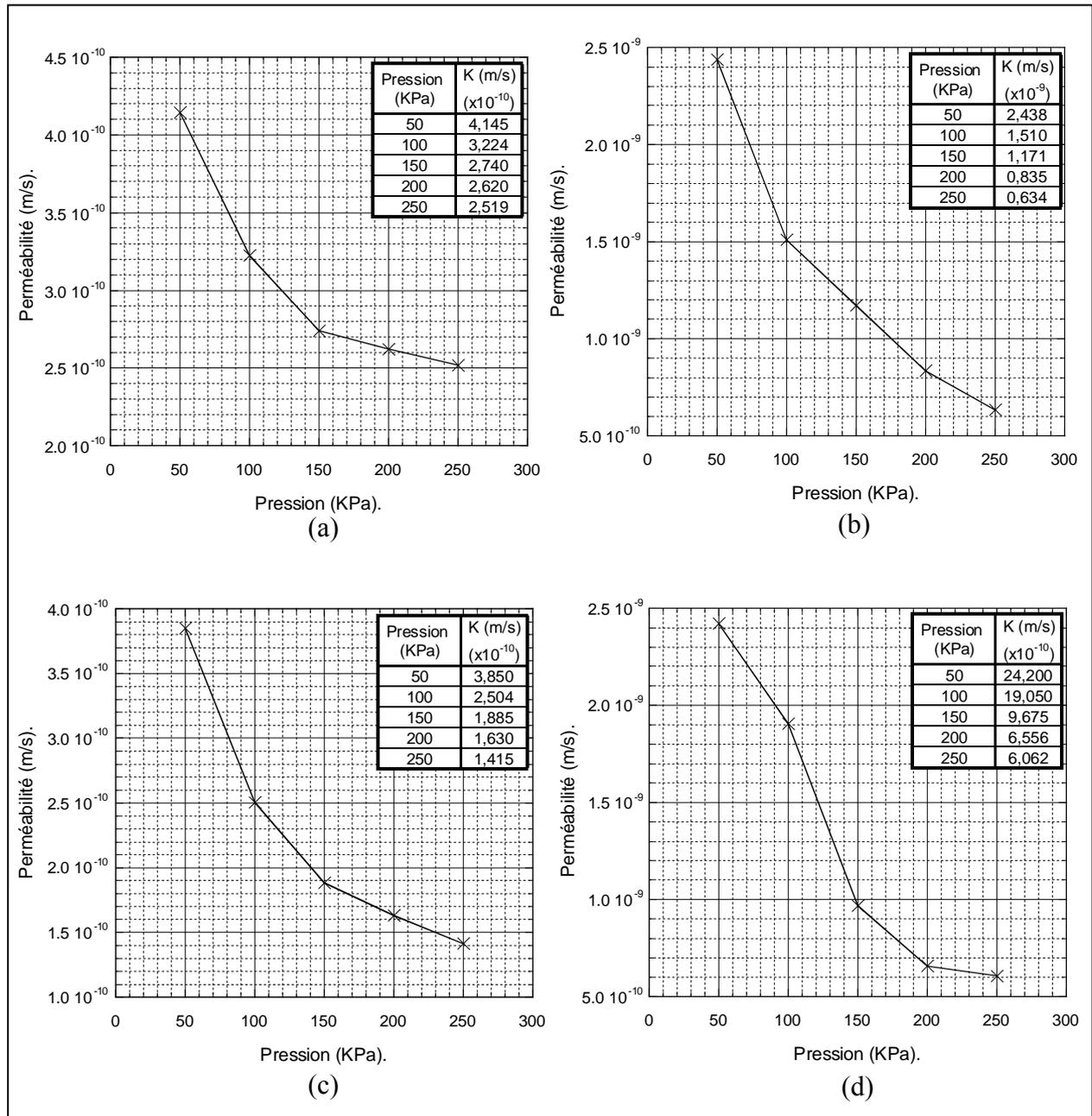


Figure III.7 : essai de perméabilité (profondeur : 2m à 3m)

(a) sondage SCA.

(c) sondage SCC.

(b) sondage SCB.

(d) sondage SC271.

III.3.2.2- Détermination expérimentale des courbes de rétention

Des essais de détermination des courbes de rétention ont été effectués au laboratoire sur les limons de couverture pour les différents sondages SCA, SCB, SCC et SC271. Deux mesures différentes ont été réalisées, utilisant deux instruments différents (oedomètre à succion contrôlée et extracteur à pression d'air). Des détails concernant la relation expérimentale teneur en eau – succion et sa modélisation par l'équation de Van Genuchten, ainsi que des indications sur les différentes techniques expérimentales existant de mesure et contrôle de succion sont donnés dans l'annexe 1.

III.3.2.2.1- Détermination expérimentale

Nous avons utilisé la méthode par surpression d'air ou translation d'axe dans le contrôle de la succion pour la détermination de la courbe de rétention. La technique de translation d'axes (surpression d'air) a été mise en œuvre par Richards (1941). Le schéma de principe du dispositif est représenté sur la figure (III.8). Il s'agit d'une cellule étanche à l'air dont la base, sur laquelle repose l'échantillon, est constituée d'une pierre poreuse céramique de fine porosité immergée dans un récipient d'eau à la pression atmosphérique.

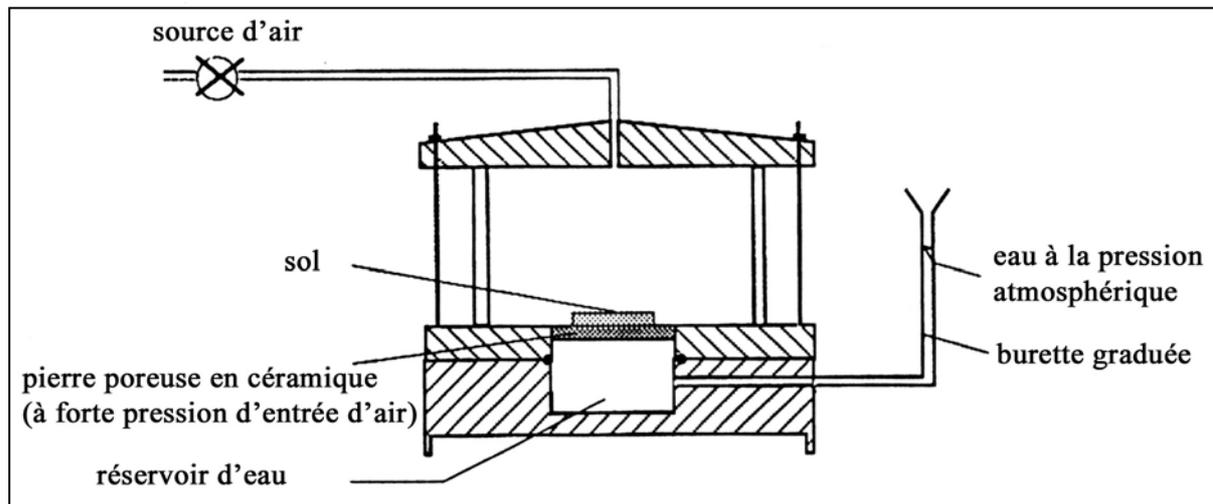


Figure III.8 : Schéma de l'appareil de Richards (Richards, 1941).

La méthode est basée sur la loi de Jurin-Laplace (équation III.2) qui permet de relier le potentiel capillaire (P_c) existant au niveau de l'interface air-eau des pores, au rayon d'un pore équivalent (figure III.9).

$$P_c = P_G - P_E = \frac{2 \times T_s \times \cos \alpha^*}{r^*} \quad (\text{III.2})$$

Où T_s : Tension superficielle de l'eau (KN/m) ;
 α^* : Angle de raccordement du ménisque ;
 r^* : Rayon du tube capillaire.

Il est nécessaire que le contact entre l'échantillon de sol à tester et l'élément poreux soit de très bonne qualité, pour faciliter la continuité de la phase liquide entre échantillon et la pierre poreuse fine. Il en résulte que la pression d'eau est maintenue nulle au sein de l'échantillon ($P_E = 0$).

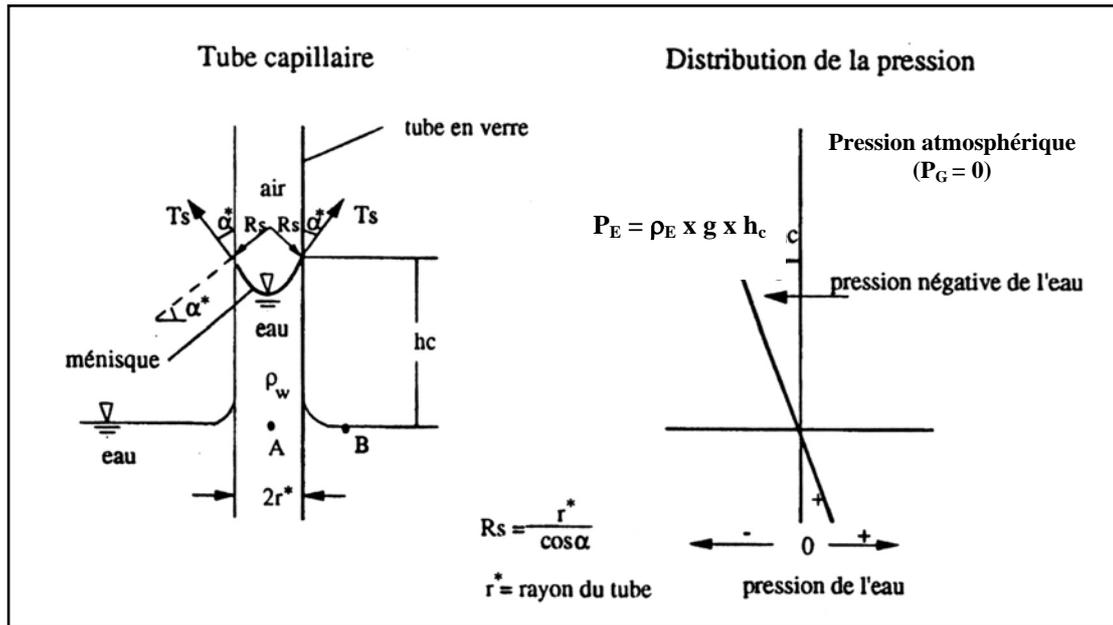


Figure III.9 : Remontée de l'eau dans un capillaire.

III.3.2.2.2- Mode opératoire

Les échantillons pour l'oedomètre à succion contrôlée sont de diamètre 5 cm et d'épaisseur 1cm (figure III.10) et d'autres échantillons de diamètre 3 cm et d'épaisseur 1cm pour l'extracteur à pression d'air (figure III.11). Pour chaque échantillon, dans les deux instruments, on détermine la teneur en eau massique initiale. Ensuite, on applique une surpression d'air, et on suit l'évolution du niveau d'eau en fonction du temps dans le tuyau. Une fois le niveau d'eau devenu stable, l'équilibre est supposé atteint. On récupère alors l'échantillon et on détermine sa teneur en eau massique et sa teneur en eau volumique. Cette opération est menée pour la détermination de la courbe de drainage.

Pour l'imbibition, on refait pratiquement la même démarche, sauf qu'on commence toujours par appliquer une pression de 6 bars sur l'échantillon jusqu'à l'équilibre. Après on baisse la pression d'une valeur p' comprise entre 6 bars et 0 bar, et on attend de nouveau que l'équilibre s'établisse. Une fois l'équilibre atteint, on détermine la teneur en eau massique et la teneur en eau volumique de l'échantillon.



Figure III.10 : Un échantillon préparé pour l'oedomètre à succion contrôlée.



Figure III.11 : Des échantillons préparés pour l'extracteur à pression d'air.

Les résultats des essais effectués sur les 4 sondages, pour les phases de drainage et d'imbibition, sont rassemblés dans les figures (III.12) et (III.13). Pour l'ajustement de nos courbes de rétention obtenues expérimentalement, nous avons opté pour l'équation de Van Genuchten (1980) (équation III.3) avec la restriction $m=1-(1/n)$.

$$\theta(\psi) = \theta_r + (\theta_s - \theta_r) \times \frac{1}{(1 + (\alpha \times \psi)^n)^m} \quad (\text{III.3})$$

L'application de l'équation à la courbe de rétention expérimentale nécessite la connaissance de la teneur en eau résiduelle ($\theta_r = 2,4\%$) et de la teneur en eau à saturation de l'échantillon. Cette dernière est également obtenue expérimentalement ($\theta_s = 36\%$).

La teneur en eau résiduelle peut être déterminée au laboratoire en mesurant la teneur en eau d'un échantillon laissé à l'air libre. Cependant, et dans la plupart des cas, cette valeur n'est pas déterminée mais peut être estimée en faisant une extrapolation des données de la courbe de rétention du côté des faibles teneurs en eau (Van Genuchten, 1980).

La teneur en eau à saturation est déterminée également au laboratoire en mesurant la teneur en eau d'un échantillon laissé saturé dans l'extracteur à pression d'air. La saturation complète de l'échantillon est assurée en comparant l'évolution de la teneur en eau de l'échantillon en fonction du temps. Lorsque la valeur de la teneur en eau de l'échantillon cesse de changer pour 3 valeurs consécutives on considère que l'échantillon est totalement saturé.

La détermination des paramètres m , n , α_D (drainage) et α_I (imbibition) est faite par ajustement. Les valeurs des paramètres de Van Genuchten pour les différents sondages sont données dans le tableau (III.2). Ces valeurs sont très proches des valeurs trouvées dans la bibliographie pour un sol limon-argileux (Carsel et Parrish, 1988 et Dana et Shahrour, 2002).

Sondages	θ_r	θ_s	Oedomètre				Extracteur à pression d'air			
			α_D (1/cm)	α_I (1/cm)	n	m	α_D (1/cm)	α_I (1/cm)	n	m
SCA	0,024	0,36	0,004	0,008	1,25	0,20	0,004	0,008	1,25	0,20
SCB	0,024	0,36	0,004	0,008	1,25	0,20	0,004	0,008	1,25	0,20
SCC	0,024	0,36	0,006	0,008	1,37	0,27	0,004	0,008	1,37	0,27
SC271	0,024	0,365	0,004	0,008	1,26	0,20	0,005	0,008	1,29	0,20

Tableau III.2 : Paramètres de Van Genuchten pour les 4 sondages mesurés par l'oedomètre et l'extracteur à pression d'air.

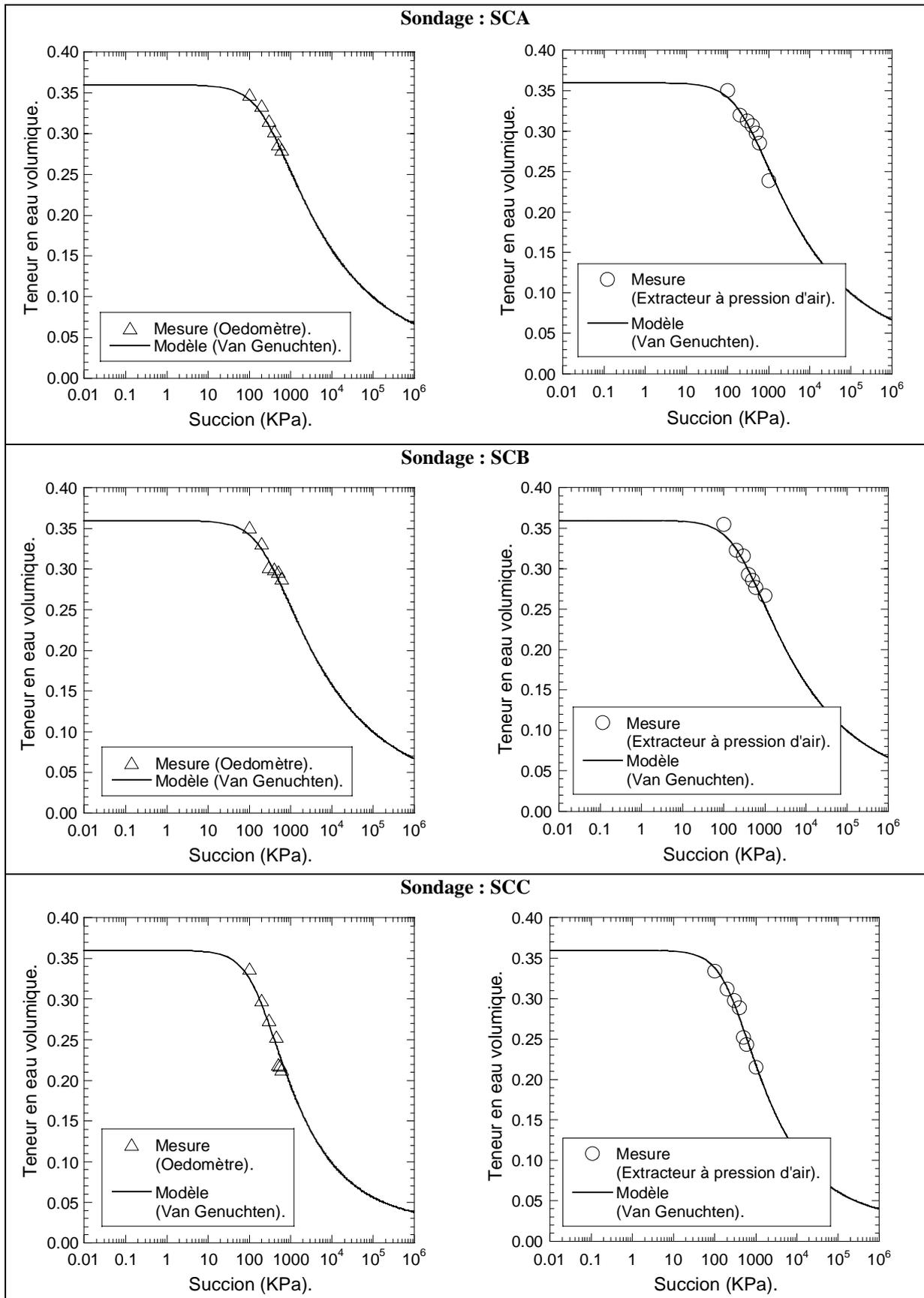


Figure III.12 : Ajustement de la courbe de rétention par le modèle de Van Genuchten pour les différents sondages (drainage).

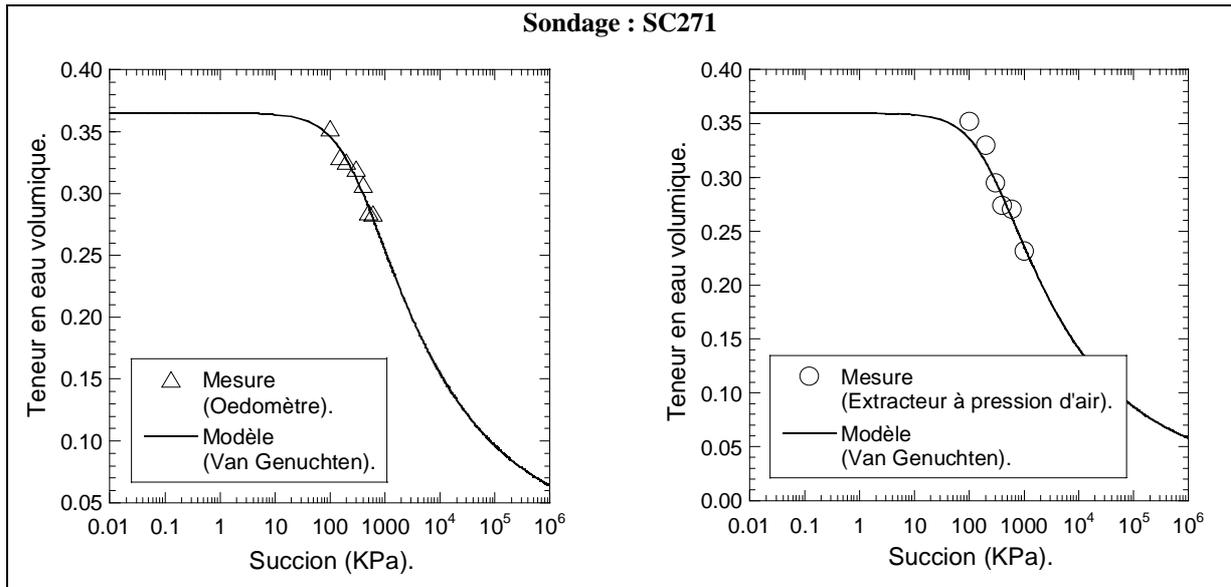


Figure III.12 (suite) : Ajustement de la courbe de rétention par le modèle de Van Genuchten pour les différents sondages (drainage).

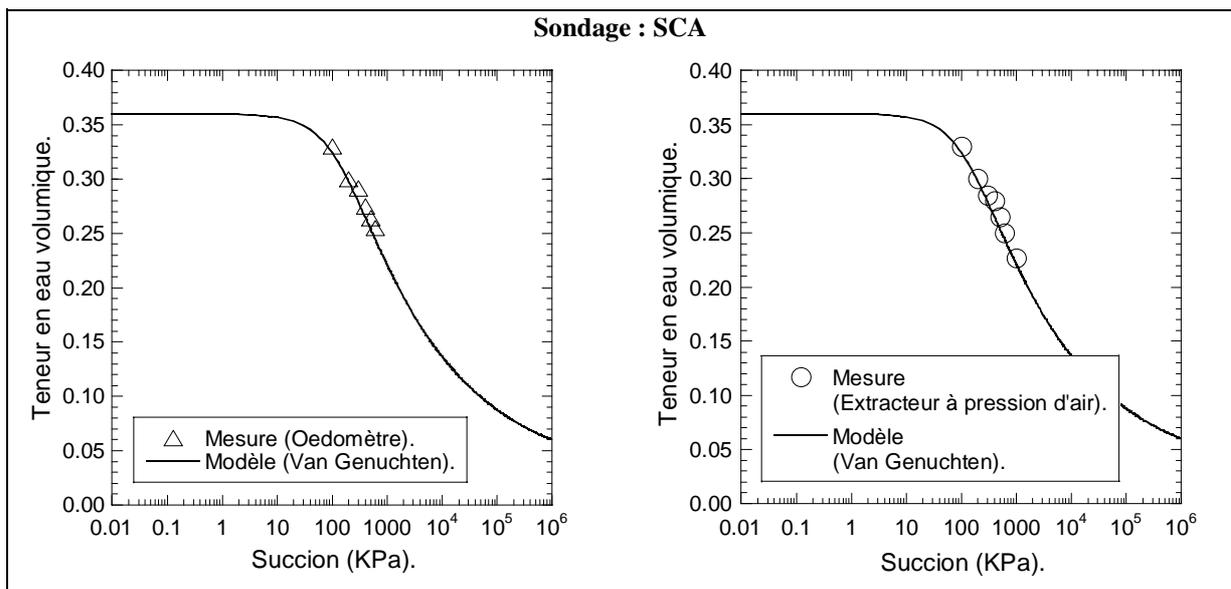


Figure III.13 : Ajustement de la courbe de rétention par le modèle de Van Genuchten pour les différents sondages (imbibition).

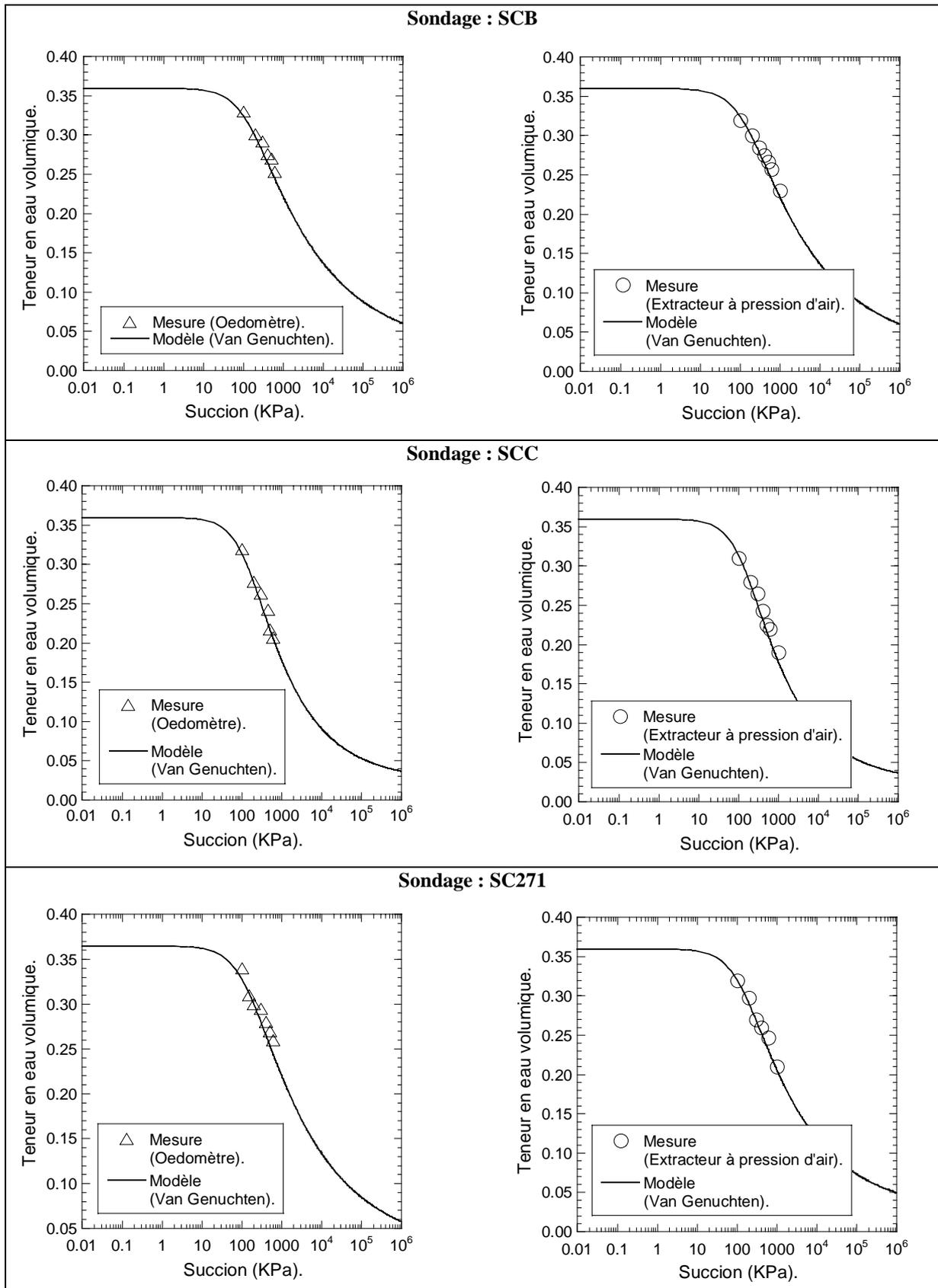


Figure III.13 (suite) : Ajustement de la courbe de rétention par le modèle de Van Genuchten pour les différents sondages (imbibition).

III.4- Conclusions

Ce chapitre a comporté une présentation du projet de notre étude. Nous avons donné les caractéristiques physiques des sols (perméabilité, rétention, ...) et les données hydrogéologiques (épaisseur de la couche de couverture de l'aquifère, profondeur de la nappe, ...). Le rassemblement des données sur la géologie et l'hydrogéologie du secteur a permis le recensement des paramètres hydrogéologiques disponibles, qui ont été cartographiés afin de visualiser les zones renseignées et la répartition spatiale des valeurs. Les mesures effectuées au laboratoire et sur le terrain ont permis de déterminer la perméabilité à saturation et les coefficients de Van Genuchten pour le sol de couverture.

Le chapitre suivant comporte une étude de l'influence de ces divers paramètres sur la migration de la pollution.

Chapitre IV : Modélisation numérique par éléments finis

IV.1- Introduction

L'objectif de ce chapitre est d'identifier les paramètres ayant un rôle prépondérant sur la migration d'un polluant de type hydrocarbure lors d'un accident routier, en effectuant une étude paramétrique à l'aide d'un logiciel aux éléments finis, choisi parmi une liste de logiciels trouvés dans la littérature, NAPL-Simulator (Guarnaccia *et al.*, 1997). L'étude inclut des paramètres physiques, des paramètres hydrogéologiques et des paramètres liés aux circonstances de l'accident. Le logiciel NAPL-Simulator utilisé pour simuler le transfert des polluants non miscibles dans la zone non saturée des sols est décrit en détail dans l'annexe 2.

IV.2- Outils de calculs

Les logiciels existants basés sur une modélisation hydromécanique des transferts sont ici brièvement présentés. Une description plus précise du logiciel utilisé dans notre étude est ensuite proposée.

IV.2.1- Les logiciels disponibles

De nombreux modèles, commerciaux ou développés dans les laboratoires de recherche, peuvent être trouvés dans la littérature. Le tableau (IV.1) en donne quelques uns, ainsi que leurs principales caractéristiques. Ces modèles sont développés dans le but de simuler les écoulements triphasiques (eau, huile et gaz) et le transport multicomposant.

Une étude a été effectuée par Bour (2003) pour tester les approches et les capacités de 4 codes multiphasiques (TOUGH2, SIMUSCOPP, UTCHEM et MOFAT) pour résoudre le cas d'une pollution par une fuite d'huile provenant d'un pipeline enterré à 1m de profondeur (Lebon et Bour, 1999). Le tableau (IV.2) donne une synthèse des résultats de Bour (2003) concernant l'utilisation des codes multiphasiques.

Une limitation générale des modèles est le manque d'information concernant la détermination expérimentale des paramètres régissant la rétention et le transport des polluants en présence des autres phases. Certains codes, tels que le logiciel NAPL-Simulator (Guarnaccia *et al.*, 1997), reposent sur des méthodes pour étendre les paramètres relatifs à des systèmes biphasiques (air-eau, eau-huile) à des systèmes triphasiques (air-eau-huile). Le paragraphe suivant propose une brève description de ce logiciel.

Modèle	Auteur/Année	Dimension du modèle	Phases modélisées	Discretisation spatiale	Zone d'étude
HSSM	USEPA (www.epa.gov)	2	3 (gaz, eau, huile)	Eléments finis	ZNS*+ZS**
MOFAT	Katyal <i>et al.</i> , 1991	2	3 (gaz, eau, huile)	Eléments finis	ZNS+ZS
TOUGH2/T2VOC	Falta <i>et al.</i> , 1995	3	3 (gaz, eau, huile)	Différences finies	ZNS+ZS
SIMUSCOPP	IFP (Institut Français du Pétrole). (www.ifp.fr).	3	3 (gaz, eau, huile)	Volumes finis	ZNS+ZS
UTCHEM	USEPA (www.epa.gov)	3	4 (gaz, eau, huile, microémulsion)	Différences finies	ZS
NAPL-Simulator	Guarnaccia <i>et al.</i> , (1997)	3	3 (gaz, eau, huile)	Eléments finis	ZNS

* ZNS : Zone non saturée.

** ZS : Zone saturée.

Tableau IV.1 : Principales caractéristiques des différents modèles trouvés dans la littérature.

Code utilisé	Composé non miscibles légers (mélange ou benzène)	Composé non miscibles lourds (naphtalène)
Code 1D	HSSM : modèle des screening bien adapté aux composés légers, surestimation des concentrations en nappe par rapport aux données du cas-type 1 conforme à l'utilisation du modèle.	Non utilisable. Nota : le module KOPT de HSSM non spécifique aux composés légers n'a pas été étudié pour les composés lourds.
Code 2D	MOFAT : phases d'injection en ZNS reproduite, problèmes numériques rencontrés dans les phases suivantes lors du cas-type1*.	Non testé pour les composés lourds.
Code 3D	UTCHEM/GMS3.1 : interface non complète (pas de ZNS), difficultés numériques*.	UTCHEM/GMS3.1 : résultats obtenus pour l'ensemble des phases, certaines difficultés numériques*.
	TOUGH2/T2VOC v2.0 : Résultats obtenus pour l'ensemble des phases, certaines difficultés numériques*.	TOUGH2/T2VOC v2.0 : Résultats obtenus pour l'ensemble des phases, certaines difficultés numériques*.
	SIMUSCOPP : Résultats obtenus pour l'ensemble des phases.	SIMUSCOPP : Résultats obtenus pour l'ensemble des phases.

* L'appréciation des difficultés numériques est relativement délicate-elle découle de nombreux paramètres (composé étudié, maillage, ...) elle permet seulement d'avertir les utilisateurs potentiels des difficultés rencontrées lors de l'exercice d'intercomparaison TRANSPOL.

Tableau IV.2 : Synthèse concernant l'utilisation des codes multiphasiques (Bour, 2003).

IV.2.2- Un exemple de code de calcul : NAPL-Simulator

Dans notre étude la modélisation numérique est réalisée grâce au code de calcul NAPL-Simulator, développé pour l'USEPA par Guarnaccia *et al.* (1997). Ce code permet de simuler la migration d'un polluant non-miscible en 1D, 2D ou 3D. Le sol y est considéré indéformable, hétérogène et isotrope. Les phases fluides sont également considérées comme incompressibles.

Le modèle NAPL-Simulator (voir annexe 2) prend en compte trois processus physiques :

- l'écoulement polyphasique (infiltration),
- les transferts de masse inter-phasiques (dissolution, volatilisation et adsorption),
- le transport de masse (convection, dispersion mécanique et diffusion moléculaire).

Ces trois processus de migration sont reliés de façon non linéaire puisque la vitesse des phases et le transfert de masse sont fonction du degré de saturation, et que les propriétés des phases fluides sont fonction de leur composition chimique.

La technique de résolution utilisée dans le programme NAPL-Simulator est basée sur la méthode des éléments finis avec un schéma implicite en temps. Le domaine est discrétisé en un nombre fini de mailles (rectangulaires) avec des nœuds situés à l'intersection de frontières d'élément. Tous les paramètres variables en espace sont représentés par une combinaison linéaire des fonctions de base où les valeurs nodales peuvent être interpolées dans les éléments adjacents d'une façon continue. Ces paramètres incluent les variables dépendantes, les fonctions des variables dépendantes, les propriétés du sol et d'autres constantes physiques qui sont permises de changer dans l'espace.

Le modèle mathématique se compose de deux composants principaux : les équations d'équilibre de masse gouvernant la variabilité spatiale et temporelle des variables primaires, et les équations constitutives qui définissent la relation entre les variables primaires et secondaires.

Les équations d'équilibre décrivent la conservation de la masse de chaque phase (fluide et solide) et de chaque constituant dans une phase particulière. Une équation d'équilibre de masse peut être générée pour chaque phase et chaque constituant. Chaque équation se compose de termes qui définissent les divers composants du transport de masse à l'échelle macroscopique : accumulation, advection, dispersion, sources et puits, et transfert de masse entre les phases. Chaque terme est ensuite défini par un ensemble de paramètres qui quantifie la physique du processus de transport pour un système physique particulier.

Afin de résoudre les équations résultantes d'équilibre, celles-ci doivent être augmentées d'un ensemble de *relations constitutives* qui relient les variables primaires et secondaires. Ces relations constitutives sont séparées en quatre catégories :

- 1) Celles qui définissent les propriétés des fluides : densité, compressibilité et viscosité ;
- 2) Celles qui définissent le flux du fluide ou l'advection ;
- 3) Celles qui définissent le transport non advectif des espèces, à savoir la dispersion et la diffusion ;
- 4) Celles qui définissent les échanges de masse inter-phasiques.

Lors de l'infiltration du polluant dans le domaine poreux, certaines zones de ce dernier vont initialement assister à une accumulation d'une phase donnée, au cours du temps cette phase sera déplacée par une autre. Il en ressort que la direction du déplacement peut être inversée de nombreuses fois de suite. Selon la direction du déplacement vont varier les quantités piégées (immobiles) des phases fluides et la distribution, dans l'espace, de ces phases. Ceci conduit à des perméabilités relatives et à des courbes de pression capillaire (fonctions reliant la pression capillaire et le degré de saturation) différentes conformément à l'histoire de saturation (phénomène d'hystérésis, Miller *et al.* (1998), Oostrom et Lenhard (1998)).

Un sous-modèle perméabilité relative-saturation-pression capillaire est donc incorporé dans le modèle afin d'extrapoler les courbes de pression capillaire biphasiques pour la prédiction des perméabilités relatives polyphasiques et afin de tenir compte du piégeage des phases, fractions immobiles et phénomènes d'hystérésis.

Une description détaillée du modèle NAPL-Simulator est donnée dans l'annexe 2.

IV.3- Exemple de référence

Le problème de référence concerne la migration du trichloroéthylène (ou TCE) dans un sol bicouche limon-craie fréquemment rencontré dans le nord de la France. A titre d'exemple, on a adopté le profil correspondant au piézomètre PZ13 (figure IV.1). A partir de la surface du sol, on rencontre une couverture composée de limons et sables fins silteux d'épaisseur $H_c = 4,5\text{m}$, ensuite une couche de craie qui constitue le réservoir de la nappe. La profondeur de la nappe (P_N) est prise à 2m de la surface du sol. Les propriétés des sols et des fluides sont données dans le tableau (IV.3). Les courbes de pression capillaire des sols rencontrés (couverture et craie) sont données en figure (IV.2).

Il est à noter que les paramètres choisis dans cet exemple sont très favorables au transfert, notamment la perméabilité intrinsèque de la couverture, qui est supérieure à la perméabilité intrinsèque moyenne trouvées pour ce type de sol (de 10^{-14} à 10^{-15} m^2). Les paramètres de l'équation de Van Genuchten (1980) de la couche de couverture utilisés dans les simulations sont celles trouvés expérimentalement (voir chapitre III).

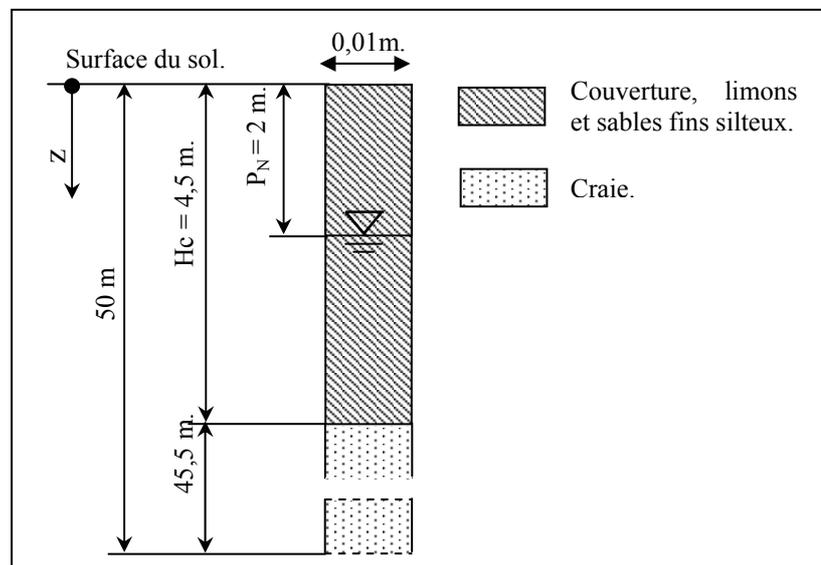


Figure IV.1 : Exemple de référence, Profil de sol.

Propriétés des fluides			
Eau		Polluant (TCE)	Air
$\rho^E = 998,2 \text{ Kg/m}^3$		$\rho^P = 1456 \text{ Kg/m}^3$	$\rho^G = 1,14 \text{ Kg/m}^3$
$\mu^E = 0,001 \text{ Kg/m/s}$		$\mu^P = 0,000556 \text{ Kg/m/s}$	$\mu^G = 0,00002 \text{ Kg/m/s}$
$\sigma_{GE} = 7275 \text{ dynes/m}$		$\sigma_{PE} = 3174 \text{ dynes/m}$	$\sigma_{GP} = 4750 \text{ dynes/m}$
Propriétés du sol			
Sol	Porosité	Perméabilité intrinsèque (m ²)	Masse volumique apparente (Kg/m ³)
Couverture (limon)	0,36	1×10^{-13}	1760
Craie	0,42	1×10^{-12}	1600
Courbes de rétention			
Saturations résiduelles.			
S_{WR} (saturation résiduelle en eau)	S_{GR} (saturation résiduelle en gaz)	$^a S_{NNWR}$	$^a S_{NWR}$
0,068	0,02	0,16	0,12
Paramètres de l'équation de van Genuchten (1980)			
Type de sol	$^b a_D$ (cm ⁻¹)	$^b a_I$ (cm ⁻¹)	n
Couverture	0,004	0,008	1,25
Craie	0,02	0,04	1,30

^a S_{NNWR} et S_{NWR} sont, respectivement, saturation résiduelle pour la phase polluant comme phase non-mouillant (avec l'eau) ou phase mouillante (avec l'air).

^b D pour drainage et I pour imbibition.

Tableau IV.3 : Propriétés hydrodynamiques retenues pour l'exemple traité (INERIS, 2003 ; Dana et Shahrour, 2002).

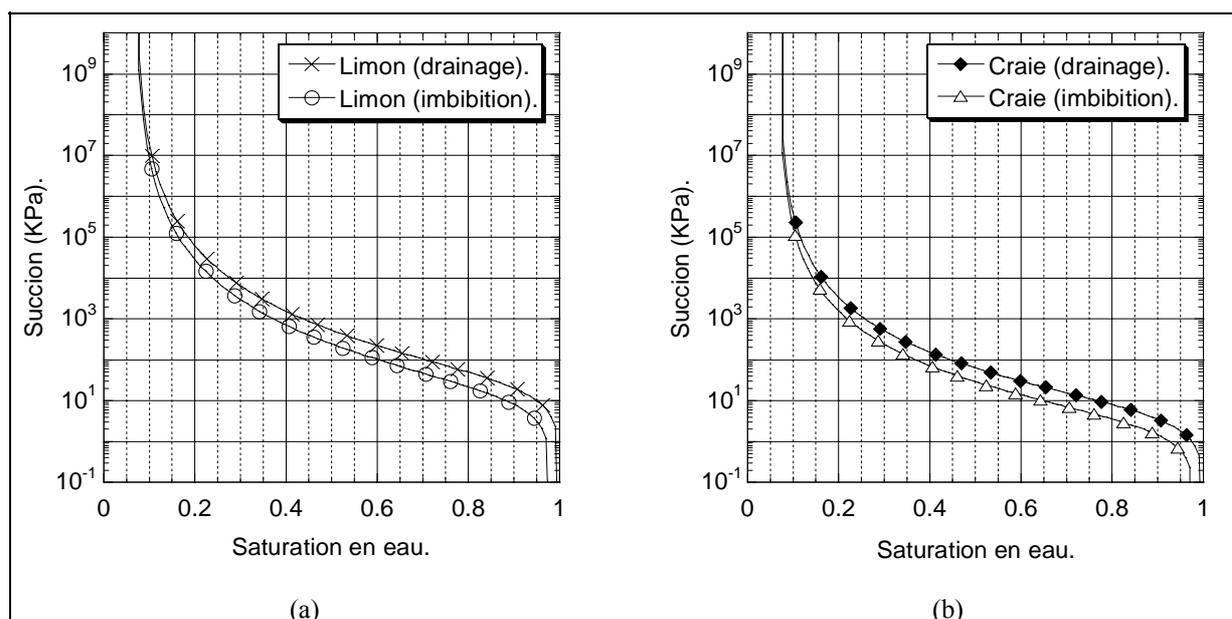


Figure IV.2 : Curves de rétention utilisées dans l'exemple de référence.

(a) Couverture (limon).

(b) Craie.

IV.4- Discrétisation du domaine et phases de calcul

Le logiciel NAPL-Simulator (Guarnaccia *et al.*, 1997) est basé sur la méthode des éléments finis. Le domaine est modélisé comme système unidimensionnel dans le sens du transfert vertical du polluant en profondeur (suivant l'axe z). Le domaine est discrétisé en nombre fini de mailles rectangulaires avec des nœuds situés à l'intersection de frontières d'élément. La longueur des mailles est fixée à 1cm alors que la largeur des mailles (suivant l'axe z) varie de 5cm jusqu'à 100 cm selon la profondeur du sol (tableau IV.4).

Epaisseur du sol (m)	Largeur des mailles (cm)	Nombres de mailles
De $z = 0$ à $z = 6$ m	5	120
De $z = 6$ m à $z = 8$ m	10	20
De $z = 8$ m à $z = 12$ m	20	20
De $z = 12$ m à $z = 25$ m	50	26
De $z = 25$ m à $z = 50$ m	100	25

Tableau IV.4: Différents types de maillage du modèle.

Les simulations sont réalisées en trois phases :

- 1) La première phase consiste à déterminer le profil de saturation initiale en eau qui est conditionné par le niveau de la nappe et les courbes de rétention des sols. La colonne de sol est initialement considérée comme saturée en eau. Puis, on laisse l'eau dans la colonne de sol s'infiltrer sous les forces de gravité et capillaires durant un temps suffisant pour qu'il n'y ait plus de variations au niveau du profil de saturation initiale en eau calculé par le logiciel (≈ 30 ans).
- 2) La deuxième phase concerne le rejet du polluant, qui est simulé par l'application d'une charge constante de polluant à la surface du sol ($e=5\text{cm}$) pendant un certain laps de temps ($t = t_c = 7$ jours pour l'exemple de référence). Durant cette phase, le calcul est effectué sur la colonne de sol ayant comme profil de saturation initial en eau celui calculé par la première phase.
- 3) La troisième phase correspond à l'infiltration et à la redistribution du polluant sous les forces de gravité et capillaires. Dans cette phase, le profil de saturation en polluant dans le sol est calculé suivant un pas de temps d'un jour durant le premier mois et un pas de temps d'un mois durant 5 ans (temps suffisant pour atteindre la stabilité du profil de saturation en polluant dans le sol).

La description de ces trois phases avec les conditions initiales et aux limites est présentée sur la figure (IV.3).

A l'issue de chaque simulation, on trace le profil de saturation en polluant pur au cours du temps c'est à dire que l'on donne en tout point du domaine le pourcentage de vide occupé par le polluant pour des temps choisis. On notera que le seuil de contamination du trichloroéthylène est fixé à zéro puisque la saturation maximale admissible du polluant ($6,868 \times 10^{-9}$, calculée à partir du tableau II.6) est bien inférieure à la plus petite valeur de la saturation calculée par le logiciel, soit 10^{-6} .

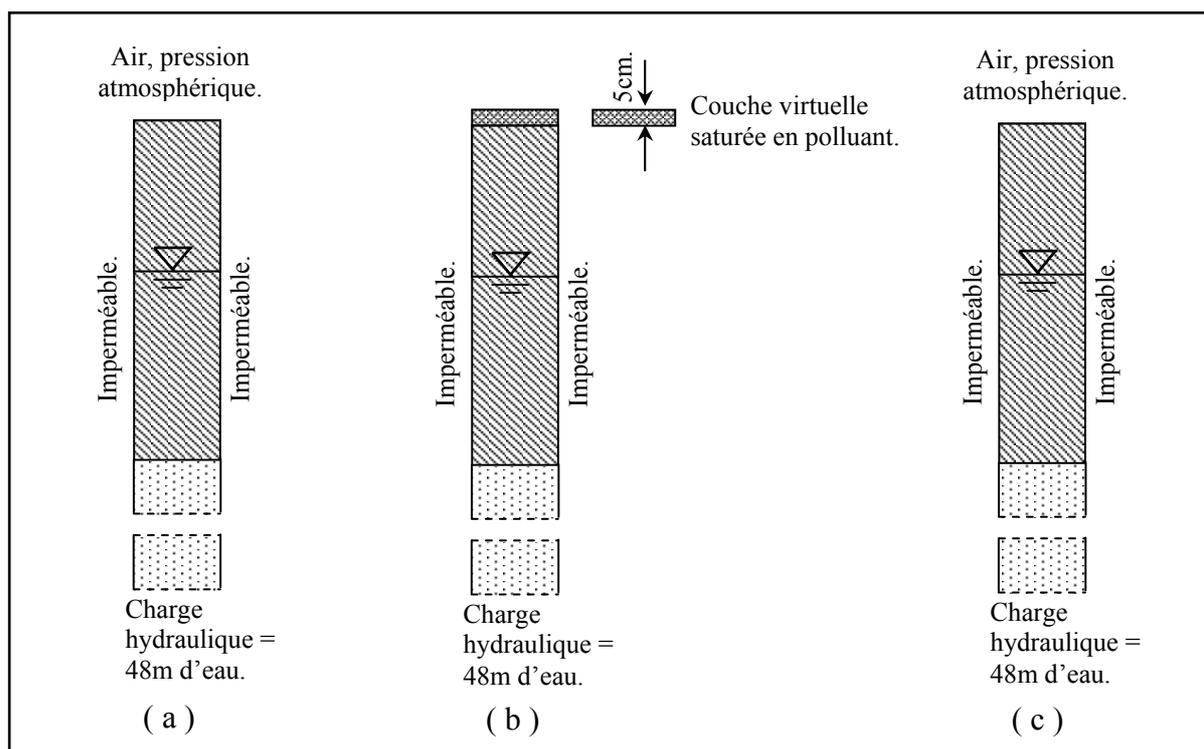


Figure IV.3 : Etapes de simulation et conditions initiales et aux limites.

- (a) Drainage de la colonne poreuse.
- (b) Simulation d'un rejet accidentel moyennant une couche virtuelle.
- (c) Migration du polluant sous les forces de gravité et capillaires.

IV.5- Résultats

La figure (IV.4.a) illustre le profil de saturation initiale en eau. La figure (IV.4.b) donne le profil de saturation en polluant à la fin de la 2^{ème} phase (phase de contact du polluant avec la surface du sol, $t_c = 7$ jours) ainsi que pour deux autres durées de simulation (37 jours et 127 jours) correspondant à la troisième phase (phase de migration du polluant sous les forces de gravité et capillaires). Notons que l'origine du temps t utilisé dans les graphiques ci dessous est le début de l'injection de polluant à la surface du sol. Durant la deuxième phase, la quantité du polluant injectée Q est de $1,988 \text{ cm}^3$. Le polluant s'infiltre dans le sol jusqu'à ce qu'il atteigne une profondeur de 0,95m à la fin de la deuxième phase. Ensuite, la fraction mobile du polluant continue sa migration sous les forces de gravités et capillaires. A 127 jours le front est stabilisé.

On note une accumulation du polluant à la surface de la nappe (figure IV.4.b). En effet la rétention capillaire de l'eau opposée au TCE libre doit être surmontée par une pression, appelée la pression capillaire d'entrée, correspondant à une certaine épaisseur d'accumulation, qui n'a pas été atteinte ici (Goody *et al.*, 2002, Domenico et Schwartz, 1998, Schwill, 1988). Le seuil de la pression capillaire d'entrée d'un milieu poreux dépend du diamètre moyen des grains du milieu poreux. D'après Domenico et Schwartz (1998), pour un sol limoneux de diamètre moyen des grains de 0,063mm, la pression capillaire d'entrée est égale à 6,3 kPa (soit une hauteur équivalente de TCE de 0,43m). La figure (IV.4.c) donne l'évolution de la profondeur de la zone contaminée (D) (profondeur maximale pour laquelle la saturation calculée de polluant est non nulle) en fonction du temps. On remarque qu'à partir de 45 jours il n'y a plus d'évolution notable dans la profondeur de la zone contaminée, qui se stabilise à une profondeur de 2m.

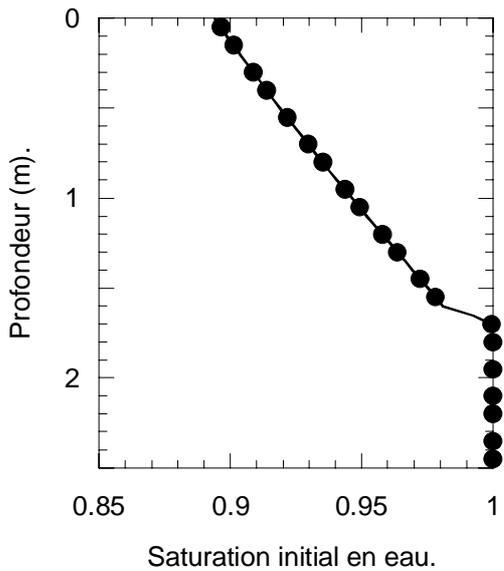


Figure IV.4.a : Exemple de référence, profil initial de saturation en eau.

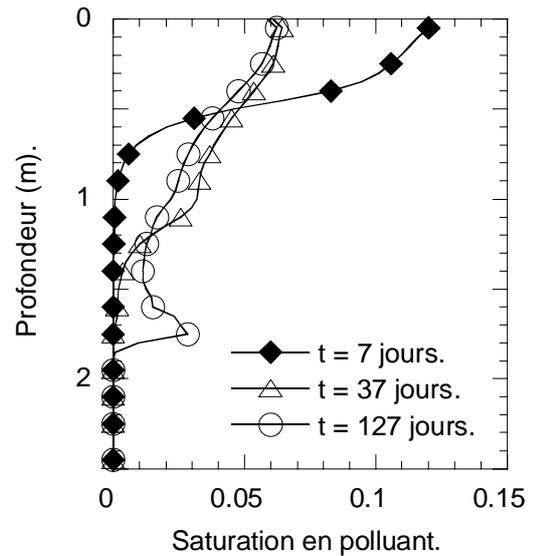


Figure IV.4.b : Exemple de référence, profil de saturation en polluant en fonction du temps.

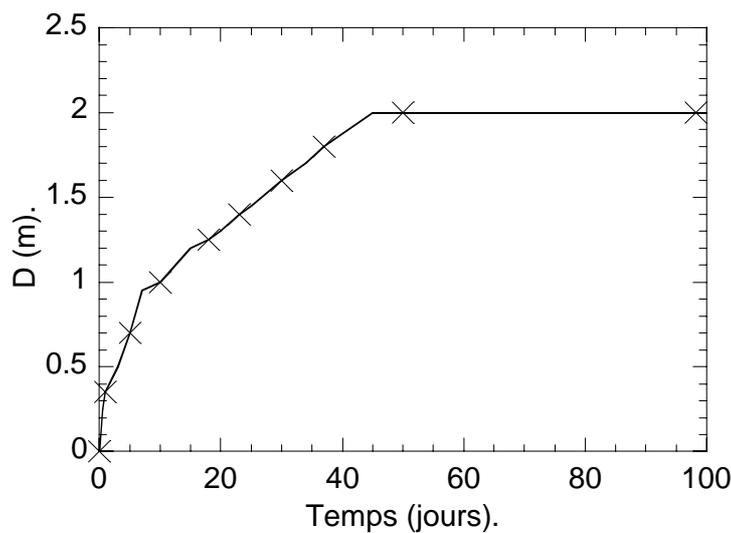


Figure IV.4.c : Exemple de référence, évolution de la profondeur de la zone contaminée en fonction du temps.

IV.6- Etude paramétrique

L'étude paramétrique vise globalement à guider les choix concernant les scénarios de pollution à prendre en considération, et à estimer l'impact des inexactitudes ou des erreurs de détermination de certains paramètres sur la migration du polluant. Dans notre étude, elle a permis de dégager les paramètres prépondérants, pris ensuite comme variables d'entrée des modèles de simulation par réseaux de neurones.

Nous présentons ci-après les résultats de cette étude pour les paramètres ayant un effet sur la migration du polluant. Ce sont des paramètres (i) physiques (perméabilité intrinsèque de la

couverture (k), courbes de rétention et nature du polluant), (ii) hydrogéologiques (épaisseur de la couverture H_c , profondeur de la nappe P_N) et (iii) liés aux circonstances de l'accident (temps de contact du polluant à la surface du sol t_c , nature du polluant et occurrence d'un événement pluvieux).

IV.6.1- Paramètres physiques

IV.6.1.1- Perméabilité intrinsèque k de la couche de couverture

Nous donnons sur la figure (IV.5.a) les résultats obtenus pour 3 cas de perméabilité intrinsèque de la couche de couverture : cas de référence ($k = 10^{-13} \text{ m}^2$), et perméabilités 10 et 100 fois plus faibles que pour le cas de référence. La perméabilité intrinsèque de l'aquifère crayeux est prise égale à 10^{-12} m^2 . On note que la perméabilité de la couche de couverture affecte d'une manière importante la migration du polluant. La réduction de cette perméabilité a pour effet de réduire la quantité du polluant Q infiltrée dans le sol (tableau IV.5). On constate sur la figure (IV.5.a) que la saturation résiduelle S_{NWR} (voir tableau IV.3) est atteinte à la surface du sol pour les deux profils (k) et ($k/10$). La profondeur de la zone contaminée décroît donc avec la diminution de la perméabilité (figure IV.5.b).

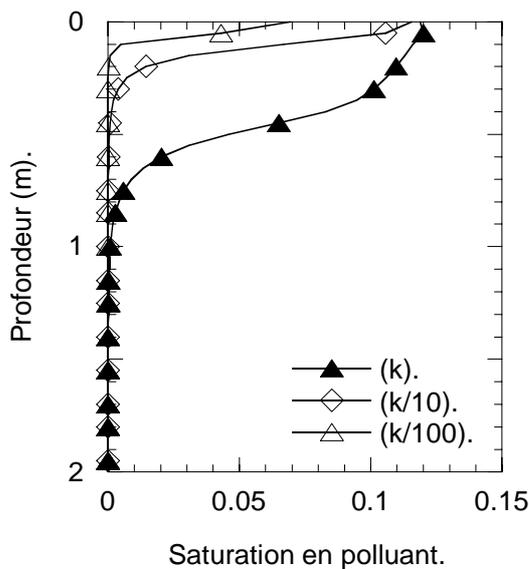


Figure IV.5.a : Influence de la perméabilité sur la migration du polluant durant la phase d'injection (contact polluant-surface du sol $t_c = 7$ jours).

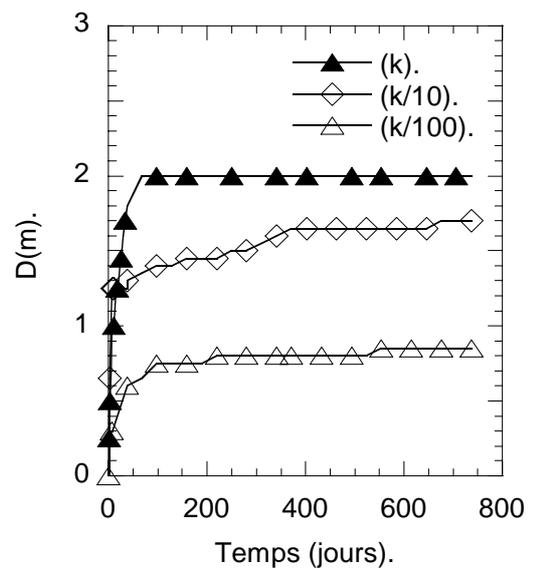


Figure IV.5.b : Evolution de la profondeur de la zone contaminée.

Cas de perméabilité	$Q \text{ (cm}^3\text{)}$
Cas de référence (k)	1,988
($k/10$)	0,523
($k/100$)	0,15

Tableau IV.5 : Valeurs de Q pour 3 différents cas de perméabilité.

On doit en conclure qu'une bonne prévision du temps de transfert du polluant repose sur une bonne connaissance de la perméabilité du terrain, ce qui exige des campagnes de reconnaissance in situ et des essais de laboratoire.

IV.6.1.2- Influence des paramètres de capillarité de la couche de couverture

Le temps de transfert étant principalement lié aux propriétés de la couche de couverture, on se limite à l'influence de la capillarité dans cette couche. Un calcul a été effectué avec une capacité de rétention moins forte pour la couche de couverture identique à celle de la craie, et donc inférieure à celle de référence (tableau IV.3). L'influence de cette réduction de capillarité de la couche de couverture sur l'infiltration du polluant (pour $t_c = 7$ jours) est donnée sur la figure (IV.6.a).

On note qu'une réduction de la capacité de rétention induit un important ralentissement dans la migration du polluant. Par ailleurs, la quantité de polluant infiltrée passe de $1,988 \text{ cm}^3$ à $1,773 \text{ cm}^3$. L'influence sur l'évolution de la profondeur de la zone contaminée est donnée sur la figure (IV.6.b). On remarque que le front de pollution se stabilise à une profondeur inférieure à celle de la nappe. Il convient de noter qu'assigner une nouvelle pression capillaire induit un changement de perméabilité relative, calculée ici d'après le modèle de Mualem (Mualem, 1976).

Ces résultats montrent que la capillarité de la couche de couverture, au travers des paramètres de Van Genuchten, constitue un des principaux facteurs régissant le transfert de ce type de pollution. Par conséquent, pour une meilleure prévision de la migration du transfert de polluant, les paramètres de Van Genuchten de la couche de la couverture doivent être correctement connus.

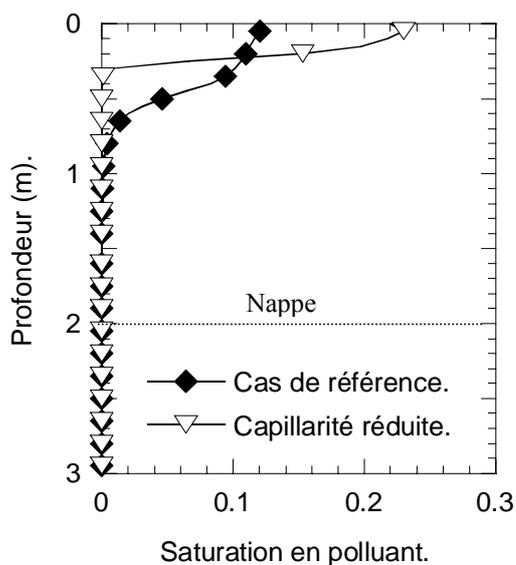


Figure IV.6.a : Influence de la capillarité de la couche de couverture sur le profil de saturation en polluant ($t = 7$ jours).

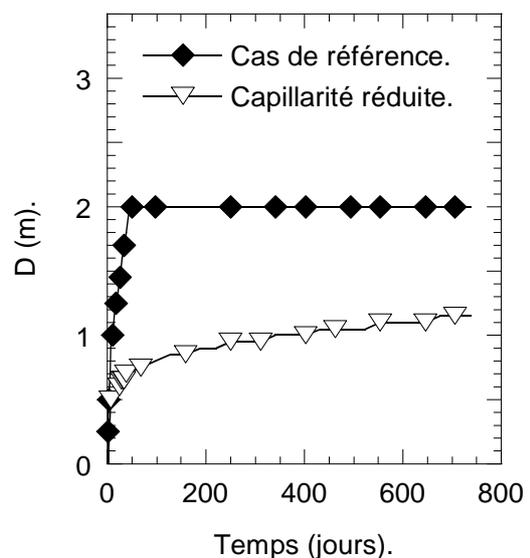


Figure IV.6.b : Evolution de la profondeur de la zone contaminée en fonction du temps.

IV.6.2- Paramètres hydrogéologiques

IV.6.2.1- Epaisseur de la couche de couverture H_c

Les figures (IV.8.a) et (IV.8.b) donnent les résultats des simulations pour deux épaisseurs de la couche de couverture (cas de référence $H_c = 4,5 \text{ m}$ puis $H_c = 1 \text{ m}$) (figure IV.7). L'épaisseur de la couche de couverture affecte fortement le temps de transfert de polluant. Lorsque l'épaisseur de la couche de couverture diminue de $4,5 \text{ m}$ à 1 m la quantité de polluant infiltrée croît de $1,988 \text{ cm}^3$ à $3,985 \text{ cm}^3$. Il faut noter sur la figure (IV.8.b) que l'infiltration se poursuit

sous la surface de la nappe (2 m), dont le niveau se situe alors dans la craie. Ceci est dû au fait que la pression d'entrée du polluant dans la craie saturée d'eau est inférieure à sa pression d'entrée dans le limon de couverture. Elle est donc vaincue dans la craie, et pas dans le limon (cas de référence).

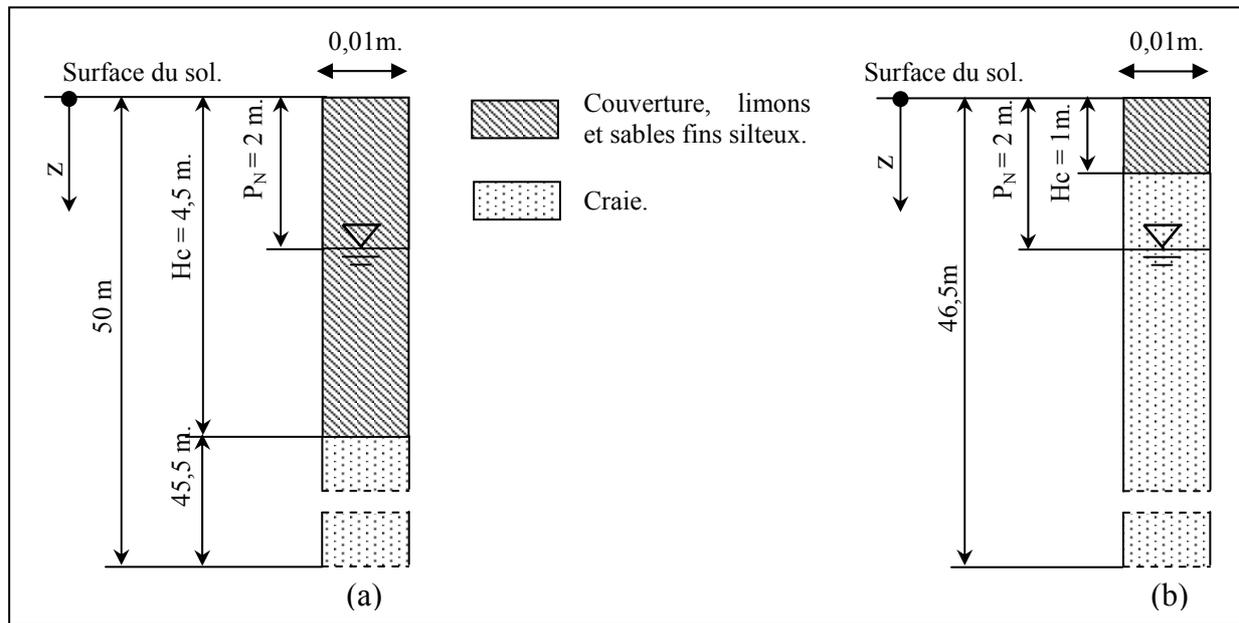


Figure IV.7 : Profil du sol.

(a) Exemple de référence ($H_c=4,5m$).

(b) $H_c = 1m$.

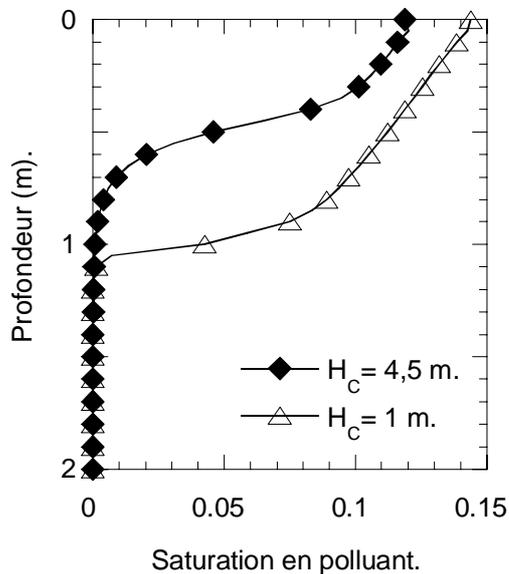


Figure IV.8.a : Influence de l'épaisseur de la couverture sur la migration du polluant (phase d'injection) pour 7 jours de temps de contact polluant-surface du sol.

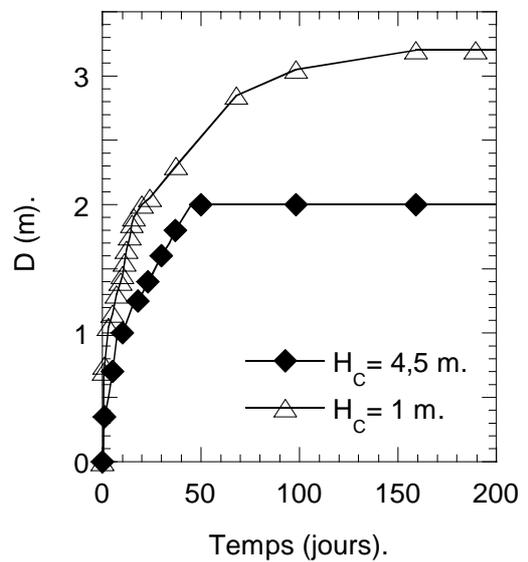


Figure IV.8.b : Evolution de la profondeur de la zone contaminée en fonction du temps.

IV.6.2.2- Influence de la profondeur de la nappe P_N

Plusieurs simulations ont été effectuées en faisant varier la profondeur de la nappe P_N (2m pour le cas de référence). La remontée de la nappe a pour effet de ralentir la migration du polluant durant la phase d'injection et la phase de migration du polluant (figure IV.9.a). La quantité du polluant infiltrée en fonction du temps de contact pour les différents cas est donnée sur la figure (IV.9.b) : la remontée de la nappe a globalement pour effet de diminuer la quantité de polluant infiltrée Q . Par ailleurs, on voit que l'effet du temps de contact, qui est globalement d'augmenter Q , est amplifié pour des nappes plus basses : les forces capillaires, plus importantes, entraînent puis piègent plus de polluant dans la partie non saturée du sol. Ainsi, lorsque la nappe se trouve à la surface du sol ($P_N = 0$ m), la quantité de polluant infiltrée est très faible, indépendamment du temps de contact t_c . De même, on constate que le front de pollution pénètre d'autant plus profondément dans le sol pour un temps de contact donné, que la nappe est plus basse (figure IV.9.c).

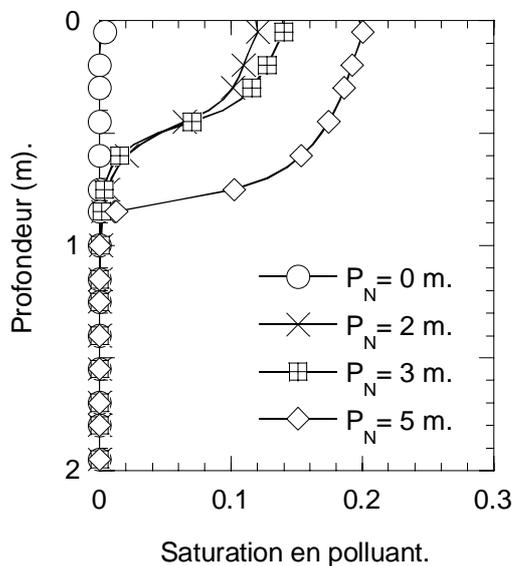


Figure IV.9.a : Influence de la profondeur de la nappe sur la migration du polluant (phase d'injection) pour un temps de contact de 7 jours.

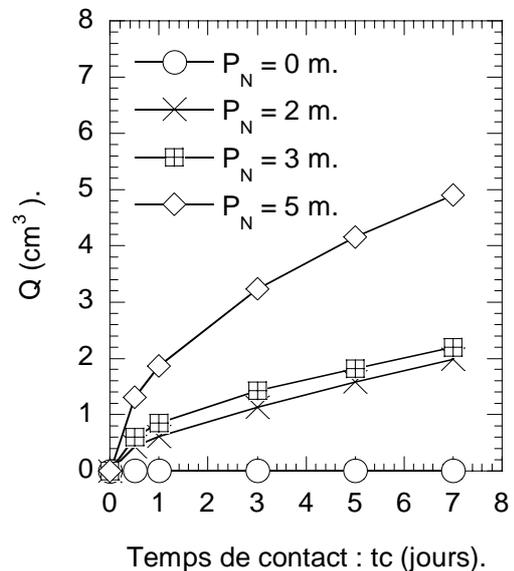


Figure IV.9.b : Influence de la profondeur de la nappe sur la quantité du polluant infiltrée.

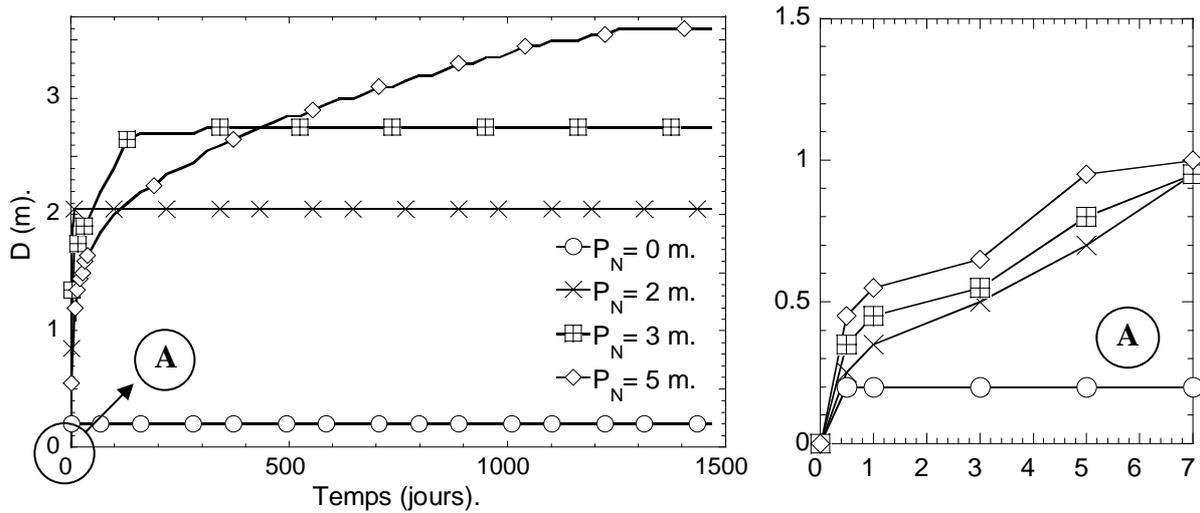


Figure IV.9.c : Influence de la profondeur de la nappe sur la profondeur de la zone contaminée ($t_c = 7$ jours).

IV.6.3- Paramètres liés aux circonstances de l'accident

IV.6.3.1- Influence du temps de contact polluant-surface du sol

La distribution de TCE à la fin de la phase d'injection est donnée sur la figure (IV.10.a) pour 5 valeurs différentes de t_c : le profil de saturation en polluant dépend fortement du temps de contact sol-polluant. La figure (IV.10.b) illustre l'évolution de la profondeur de la zone contaminée en fonction du temps pour les mêmes valeurs de t_c : pour des périodes d'infiltration faibles, la migration ultérieure est plus lente et le front de contamination se stabilise au dessus de la nappe. Par contre, si t_c est élevé la nappe est atteinte rapidement (mais le TCE ne franchit pas la barrière capillaire si le toit de la nappe est dans les limons, cf § IV.6.2.1).

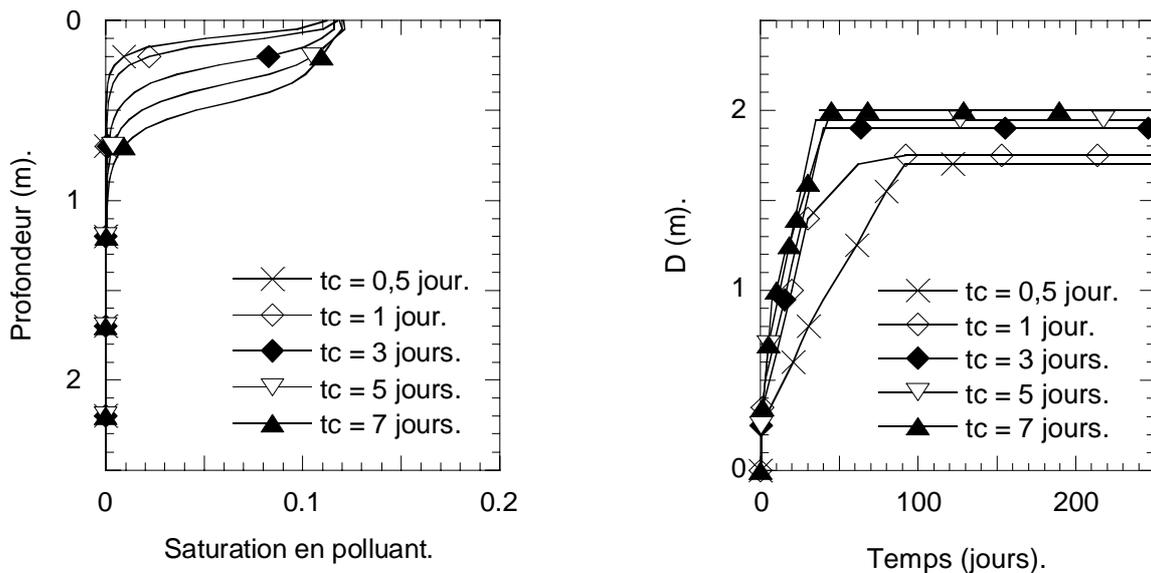


Figure IV.10.a : Influence de t_c sur le profil de saturation en polluant.

Figure IV.10.b : Evolution de la profondeur de la zone contaminée en fonction du temps pour différents t_c .

t_c (jours)	Q (cm ³)
0,5	0,435
1	0,617
3	1,125
5	1,586
7	1,988

Tableau IV.6 : Quantité du polluant infiltrée dans le sol (Q) pour 5 différentes valeurs de temps de contact.

Ce paramètre influe aussi très sensiblement sur la quantité de polluant infiltrée dans le sol et sur la profondeur de la zone touchée par la pollution : quand t_c passe de 0,5 à 7 jours, la quantité de polluant infiltrée passe de 0,435cm³ à 1,988cm³ (tableau IV.6).

Ces résultats montrent que la durée de séjour du polluant à la surface du sol est un paramètre très important pour l'évaluation du risque de pollution : en pratique, le délai de première intervention sur la zone de l'accident a une incidence déterminante sur le risque de pollution.

IV.6.3.2- Influence de l'épaisseur du polluant

L'influence de l'épaisseur de la nappe de polluant (e) imposée à la surface du sol (charge en polluant) durant la phase d'injection, sur sa migration est donnée en figure (IV.11.a). On note une incidence faible de ce paramètre sur le profil de saturation en polluant. De même, la figure (IV.11.b) montre que la quantité de polluant infiltrée dépend peu de e , du fait de l'effet de barrière capillaire évoqué dans les paragraphes précédents.

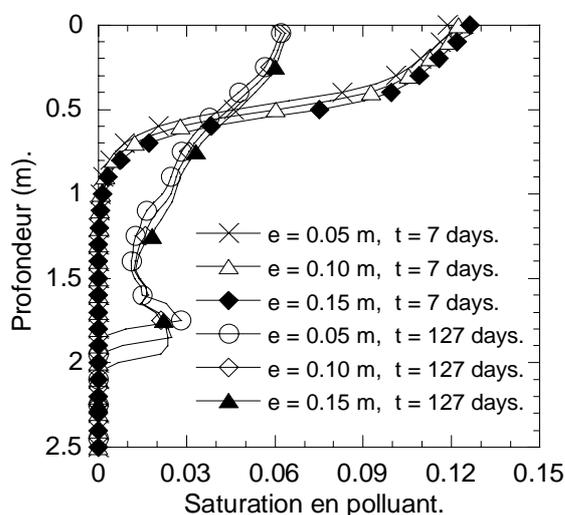


Figure IV.11.a : Influence de l'épaisseur du polluant sur la migration du polluant.

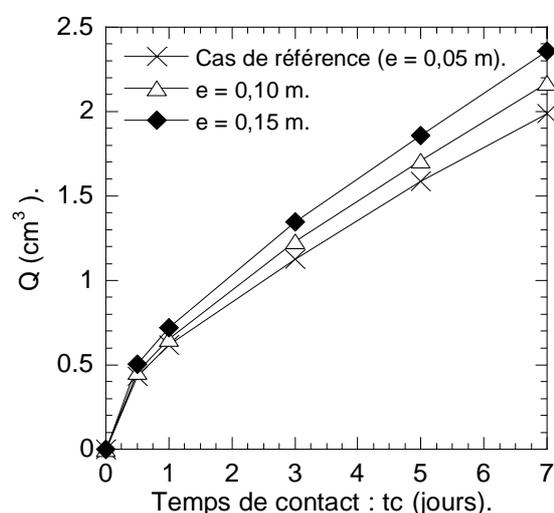


Figure IV.11.b : Influence de l'épaisseur du polluant sur la quantité du polluant infiltré.

IV.6.3.3. Effet de la nature du polluant

Le front de saturation pour deux polluants différents (TCE et benzène) est donné sur la figure (IV.12.a) à la fin de la phase d'injection ($t_c = 7$ jours). Les propriétés physico-chimiques de ces polluants sont données dans le tableau (II.7). L'infiltration du benzène à l'issue de la

phase d'injection est un peu moins avancée que celle du TCE. De même, la figure (IV.12.b) donne l'évolution de la profondeur de la zone polluée en fonction du temps pour ces deux polluants. Il apparaît que le benzène migre moins profondément que le TCE, et que la contamination se stabilise un peu plus rapidement. Cette différence dans le comportement peut être attribuée à des écarts dans les valeurs des principaux paramètres physico-chimiques pour ces deux liquides (densité, viscosité, tension superficielle...) et, en particulier, au fait que le benzène est beaucoup plus léger que le TCE et donc moins entraîné par les forces de pesanteur.

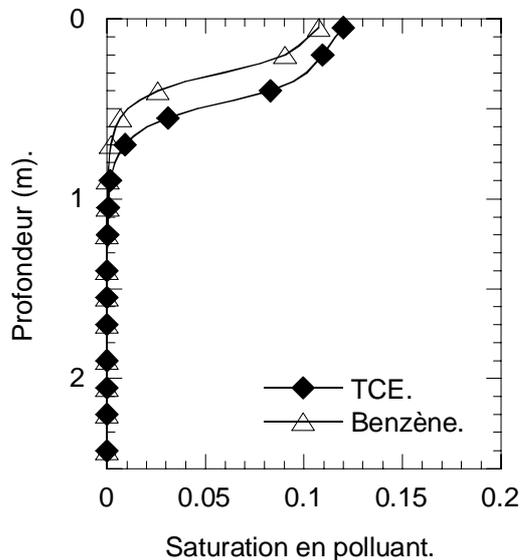


Figure IV.12.a : Influence de différents polluants sur leur migration (phase d'injection) pour un temps de contact de 7 jours.

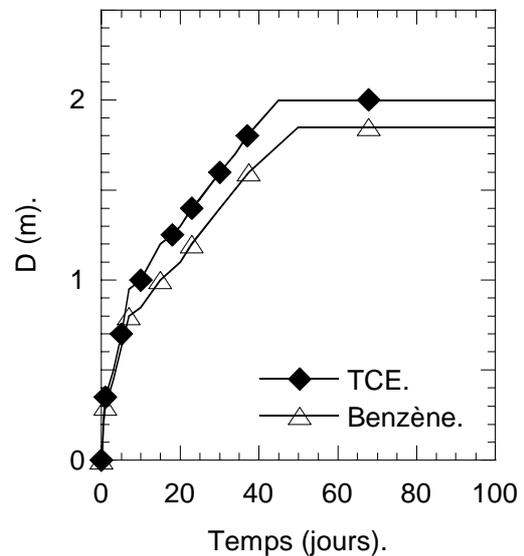


Figure IV.12.b : Evolution de la profondeur de la zone contaminée en fonction du temps.

IV.6.3.4- Influence du lessivage par temps de pluie

On étudie ici l'influence sur la migration du TCE d'une séquence de pluie imposée après la phase d'injection. Les différentes phases de calcul sont données sur la figure (IV.13) :

- La première phase de calcul consiste à déterminer le profil de saturation initial en eau qui est conditionné par le niveau de la nappe et les courbes de rétention des sols.
- La deuxième phase concerne le rejet du polluant, qui est simulé par l'application d'une charge constante de polluant à la surface du sol ($e = 0,05\text{m}$) pendant un certain laps de temps ($t_c = 7$ jours pour l'exemple de référence).
- La troisième phase simule un épisode pluvieux survenant après que la charge de polluant en surface ait été nettoyée, mais avant que le sol contaminé ait été traité ou retiré. Le calcul a été effectué avec une séquence de pluie modélisée par une charge en eau à la surface du sol de $0,02\text{m}$ pendant un temps de pluie t_p . On a étudié deux cas différents de temps de pluie $t_p = 3$ jours et 7 jours.
- La quatrième phase correspond à l'infiltration et à la redistribution du polluant sous les forces de gravité et capillaires, en absence de charge d'eau à la surface du sol.

Les résultats obtenus sont illustrés sur la figure (IV.14.a). On constate que le lessivage a pour effet d'accélérer l'infiltration de polluant, notamment au début de la pollution. Ceci peut être expliqué par le fait que l'eau, en entrant dans le domaine modifie les saturations relatives des différents fluides, jouant ainsi notamment sur la rétention du polluant piégé, provoquant sa migration. La figure (IV.14.b) montre que la profondeur de la zone contaminée n'est affectée de

manière sensible que pour une pluie de durée importante (pas d'effet sensible pour une pluie de 3 jours, mais une profondeur contaminée augmentée de 0,55 m après 7 jours de pluie).

Par temps pluvieux, il est donc nécessaire que la décontamination du sol soit effectuée aussi rapidement que possible, la migration étant accélérée par la pluie.

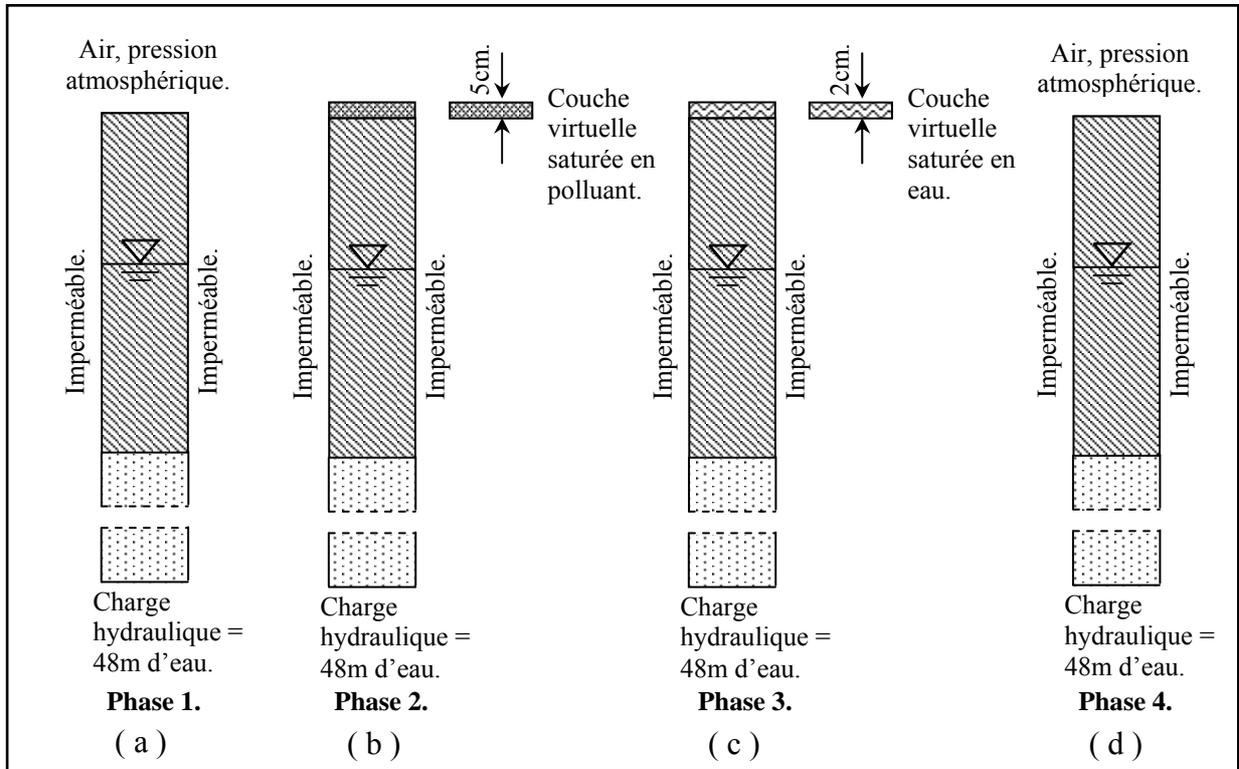


Figure IV.13 : Etapes de simulation et conditions initiales et aux limites.

- (a) Drainage de la colonne poreuse.
- (b) Simulation d'un rejet accidentel moyennant une couche virtuelle.
- (c) Simulation de la pluie moyennant une couche virtuelle.
- (d) Migration du polluant sous les forces de gravité et capillaires.

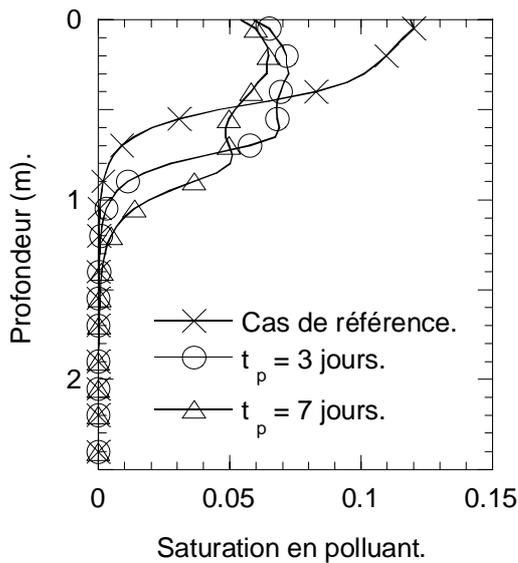


Figure IV.14.a : Influence du lessivage sur la migration du polluant (phase 3). Phase d'injection ($t=7$ jours).

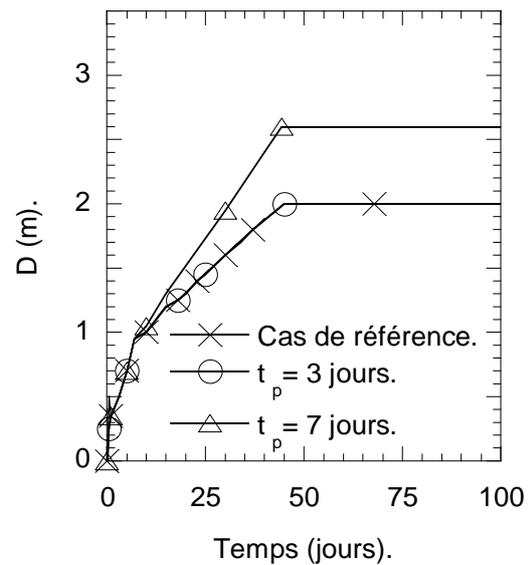


Figure IV.14.b : Evolution de la profondeur de la zone contaminée en fonction du temps.

IV.7- Conclusions

Dans ce chapitre, on a étudié à l'aide d'un modèle par éléments finis l'influence des paramètres liés au sol et au polluant, et de la géométrie du problème sur la profondeur de la zone contaminée et la quantité de polluant infiltré. L'influence de la variation des propriétés physiques du sol et du polluant (perméabilité et propriétés de rétention du sol, ...) a été d'abord analysée. L'effet de la variation de certaines caractéristiques géologiques et hydrogéologiques (épaisseur de la couche de couverture H_c et de profondeur de la nappe P_N) a été étudié. Enfin, une analyse a été effectuée sur l'influence des circonstances du déversement accidentel (temps de contact du polluant avec la surface du sol t_c , occurrence d'un événement pluvieux avant ou après le déversement) sur le transfert du polluant à travers le sol de couverture.

Basé sur cette étude un ensemble de quatre paramètres a été retenu pour la conception de l'outil de prévision par réseaux de neurones artificiels présenté dans le chapitre V : la perméabilité intrinsèque de la couche de couverture (k), l'épaisseur de la couche de couverture (H_c), la profondeur de la nappe (P_N) et le temps de contact du polluant avec la surface du sol (t_c).

Chapitre V : Etude du risque de contamination par les réseaux de neurones artificiels

V.1- Introduction

Ce chapitre présente dans un premier temps l'outil permettant d'évaluer rapidement la profondeur de la zone contaminée D et la quantité de polluant injectée (Q) dans un sol après un déversement de TCE consécutif à un accident de la route. Cet outil est utilisé pour estimer la profondeur de pénétration de la pollution dans le cadre de l'étude de l'impact de l'élargissement de la RN2 entre Avesnes sur Helpe et Maubeuge, en particulier le long de l'axe du projet routier.

Cette étude est essentielle pour estimer le volume de sol à extraire et/ou à dépolluer dans le cas d'un accident avec déversement de polluant. Après l'étude numérique l'écoulement polyphasique du TCE dans le sol effectuée au chapitre précédent, les paramètres les plus influents se sont révélés être l'épaisseur et la perméabilité intrinsèque de la couche de couverture des limons, la profondeur de la nappe et le temps de contact du polluant à la surface du sol. Une base de données peut alors être constituée en calculant, pour des combinaisons des paramètres ci-dessus représentatives du problème traité (paramètre d'entrée de la base de données), les valeurs de D et Q correspondantes (paramètres de sortie de la base). A partir de cette base, la simulation de D et Q peut être élargie à tout jeu de paramètres d'entrée. On illustre d'abord cette généralisation à l'aide d'une simple régression linéaire multiple (RLM), puis on montre qu'une simulation à partir des réseaux de neurones artificiels (RNA) présente des performances nettement meilleures.

V.2- Modèles de prévision à partir des données simulées

V.2.1- Base de données

La base est constituée en calculant D et Q à l'aide du logiciel Napl-Simulator (voir chapitre IV), pour des valeurs des paramètres d'entrée choisies dans un intervalle représentatif des variations observées sur le terrain : $k = 10^{-13}, 10^{-14}, 10^{-15} \text{ m}^2$; $t_c = 0,5, 1, 3, 5, 7$ jours ; 15 valeurs de H_c comprises entre 0 m et 20 m et des valeurs de P_N comprises entre 0 m et 40m. Au total, la base comprend 2005 cas différents, qui sont répartis en 3 groupes : le premier (1204 cas) est utilisé pour créer les modèles de prévision (phase d'apprentissage), le deuxième (416 cas) est nécessaire pour tester les modèles (phase de test) et le troisième (385 cas) est réservé pour la validation des modèles de prévision.

La partie de la base de données correspondant à $k=10^{-13} \text{ m}^2$ est représentée graphiquement sur les figures (V.1) (paramètre de sortie D : profondeur de sol contaminé) et (V.2) (paramètre de sortie Q : quantité de polluant infiltrée). On retrouve les tendances évoquées lors de l'étude paramétrique présentée au chapitre IV. Ainsi D et Q augmentent globalement et très sensiblement avec le temps de contact t_c et sont sensiblement plus faibles quand l'épaisseur de la couche de couverture augmente (et ce d'autant plus que t_c est grand). Une augmentation de la profondeur de la nappe P_N tend à favoriser la migration de la pollution.

Les parties de la base de données construites pour $k=10^{-14}$ et 10^{-15} m^2 sont données en annexe 3.

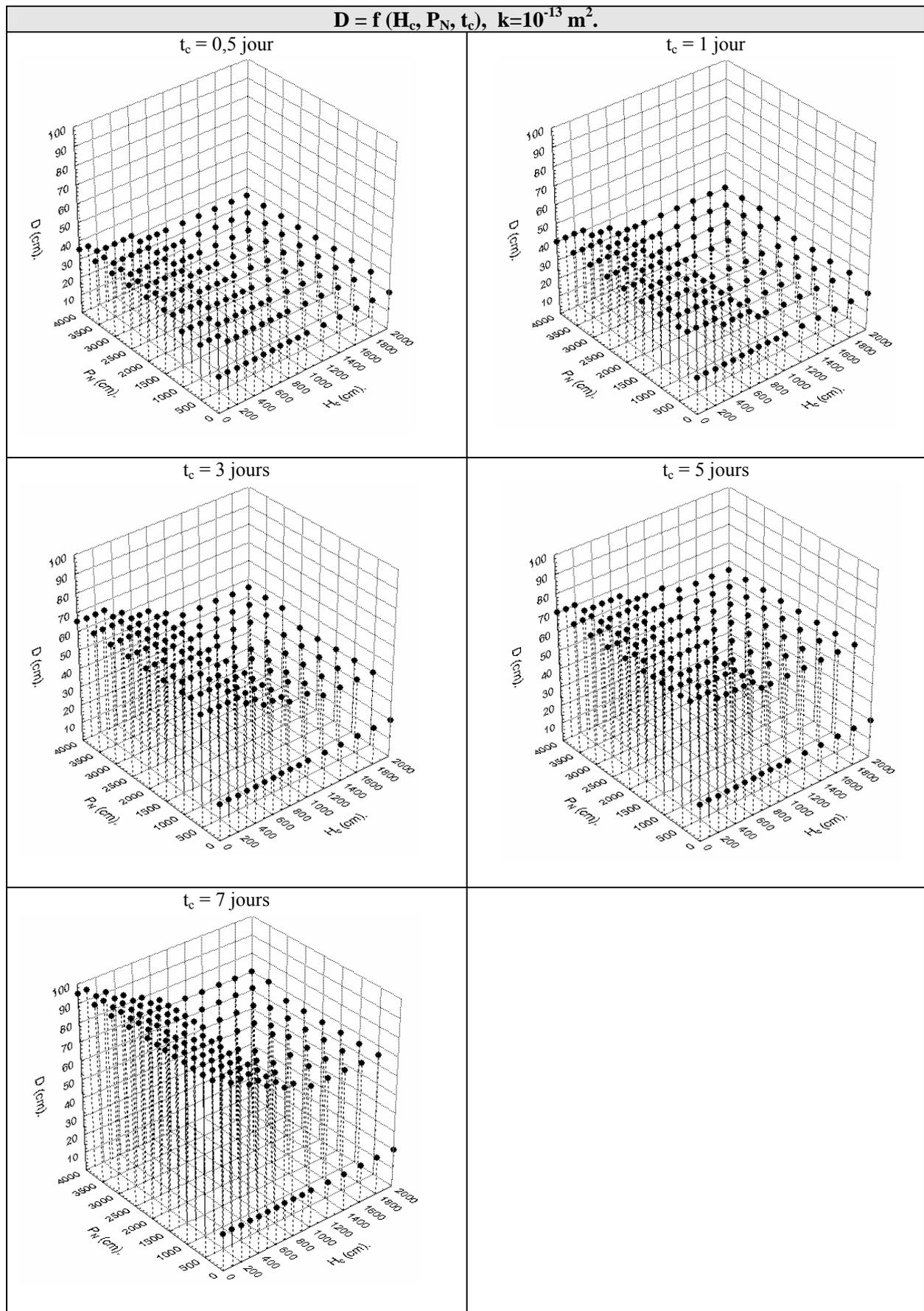


Figure V.1 : Représentation graphique d'un extrait de la base de données : évolution de D pour $k = 10^{-13} \text{ m}^2$.

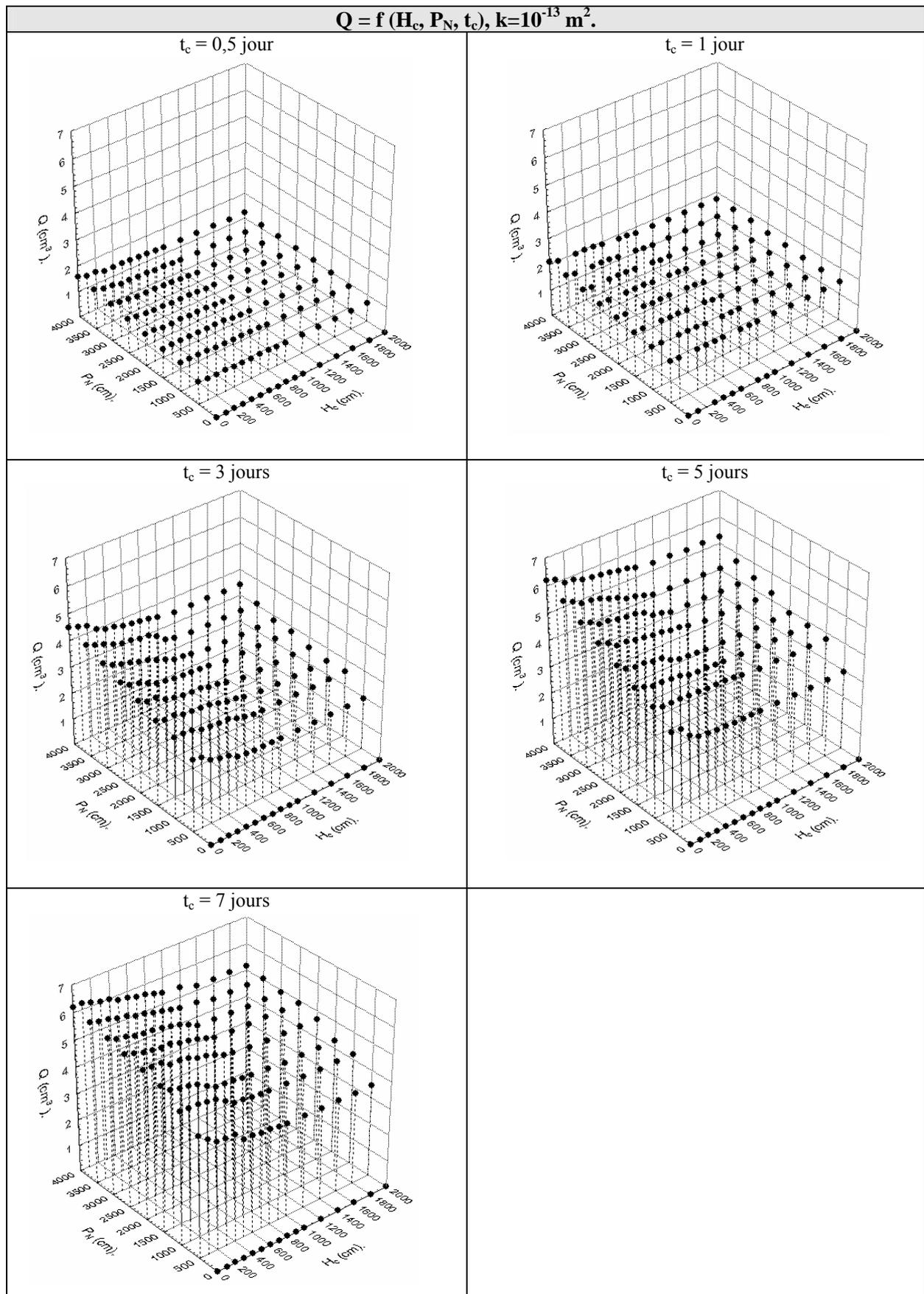


Figure V.2 : Représentation graphique d'un extrait de la base de données : évolution de Q pour $k=10^{-13} \text{ m}^2$.

V.2.2- Modèle de régression linéaire multiple

La méthode la plus simple pour simuler des valeurs pour D et Q à partir des données contenues dans la base présentée à la section précédente est la régression multi-linéaire : on recherche une approximation g d'une variable Y , dépendant linéairement de p variables d'entrée X_j :

$$Y = g(X) = g(X_1, \dots, X_p) = a_1 \times X_1 + a_2 \times X_2 + a_3 \times X_3 + \dots + a_p \times X_p \quad (V.1)$$

Ici, D et Q sont recherchés en fonction de k , H_c , P_N et t_c (modèle 1.a et 1.b). Les coefficients des deux modèles sont déterminés par la méthode des moindres carrés à partir du premier ensemble de 1204 cas de la base de données (données d'apprentissage). La deuxième et la troisième partie de la base de données sont utilisées pour tester et valider ce modèle. Les 2 équations trouvées après calcul sont les suivantes :

$$D = -13,821x(-\log(k)) - 0,005086xH_c + 0,002516xP_N + 3,1933x t_c + 164,29 : (\text{Modèle 1.a}) \quad (V.2)$$

$$Q = -1,0021x(-\log(k)) - 0,000333xH_c + 0,0003817xP_N + 0,21399x t_c + 10,347 : (\text{Modèle 1.b}) \quad (V.3)$$

Les coefficients de détermination R^2 obtenus entre les valeurs cibles connues et les valeurs simulées par la régression linéaire multiple varient entre 0,35 et 0,685 (tableau V.1 et figure V.3). Ces valeurs faibles s'expliquent par le fait que la relation entre les paramètres d'entrées (k , H_c , P_N , t_c) et les paramètres de sorties (D et Q) est très complexe et fortement non linéaire : la régression linéaire multiple ne peut restituer cette complexité. Il est possible de rechercher la fonction g de l'équation (V.1) ci-dessus sous la forme d'une équation non linéaire en les variables X_i voire même en ses paramètres a_j . La difficulté réside alors dans le choix de la forme de l'équation, ainsi que dans la détermination numérique de ses paramètres. Les réseaux de neurones, et plus particulièrement les perceptrons multicouches (*cf* chapitre I), permettent d'éviter ces difficultés puisqu'on peut en théorie approcher d'aussi près qu'on veut n'importe quelle fonction continue en faisant simplement varier le nombre de couches cachées et de neurones dans chacune de ces couches cachées (Mazzola, 1997).

V.2.3- Modèles de réseaux de neurones artificiels

V.2.3.1- Architecture des modèles

Nous avons limité les réseaux utilisés au MLP à une seule couche cachée. En effet, Cybenko (1989) a montré que ceux-ci pouvaient approcher n'importe quelle fonction continue. C'est d'ailleurs cette architecture qui est retrouvée dans la plupart des études hydrologiques, climatiques ou météorologiques utilisant les réseaux neuronaux (Cannon et McKendry, 1999 ; Tang *et al.*, 2000, Lallahem, 2002).

On peut alors considérer deux cas : l'un où on construit un réseau distinct pour chaque variable de sortie, nommé modèle n° 2.a pour Q et modèle n° 2.b pour D, et l'autre où on estime simultanément D et Q à l'aide d'un seul et même réseau, nommé modèle n° 3 (voir figure V.4). Dans tous les cas, les réseaux considérés possèdent 4 cellules d'entrées k , H_c , P_N , t_c .

On observe sur la figure (V.5) que la valeur minimale de l'erreur quadratique absolue ASE (*Absolute Squared Error*) sur les données de test est obtenue pour 32, 29 et 27 nœuds dans la couche cachée pour les modèles 2.a, 2.b et 3 respectivement. On remarque que pour le problème modélisé ici, le réseau construit avec deux sorties simultanées Q et D (modèle 3) est obtenu avec un nombre de neurones cachés inférieur à celui correspondant aux réseaux à une seule sortie (modèles 2.a et 2.b).

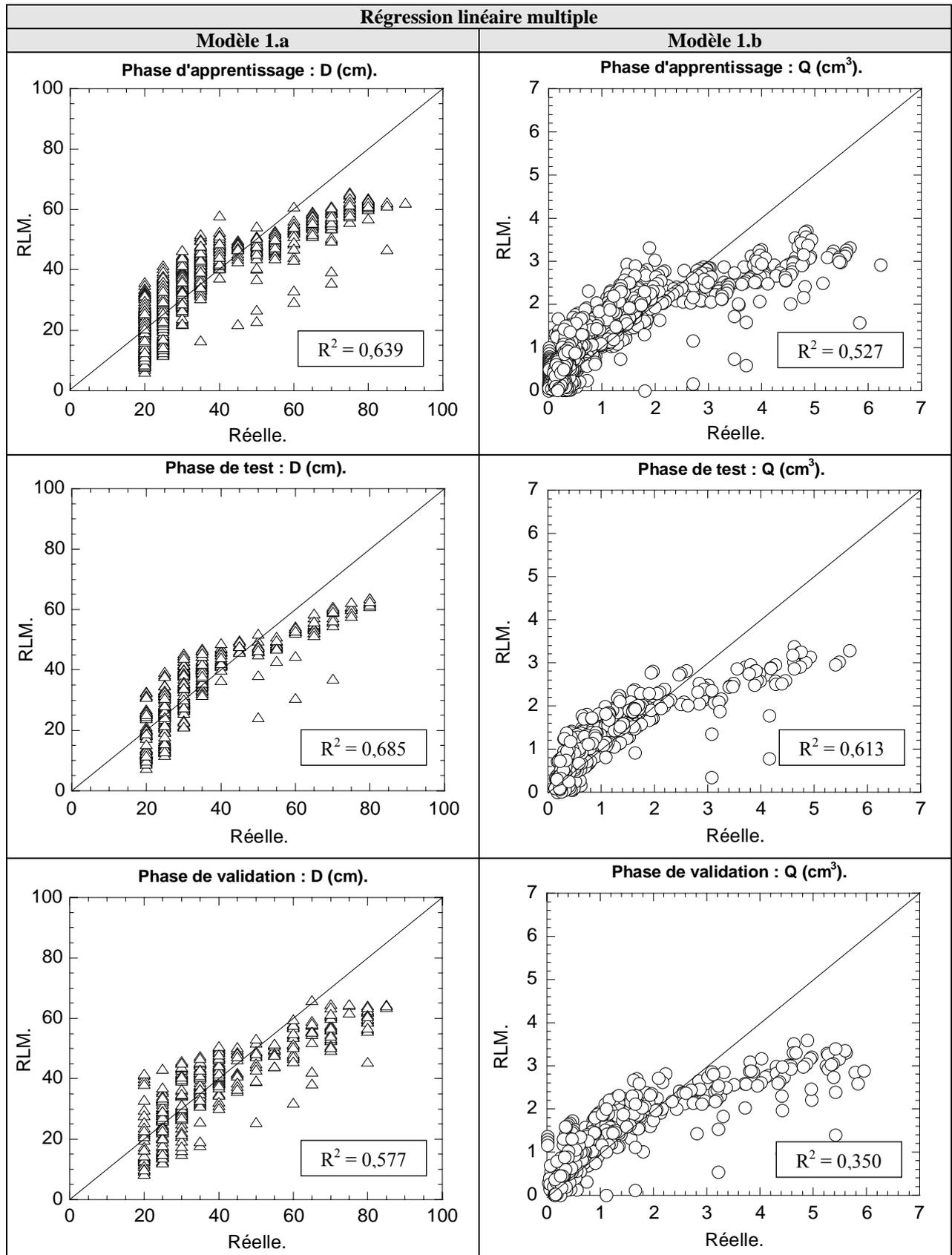


Figure V.3 : Comparaison entre les valeurs réelles et valeurs prévues par la RLM.

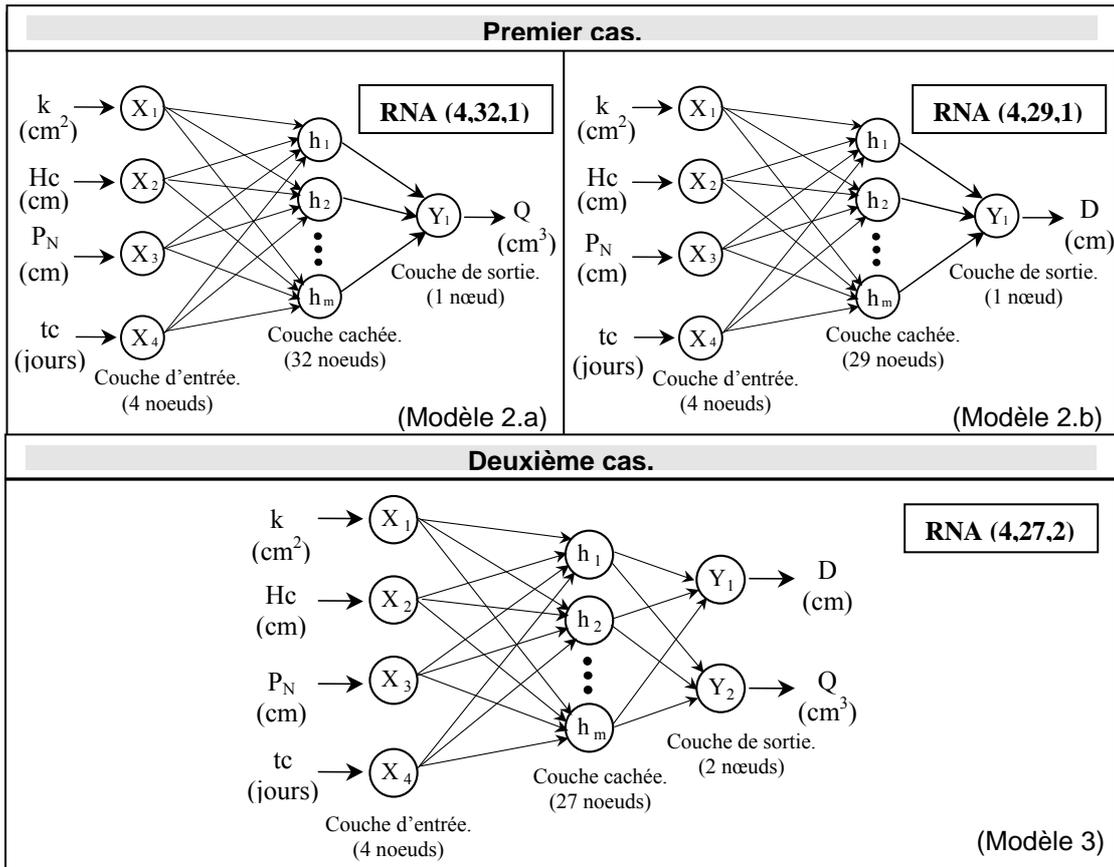


Figure V.4 : Structures de deux cas de MLP

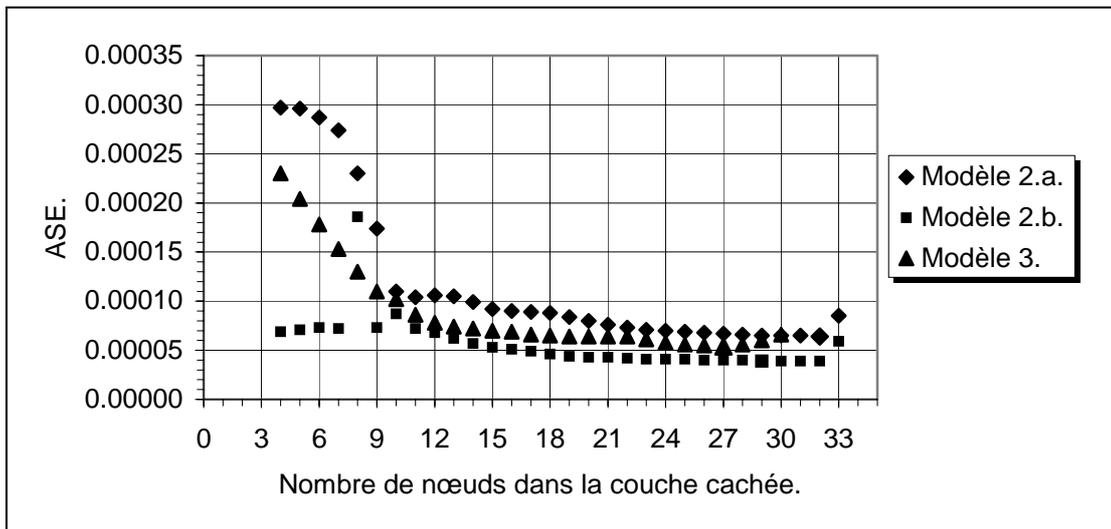


Figure V.5 : Evaluation des ASE de l'échantillon de test en fonction du nombre de neurones dans la couche cachée.

Le fait qu'un réseau de moindre complexité apporte pourtant plus d'information peut être expliqué par le fait que les sorties D et Q sont en fait liées (physiquement, la quantité de polluant infiltrée dépend évidemment de la profondeur atteinte par le polluant). Le modèle 3 tire en quelque sorte partie de ce fait pour construire un réseau plus performant.

V.2.3.2- Performance des modèles

Les performances comparées des différents modèles de MLP peuvent être évaluées en examinant la corrélation entre les valeurs de sortie estimées par le modèle et les cibles connues et ce pour les différentes phases de simulation. La figure (V.6) montre ces corrélations pour les modèles 2.a (sortie Q) et 2.b (sortie D), et la figure (V.7) pour le modèle 3 (sorties D et Q simultanément). Les nuages de points sont proches de la première bissectrice, et les coefficients R^2 sont supérieurs à 0,95 dans tous les cas, indiquant une bonne capacité de prévision des modèles (tableau V.1). Les coefficients R^2 , rassemblés dans le tableau V.1 pour les modèles 1, 2 et 3, font logiquement apparaître des valeurs un peu plus élevées pour la phase d'apprentissage, avec les données ayant servi à construire le réseau, que pour les phases de test et de validation, basées sur des données indépendantes.

R^2	Modèle RLM		Modèles RNA			
	Modèle 1.a	Modèle 1.b	Modèle 2.a	Modèle 2.b	Modèle 3	
			<i>MLP(4,32,1)</i>	<i>MLP(4,29,1)</i>	<i>MLP(4,27,2)</i>	
	<i>D</i>	<i>Q</i>	<i>Q</i>	<i>D</i>	<i>Q</i>	<i>D</i>
Phase d'apprentissage.	0,639	0,527	0,993	0,976	0,989	0,978
Phase de test.	0,685	0,613	0,984	0,974	0,980	0,978
Phase de validation.	0,577	0,350	0,984	0,947	0,981	0,950

Tableau V.1 : Coefficients R^2 entre les valeurs « réelles » et estimées par les différents modèles.

En résumé, on constate une bien meilleure performance des réseaux de neurones par rapport à la régression linéaire multiple, ce qu'on peut expliquer par la non-linéarité des phénomènes modélisés, et ce qui illustre le bon comportement des RNA pour modéliser ces phénomènes non-linéaires. Le gain de précision de la simulation rapporté à la complexité du réseau (nombre de neurones cachés) montre que le réseau le plus performant semble être celui où D et Q sont calculés simultanément (modèle 3). Les variables de sortie D et Q étant liées, les RNA ont la capacité d'identifier cette dépendance et d'en tirer parti pour construire une simulation de meilleure qualité.

Le modèle n°3, qui lie D et Q aux 4 paramètres k , H_c , P_N et t_c , a été finalisé sous forme d'une feuille de calcul Excel, afin d'en faciliter l'utilisation par des personnes non spécialistes des réseaux de neurones, et de la modélisation des phénomènes de migration de pollution en général. Cet outil se veut un moyen d'évaluation simple et rapide d'évaluation de l'impact d'une pollution accidentelle par le TCE, puisqu'il suffit d'introduire les 4 paramètres d'entrée pour que le logiciel calcule automatiquement et très rapidement D et Q. Il est destiné à faciliter la tâche aussi bien des concepteurs de l'ouvrage dans leur choix notamment des dispositifs de prévention d'une pollution accidentelle, que celle des équipes d'intervention lors de la survenue d'un tel sinistre.

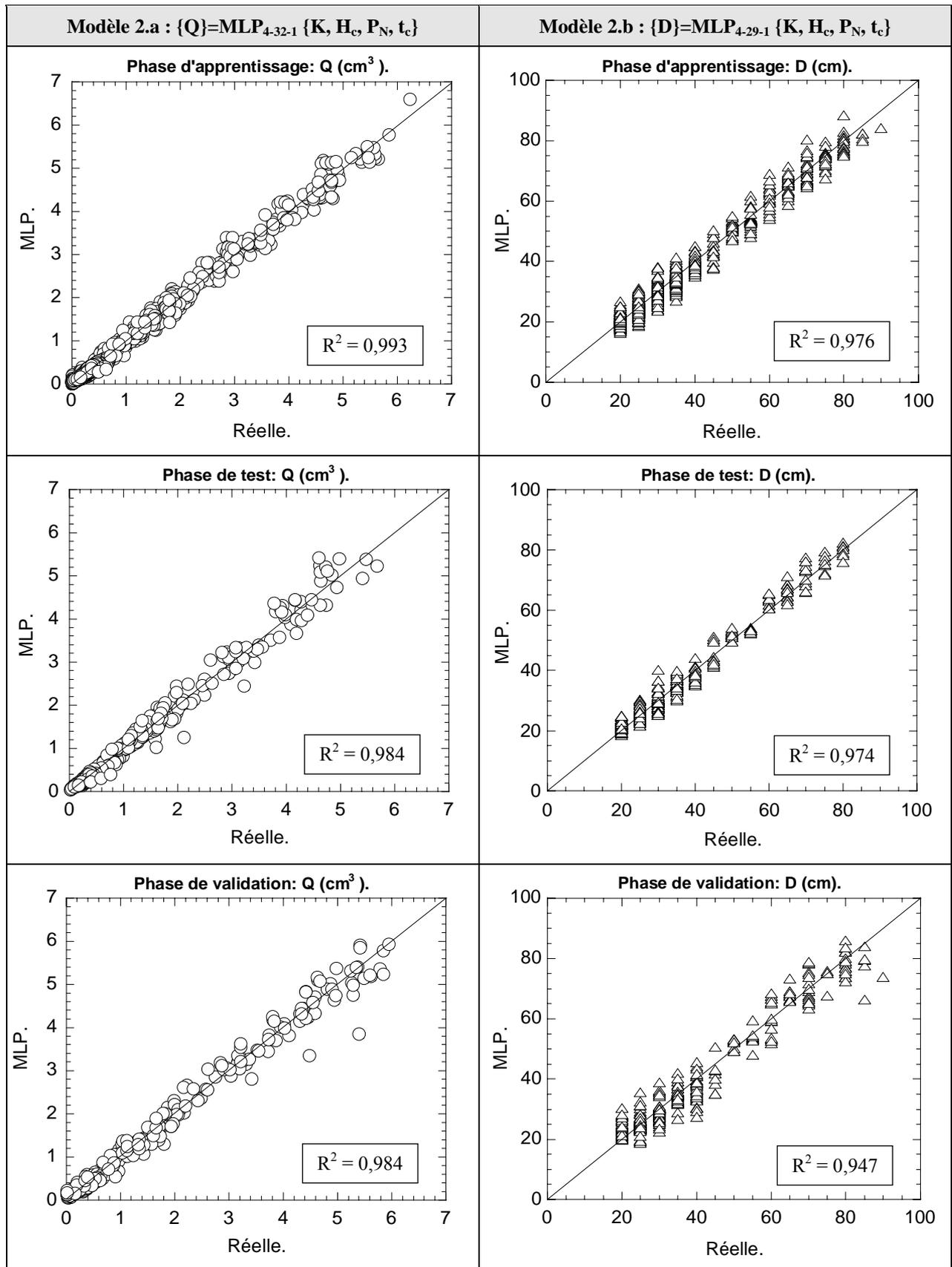


Figure V.6 : Comparaison entre les résultats des MLP et celles réelles connues pour les modèles 2.a et 2.b.

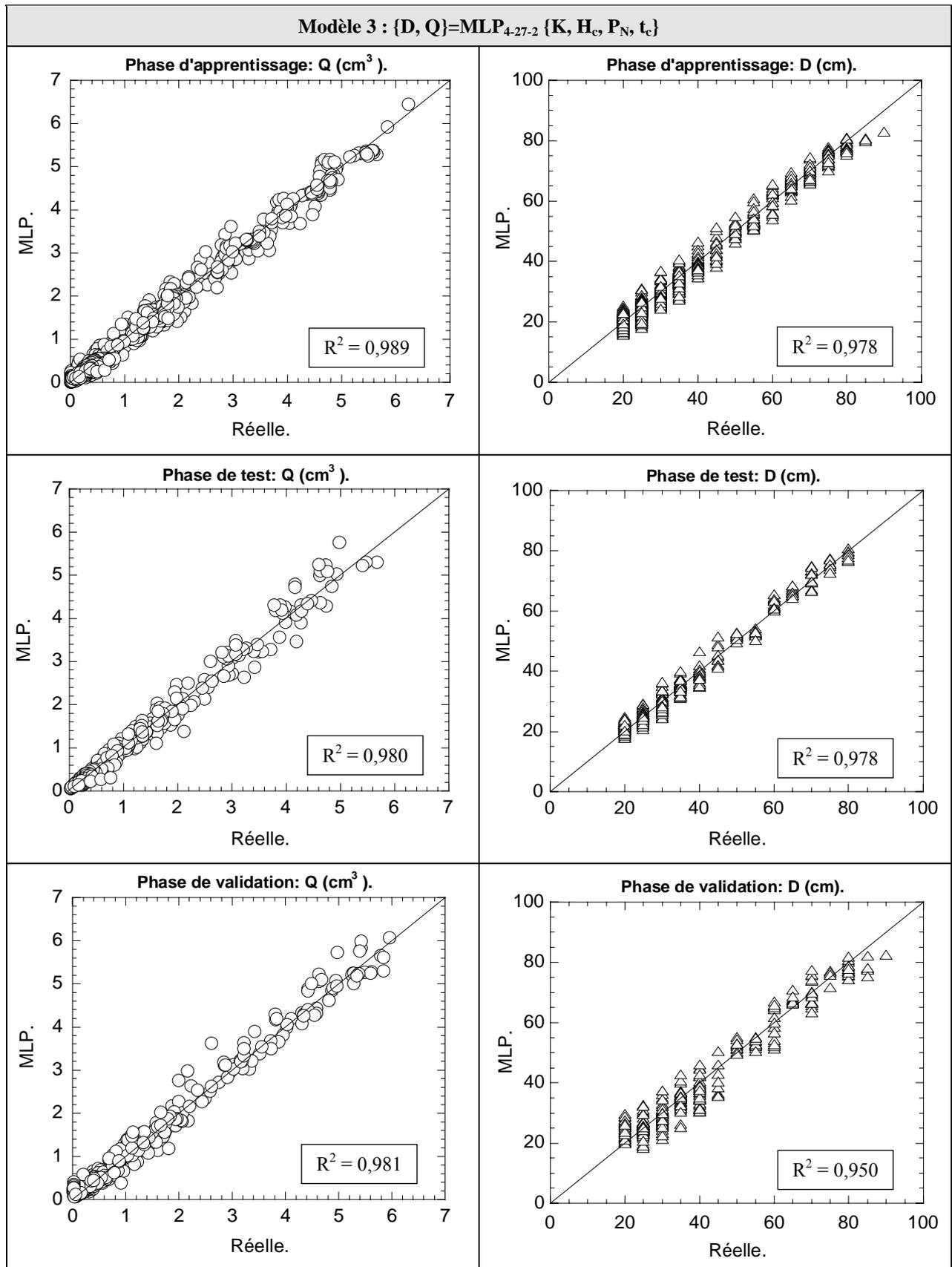


Figure V.7 : Comparaison entre les résultats des MLP et celles réelles connues pour le modèle 3.

V.3- Prévision de la profondeur de la zone contaminée dans le cas du projet de la RN2

Nous proposons dans cette section une application de l'outil de prévision du risque de pollution présenté précédemment (§ V.2.3), dans le cas de l'étude d'impact de la mise à 4 voies de la RN2 entre Avesnes sur Helpe et Maubeuge. Le modèle à réseau de neurones est utilisé pour calculer la profondeur de pénétration de polluant aux points pour lesquels l'épaisseur de la couche de couverture et la profondeur de la nappe sont connues (figure III.2). On peut alors interpoler ces valeurs sur la zone d'étude à l'aide du logiciel Surfer 7 si on souhaite une évaluation en plan sur la zone d'étude. On peut aussi restreindre l'étude le long de l'axe du projet routier, où les sondages effectués sont concentrés, et effectuer une analyse plus fine du risque encouru par la nappe exploitée dans cette zone. Ceci permet d'identifier les sections à risque maximal, et d'envisager dans ces sections différents scénarios d'accidents (nature du polluant, facteurs météorologiques, influence du délai d'intervention des secours ...), qui seront envisagés dans la suite de l'étude (§ IV).

V.3.1- Cartographie en plan

La cartographie des zones contaminées est utile pour visualiser rapidement les zones vulnérables pour les ressources en eaux souterraines, afin d'envisager des mesures de protection contre une pollution de TCE avant qu'un déversement accidentel de ce polluant ne se produise dans cette zone. Elles peuvent aussi servir à estimer, en cas de déversement accidentel de TCE, l'épaisseur de la couche de sol à décaper afin d'éviter que le polluant n'atteigne la nappe phréatique.

Sur les figures (V.8) et (V.9), on a représenté, pour $t_c = 0,5$ jour et les positions de nappe correspondant aux mois de septembre 2000 et février 2001, soit des périodes en basses et hautes eaux respectivement, les cartes de profondeur de pénétration pour le trichloréthylène. La zone d'étude a été restreinte à une bande de 325 m de part et d'autre de l'axe du projet. Deux modes de présentation ont été adoptés : une carte de courbes iso-valeurs superposées à la vue aérienne de la zone d'étude, et une carte où les aires d'égaux valeurs sont représentées dans une même couleur.

On constate que la profondeur moyenne de pénétration dans la couche de couverture est de l'ordre de 0,2 à 0,3m. La profondeur contaminée est globalement plus importante pour la nappe dans sa position basse (septembre 2000) (voir étude paramétrique présentée dans le chapitre IV). On remarque des profondeurs de pénétration données par le modèle un peu plus importantes dans les zones où la couche carbonifère est affleurante. Les valeurs obtenues en ces points ne sont cependant pas significatives car les propriétés hydrodynamiques de cette couche, fortement altérés, ne sont pas connues. Dans les simulations on a considéré les propriétés d'une craie, supposée dix fois plus perméable que les limons de couverture. Mais la démarche adoptée dans cette étude est conservatrice : dès lors que la couche carbonifère est atteinte par la pollution, la contamination de la nappe est considérée comme certaine. Cependant, les zones en question étant en déblai, ce risque n'existe que pendant la phase des travaux, ces zones étant protégées lors de l'exploitation de l'ouvrage.

Cependant la profondeur de pénétration de polluant, si elle donne une indication précieuse quand il s'agit de quantifier l'épaisseur de terrain à décaisser en cas d'accident, n'est pas un indicateur suffisant quand il s'agit d'apprécier le risque d'atteinte de la nappe. Avec l'hypothèse que nous faisons que le risque est maximal (100%) si le polluant atteint la couche carbonifère, on peut considérer un facteur de risque R, défini comme étant le rapport de la profondeur

contaminée (D) à l'épaisseur de la couche de couverture (H_c). Les figures (V.10) et (V.11) montrent une cartographie du risque avec ce critère, pour $t_c = 0,5$ jour et les deux positions de la nappe mentionnées précédemment. Les valeurs ponctuellement très élevées de R vers 700 m et 2100 m à partir de la limite Sud du synclinal correspondent aux zones de couches carbonifères affleurantes.

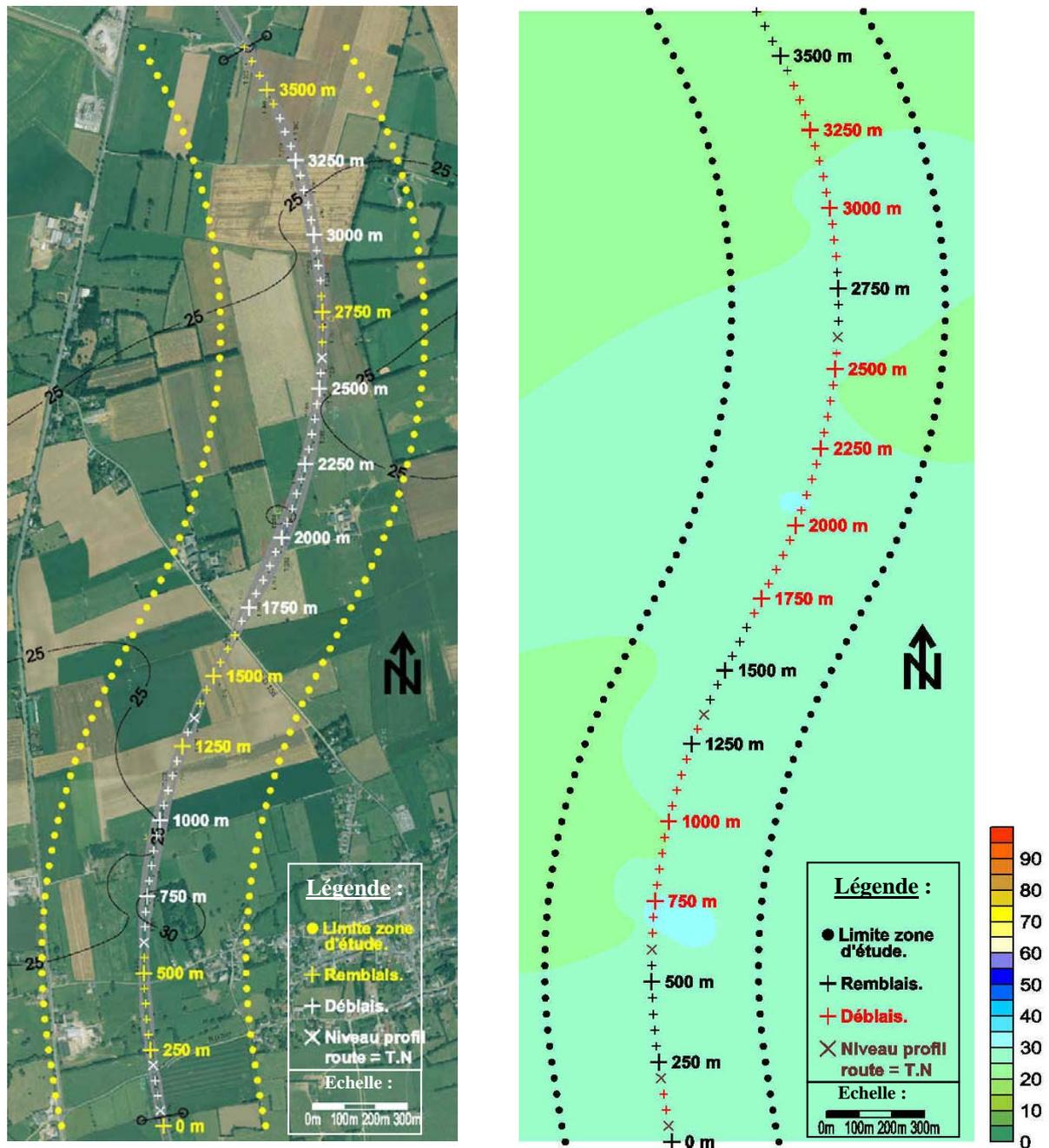


Figure V.8 : Carte de la profondeur de pénétration du polluant en cm, temps de contact $t_c = 0,5$ jour, nappe septembre 2000.

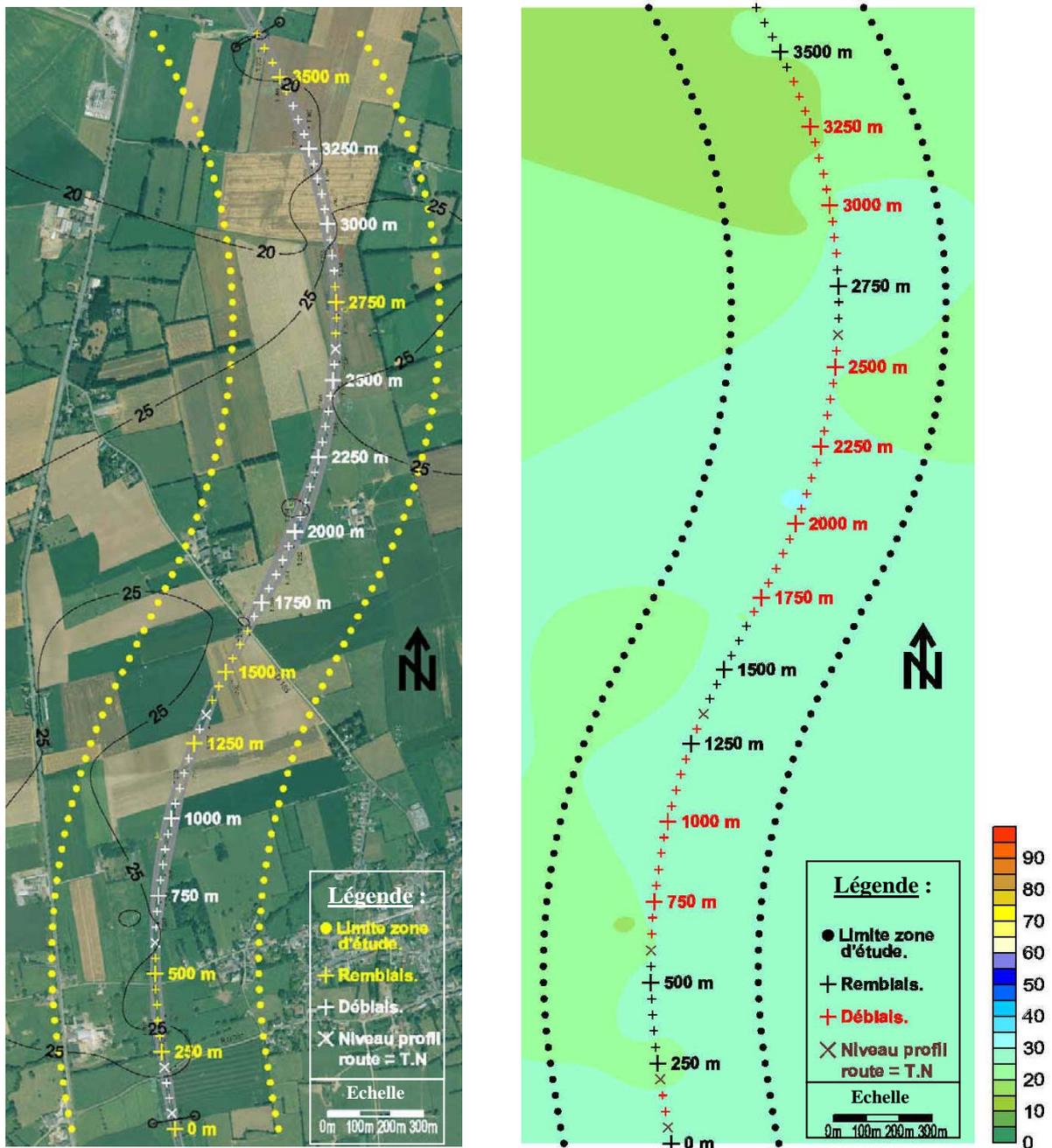


Figure V.9 : Carte de la profondeur de pénétration du polluant en cm, temps de contact $t_c = 0,5$ jour, nappe février 2001.

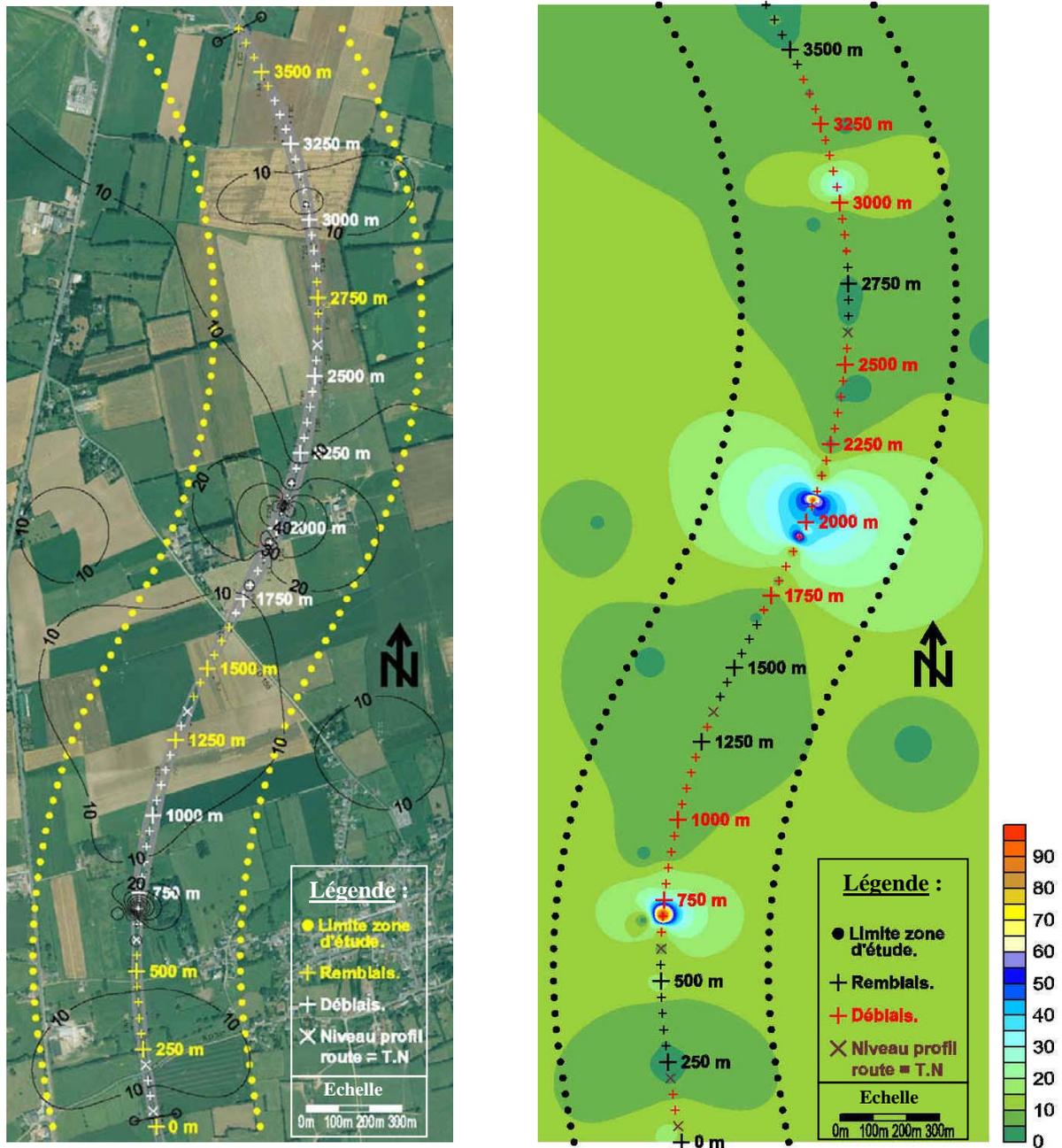


Figure V.10 : Carte du facteur de risque de contamination, temps de contact $t_c = 0,5$ jour, nappe septembre 2000.

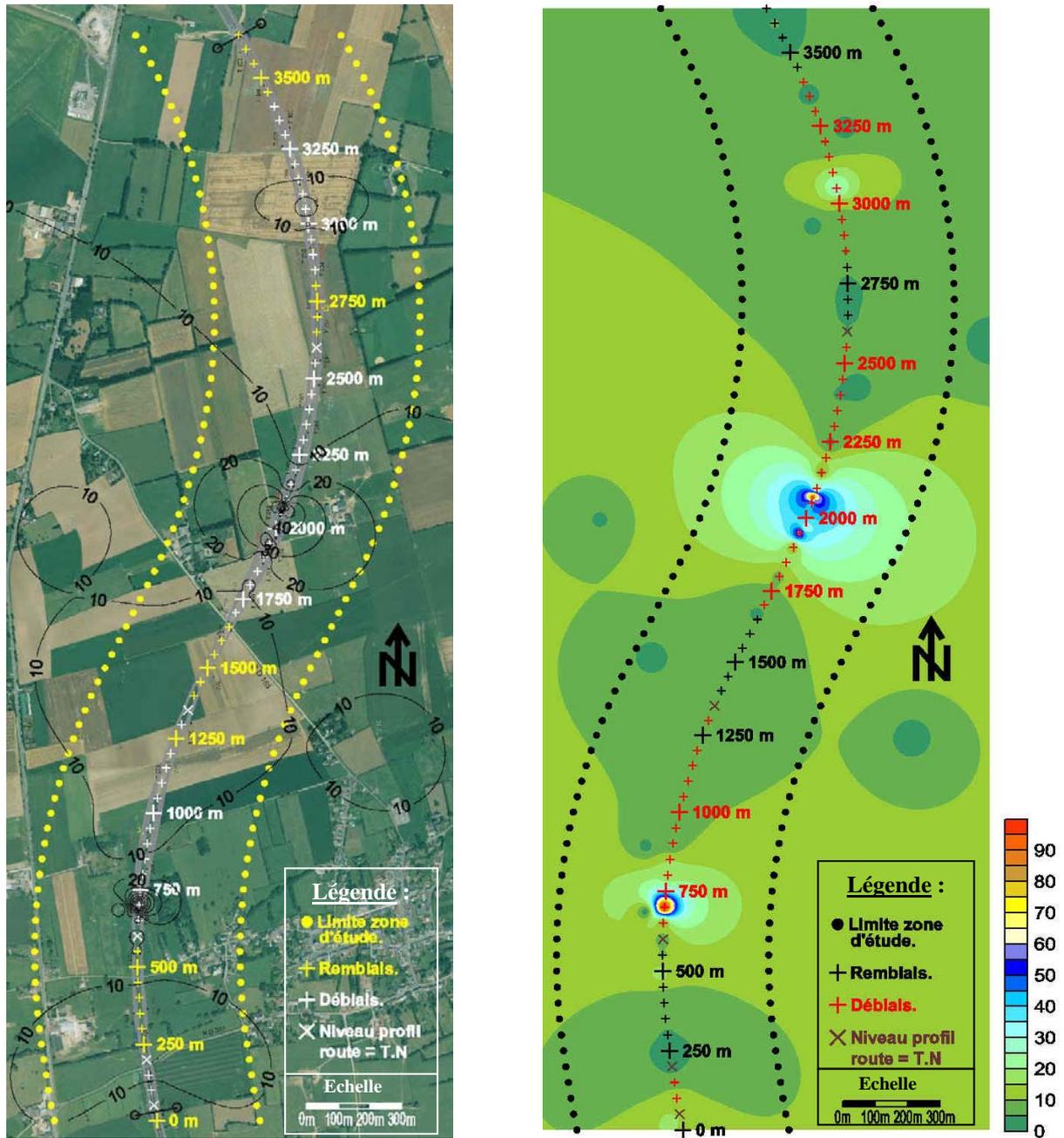


Figure V.11 : Carte du facteur de risque de contamination, temps de contact $t_c = 0,5$ jour, nappe février 2001.

V.3.2- Profil de pollution suivant l'axe du projet routier

La figure (V.12) donne la configuration du terrain le long de l'axe du projet routier. On a représenté la surface du terrain naturel et le profil en long du projet, faisant apparaître les zones en déblai et les zones en remblai. Dans les zones en déblai, le toit de la couche de couverture, à partir duquel le polluant est susceptible de pénétrer dans le sol, correspond à la cote du profil en long.

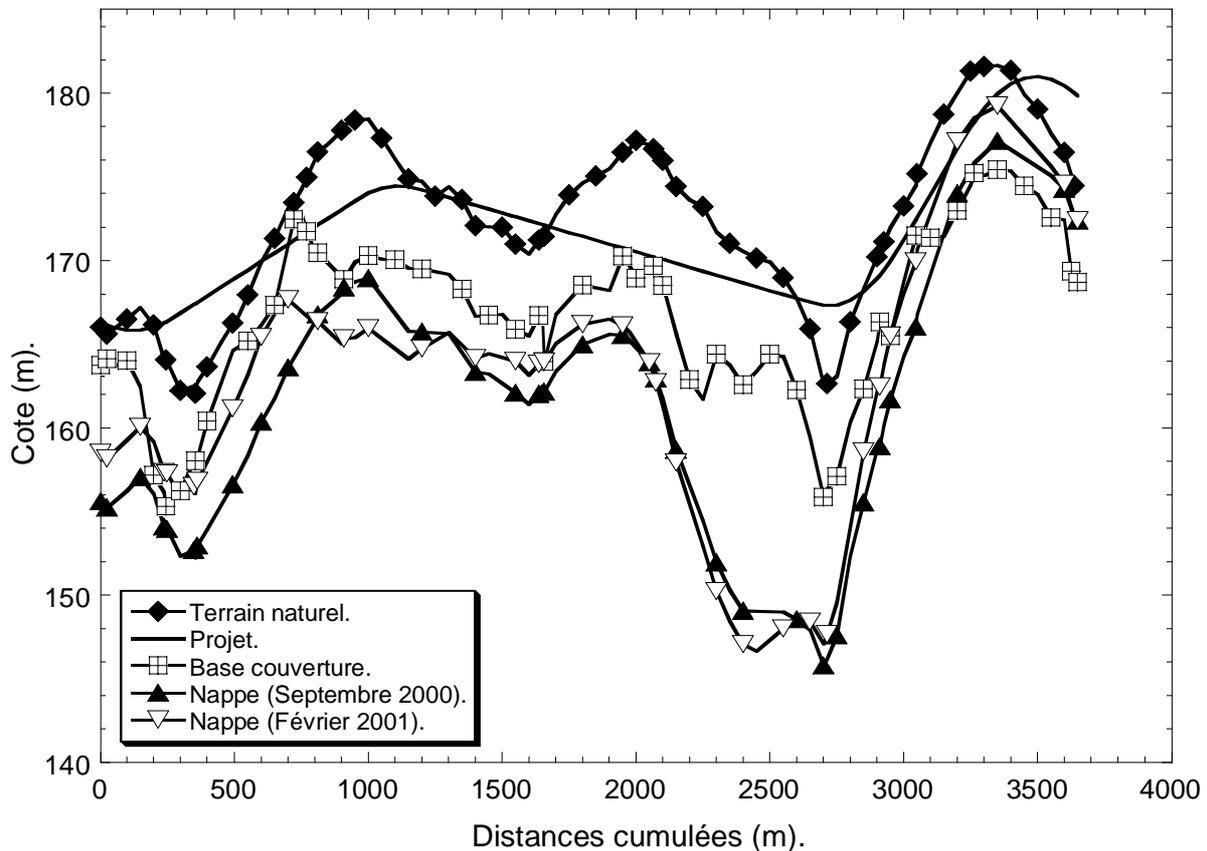


Figure V.12 : Profils dans l'axe de la route.

Dans les zones en remblai, il y a risque que le véhicule quitte la route et se retrouve au niveau du terrain naturel. La cote prise en compte dans le modèle pour le toit de la couche de couverture est donc la plus petite entre celle du terrain et celle du profil en long. Sur la figure (V.12) sont également représentées la cote de la base de la couche de couverture, et celle du toit de la nappe. On remarque qu'à deux reprises, la couche carbonifère est affleurante ou subaffleurante sur une courte distance (la couche de couverture est déblayée).

A ces endroits, il faudra être particulièrement prudent dans la phase de construction du projet, toute pollution accidentelle risquant de passer très rapidement dans la nappe. En revanche, en exploitation, les véhicules risquent peu de quitter la zone d'emprise du projet, qui est protégée et où des dispositifs de collecte du polluant sont prévus. Les zones à risque sont donc essentiellement les zones en remblai.

Les résultats fournis par le modèle pour le trichloroéthylène, les deux positions de la nappe et un temps de contact t_c de 0,5 jour sont donnés en figures (V.13) et (V.14). Sur ces figures sont reportées les profondeurs de contamination par rapport au toit de la couche de couverture.

On constate une pénétration relativement uniforme du polluant pour un temps de contact donné le long du profil de la route. La profondeur moyenne de pénétration dans la couche de couverture est de l'ordre de 20 à 30 cm pour un temps de contact de 0,5 jour. La profondeur contaminée est globalement plus importante pour la nappe dans sa position basse (septembre 2000) (voir l'étude paramétrique dans le chapitre IV).

On remarque des profondeurs de pénétration données par le modèle un peu plus importantes dans les zones où la couche carbonifère est affleurante. Cependant, comme signalé plus haut, les zones en question étant en déblai, ce risque n'existe que pendant la phase des travaux, ces zones étant protégées lors de l'exploitation de l'ouvrage.

Dans les parties du tracé en remblai, par contre, le risque de rejet sur le sol naturel existe pendant l'exploitation de l'ouvrage. Sur la zone d'étude, quatre portions de tracé sont dans ce cas (figure V.12). Nous concentrerons notre effort dans ces parties, notamment pour l'étude des scénarios de pollution, abordés dans la prochaine section.

Sur la figure (V.15), représentant l'évolution du facteur de risque R (c'est à dire le rapport entre la profondeur de pénétration du polluant et l'épaisseur de la couche de couverture) le long de l'axe du projet, on peut remarquer que R dans les zones en remblai ne dépasse pas environ 20% pour ce temps de contact.

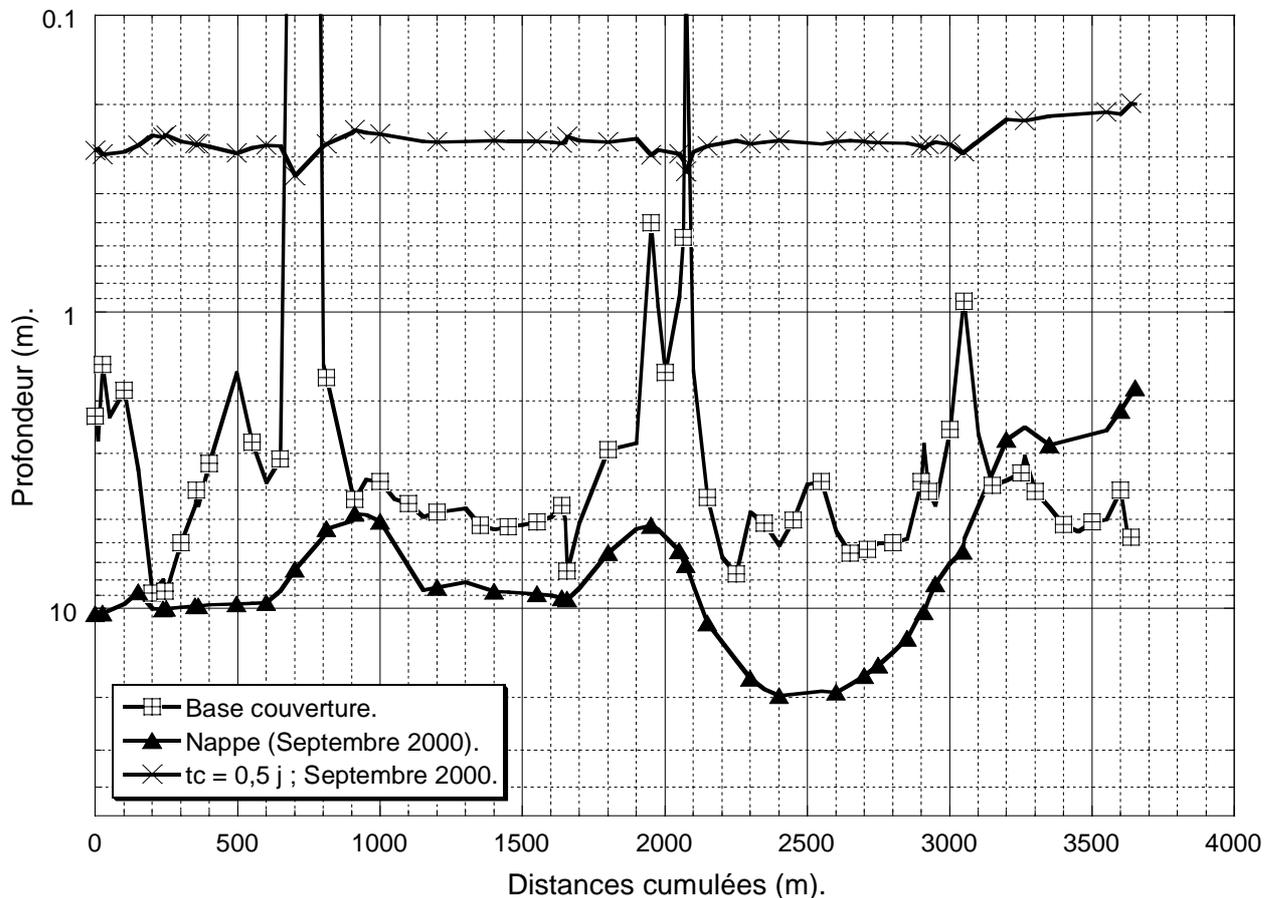


Figure V.13 : Simulation de la profondeur de contamination dans l'axe de la route, pour $t_c = 0,5$ jour et une position de la nappe correspondant à septembre 2000.

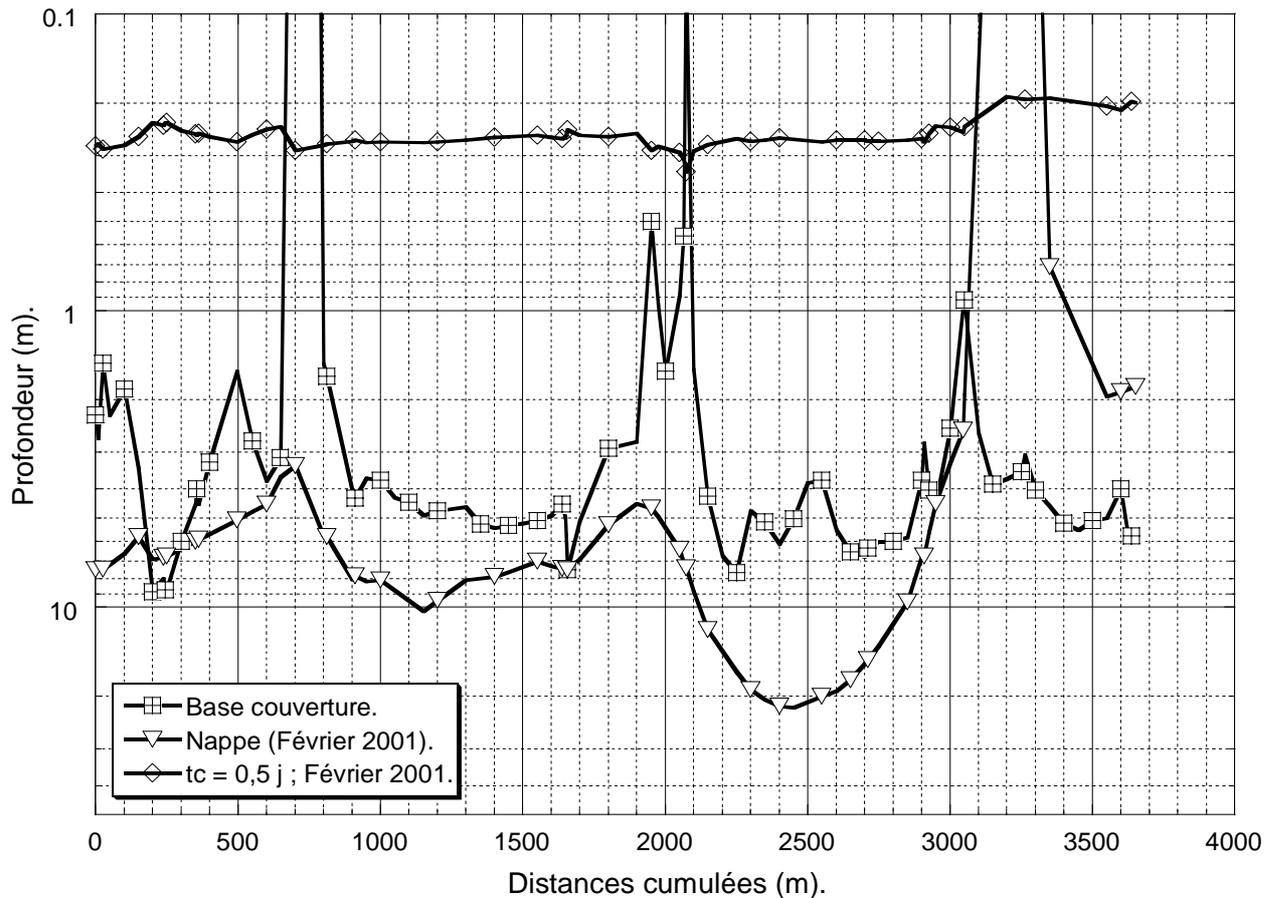


Figure V.14 : Simulation de la profondeur de contamination dans l'axe de la route, pour $t_c = 0,5$ jour et une position de la nappe correspondant à février 2001.

Les valeurs de R dépassant 100 % correspondent aux zones de craies affleurants, dans lesquelles le facteur de risque R tel que nous l'avons défini n'a pas d'objet.

Notons que le temps de contact sol-polluant t_c est lié au délai d'intervention sur le site du déversement. Un délai de 12 heures est habituellement retenu pour l'accident-type (Martin et Roux, 1999). Un temps de contact plus important sera toutefois également pris en compte dans l'étude de différents scénarios de pollution. Les profils de pénétration de TCE dans l'axe du projet sont donnés en annexe 4 pour des temps de contact t_c de 1 à 7 jours. Pour ce dernier cas, la profondeur atteinte par le front de pollution peut être de 40 à 50 cm suivant les endroits, et le facteur de risque R peut atteindre ponctuellement 30 %.

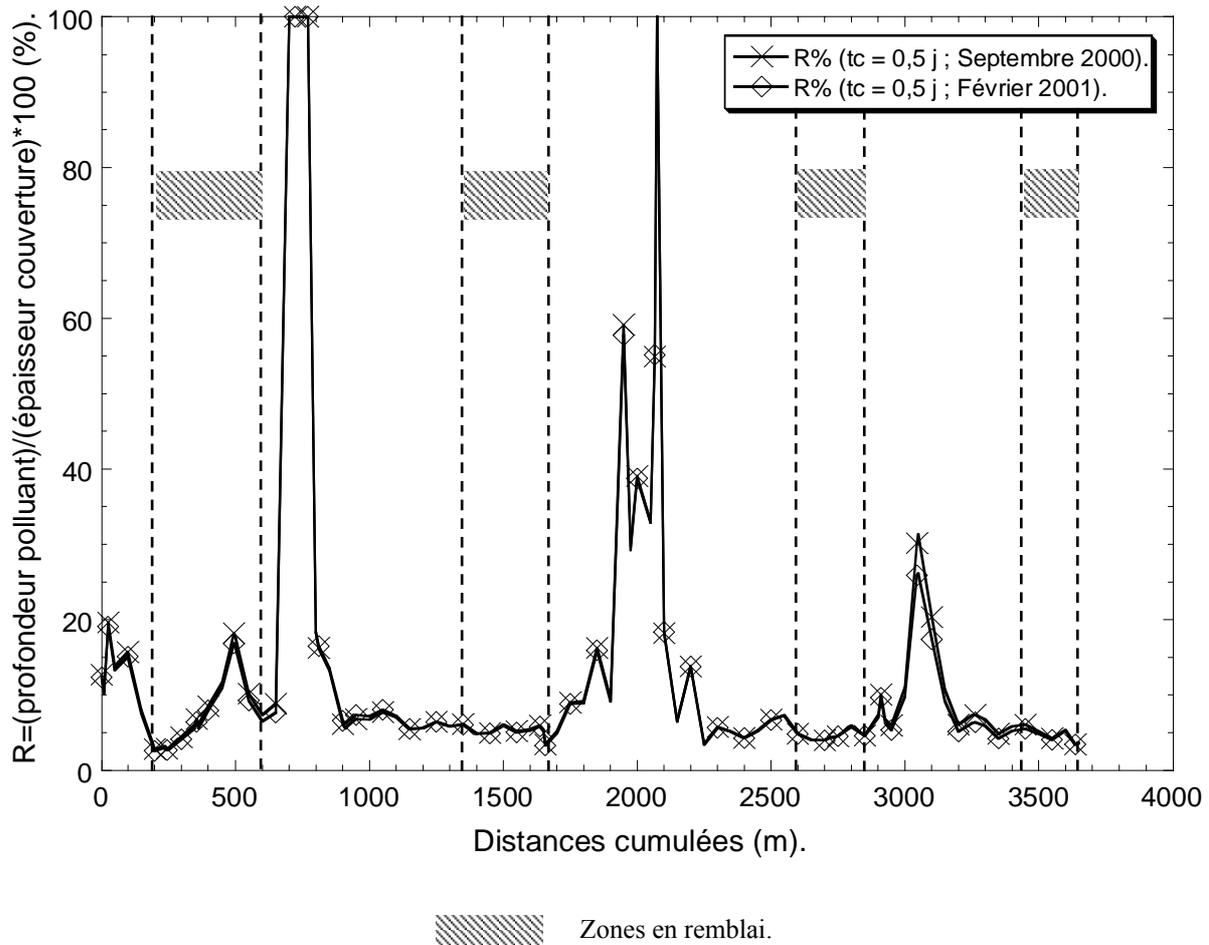


Figure V.15 : Simulation du facteur de risque R dans l'axe de la route, pour $t_c = 0,5$ jour et une position de la nappe correspondant à septembre 2000 et février 2001.

V.4- Etude de différents scénarios d'accidents

La figure V.16 montre la topographie de la zone d'étude après la construction de la route : on constate qu'il y a quatre zones en remblai. On se propose ici de calculer la profondeur de contamination en certains points du profil, pris dans des sections en remblai de la zone d'étude, pour certains scénarios d'accidents. Nous présentons les résultats pour 2 zones situées respectivement entre 200 m et 600 m, et entre 3450 m et 3650 m à partir de la limite Sud du synclinal de Bachant (voir par exemple figure V.12). Il s'agit de zones en remblai où le facteur de risque est relativement élevé pour la première (R peut atteindre 20% pour $t_c = 0,5$ jour, voir figure V.15), et plutôt faible ($R < 5\%$ pour $t_c = 0,5$ jour).

Dans la première zone (dénommée zone 1), l'épaisseur de la couche de couverture limoneuse peut passer sous les 2 mètres et la nappe se trouve à une profondeur fluctuant entre environ 4 et 10 mètres. Dans la deuxième zone (dénommée zone 2), la couche de couverture a une épaisseur supérieure à 4 m, et la profondeur de la nappe varie entre une valeur faible (quelques dizaines de cm) et environ 3 m. On se placera pour chacune des zones dans l'hypothèse la plus basse en terme d'épaisseur de couche de couverture, et pour des profondeurs de nappes minimales et maximales. On étudiera l'influence du temps de contact t_c (0,5 et 3

jours), lié au délai d'intervention sur le site, et de l'occurrence d'un épisode pluvieux (t_p de 0,5 à 7 jours de pluie) survenant avant ou après le déversement du polluant, sur la profondeur de pénétration de ce polluant. Ces valeurs d'étude de t_c et t_p sont à rapprocher des valeurs nominales sur le site, à savoir une durée d'intervention de 12 heures (d'après les pompiers), et une moyenne annuelle de précipitation de l'ordre de 850 mm assez régulièrement répartie sur l'année (station Météo France de Maubeuge).

L'étude sera menée pour 3 polluants les plus transportés par route (voir chapitre II): le trichloroéthylène (TCE, polluant de référence), le benzène et le 1,1-dichloroéthane. Les propriétés physico-chimiques de ces polluants sont données dans le tableau (II.7).

V.4.1- Zone à risque faible

Il s'agit de la zone 2, entre 3450 m et 3650 m à partir de la limite sud du synclinal de Bachant. L'épaisseur de couverture considérée est de 4 m.

V.4.1.1- Influence du délai d'intervention

La figure (V.17) représente la profondeur de pénétration pour les 3 polluants étudiés en fonction du temps pour les deux positions P_N extrêmes de la nappe et deux temps de contact $t_c=0,5$ jour et $t_c = 3$ jours.

Pour une position donnée de la nappe, on constate logiquement que la profondeur atteinte pendant la mise en contact est plus grande quand cette dernière a une durée plus élevée. Cette figure permet également d'analyser la propagation après la phase de mise en contact, ce qui peut se présenter si on se contente d'un nettoyage en surface, sans retirer la couche de sol contaminé, ou si le décapage de ce sol n'est pas complet. On voit alors que la migration peut se poursuivre sur des durées importantes, de l'ordre d'une année. A l'issue de cette phase de propagation, la profondeur contaminée est d'autant plus grande que la nappe est plus basse.

En comparant les résultats des 3 polluants, on constate que le benzène possède un comportement identique au TCE pour une nappe peu profonde. Pour une nappe plus basse, le benzène migre moins profondément que le TCE et le 1,1-dichloroéthane, et le front de contamination se stabilise plus rapidement, à une profondeur identique pour les deux valeurs de la profondeur de nappe. On peut attribuer cette différence de comportement en partie au fait que le benzène est moins dense et donc moins entraîné par les forces de pesanteur. A ceci s'ajoute l'effet de la viscosité du benzène (0,00065 kg/m/s) qui est un peu plus grande que celle du TCE (0,000556 kg/m/s). Le déplacement de fluide est d'autant plus lent que son coefficient de viscosité est élevé.

Par comparaison avec le TCE, qui est de même nature bien qu'un peu plus dense, le 1,1-dichloroéthane migre un peu moins profondément, et le front d'infiltration se stabilise plus rapidement. Il semble avoir un comportement intermédiaire entre le TCE et le benzène.

Ainsi, il est d'autant plus important de décapier complètement le sol contaminé que celui-ci a été en contact plus longtemps avec le polluant, et la profondeur atteinte est alors plus grande.

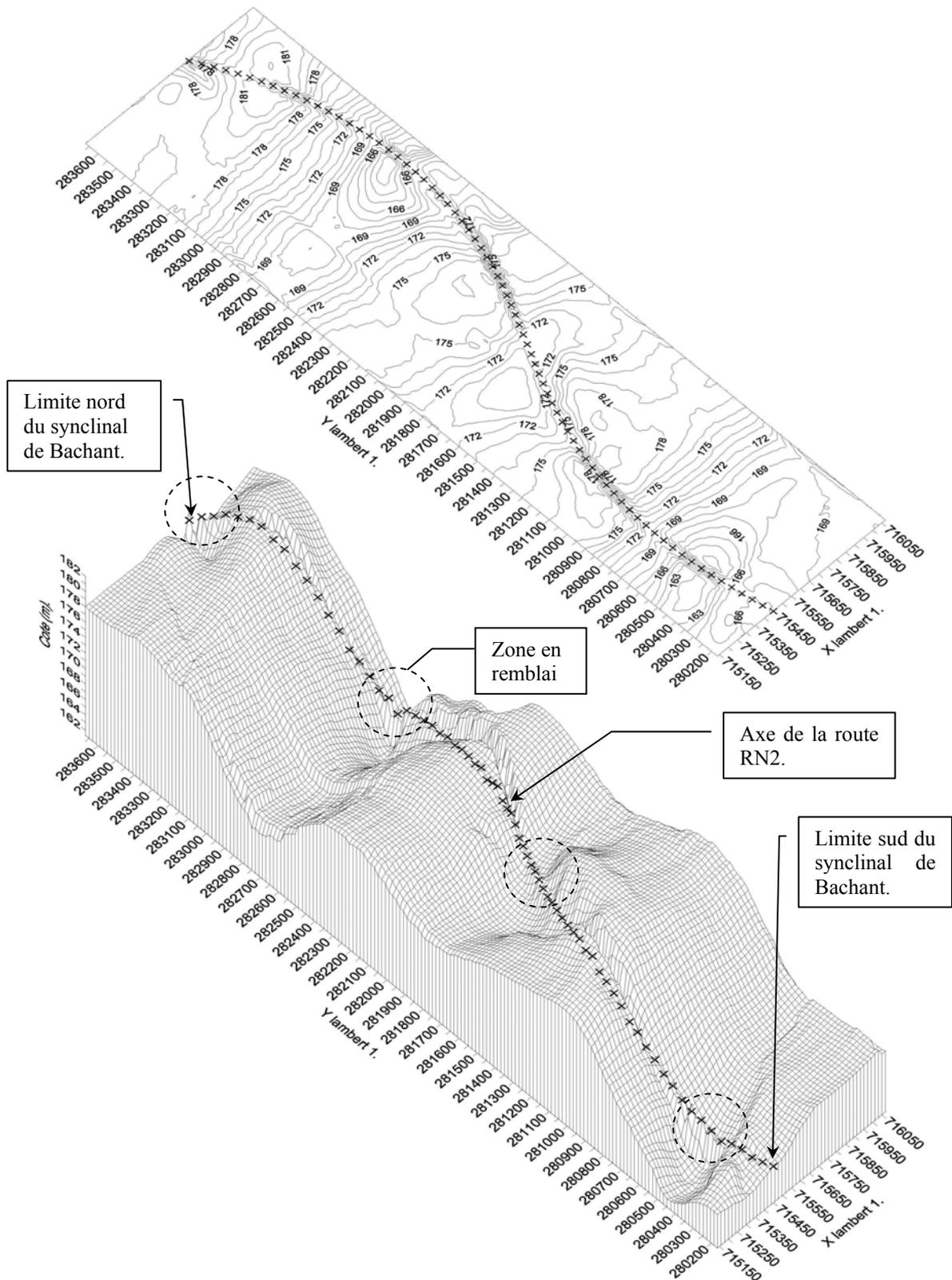


Figure V.16 : Topographie du sol après construction de la route.

V.4.1.2- Influence du lessivage par temps de pluie

On s'intéresse ici à l'effet qu'aurait une période de pluie sur la propagation du polluant, après la phase de mise en contact avec le sol, c'est à dire dans l'hypothèse où, ayant retiré la lame de polluant en surface après un temps de contact t_c (0,5 ou 3 jours dans les cas présentés ici), un épisode pluvieux de durée t_p (t_p compris entre 0,5 et 7 jours) survient avant ou pendant qu'on décape le sol contaminé.

Les simulations effectuées ont montré que pour une nappe haute (0,5 mètre), le front d'infiltration des 3 polluants n'est que très peu affecté par la pluie (on retrouve les courbes de la figure (V.17) pour $t_c = 0,5$ et 3 jours pratiquement inchangées). Par contre, pour une nappe à 3 mètres, si la profondeur contaminée finale reste inchangée, cette profondeur est atteinte d'autant plus rapidement que la pluie tombe plus longtemps (voir par exemple la figure (V.18) pour $t_c = 3$ jours). Les figures concernant les résultats obtenus pour d'autres combinaisons profondeur de nappe – temps de contact sont présentées en annexe 5.

La pluie diminue les forces capillaires, mais joue un effet d'entraînement d'autant plus important que la pluie tombe plus longtemps. Par ailleurs, on peut penser que la partie du polluant solubilisée augmente alors et migre plus facilement.

Il apparaît donc que la pluie faisant suite au déversement accélère notablement l'infiltration du polluant, et ce d'autant plus que la nappe est plus basse. Un temps pluvieux rend plus difficiles les opérations de terrassement, mais supposerait pourtant, sur le plan de la lutte contre la propagation de la pollution, de travailler plus vite dans le décapage du sol contaminé.

V.4.1.3- Effet d'une période de pluie avant le déversement

On considère ici, pour les deux positions de la nappe étudiée ($P_N = 0,5$ et 3m), que le site est soumis à un épisode pluvieux de t_p jours (t_p compris entre 0,5 et 7 jours) avant le déversement accidentel de polluant. La figure (V.19) donne l'évolution du front d'infiltration des 3 polluants pour $t_c = 3$ jours et une nappe à 3 m de profondeur. Les résultats pour les autres valeurs de P_N et t_c sont donnés en annexe 5.

La figure (V.19) montre que pour la nappe en position haute, l'effet de la pluie antérieure au déversement est négligeable sur la propagation des trois polluants, que ce soit pendant le contact de celui-ci avec la surface du sol, ou sur l'évolution éventuelle du front d'infiltration jusqu'à stabilisation de celui-ci.

En revanche, quand la nappe est initialement basse, l'effet est sensible : plus l'épisode pluvieux précédent l'accident est long, moins le front d'infiltration de polluant consécutif à l'accident progresse profondément, et il tend par ailleurs à se stabiliser plus vite. La figure (V.19) illustre ce phénomène, et on voit que pour des épisodes de pluie assez longs précédant l'accident, on retrouve l'allure de front d'infiltration correspondant à une nappe haute (voir figure V.17). La nappe a en effet alors été rechargée par la pluie avant le déversement du polluant.

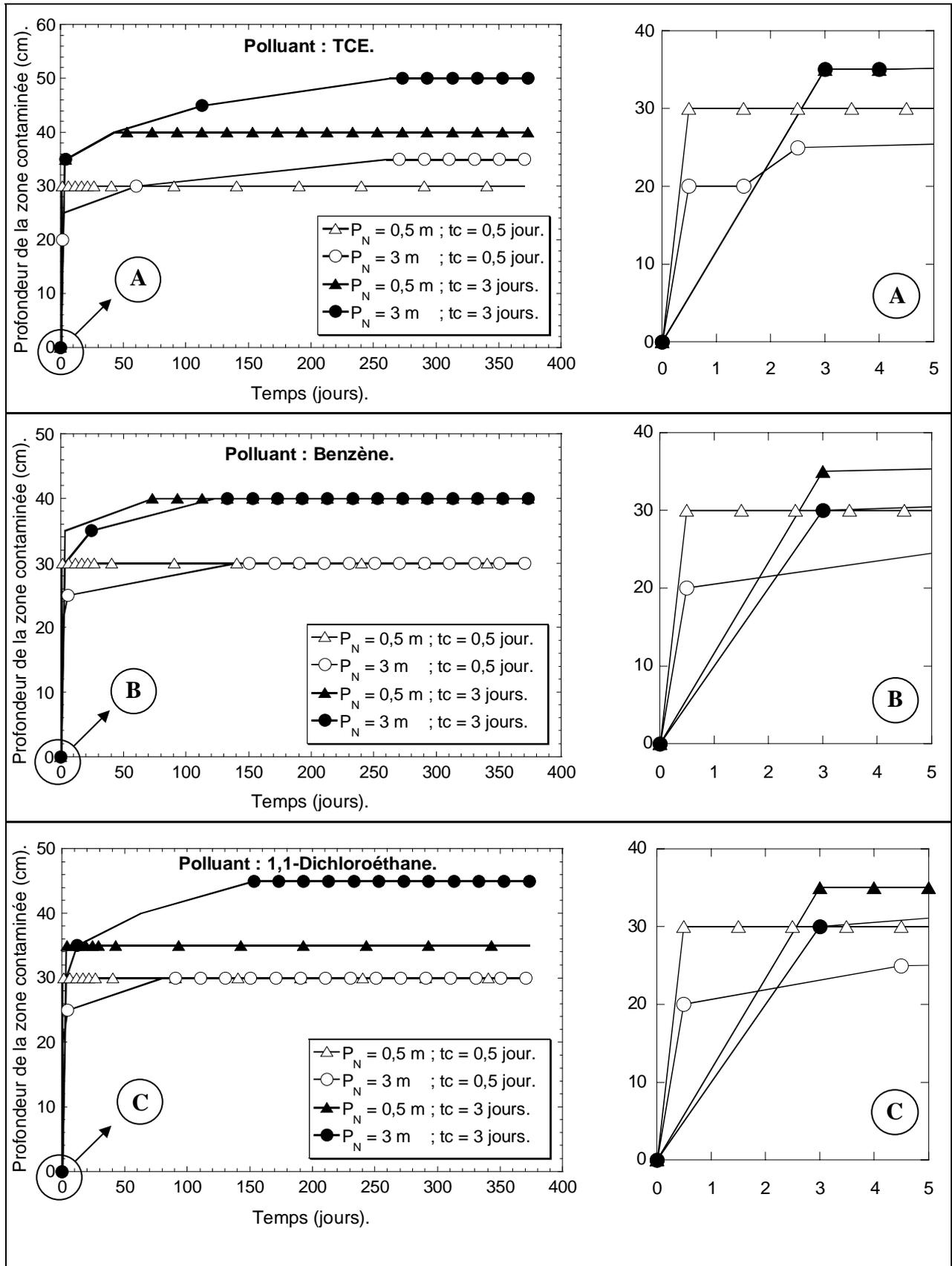


Figure V.17 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 0,5 \text{ jour}$ et $t_c = 3 \text{ jours}$, pour deux profondeurs de la nappe P_N .

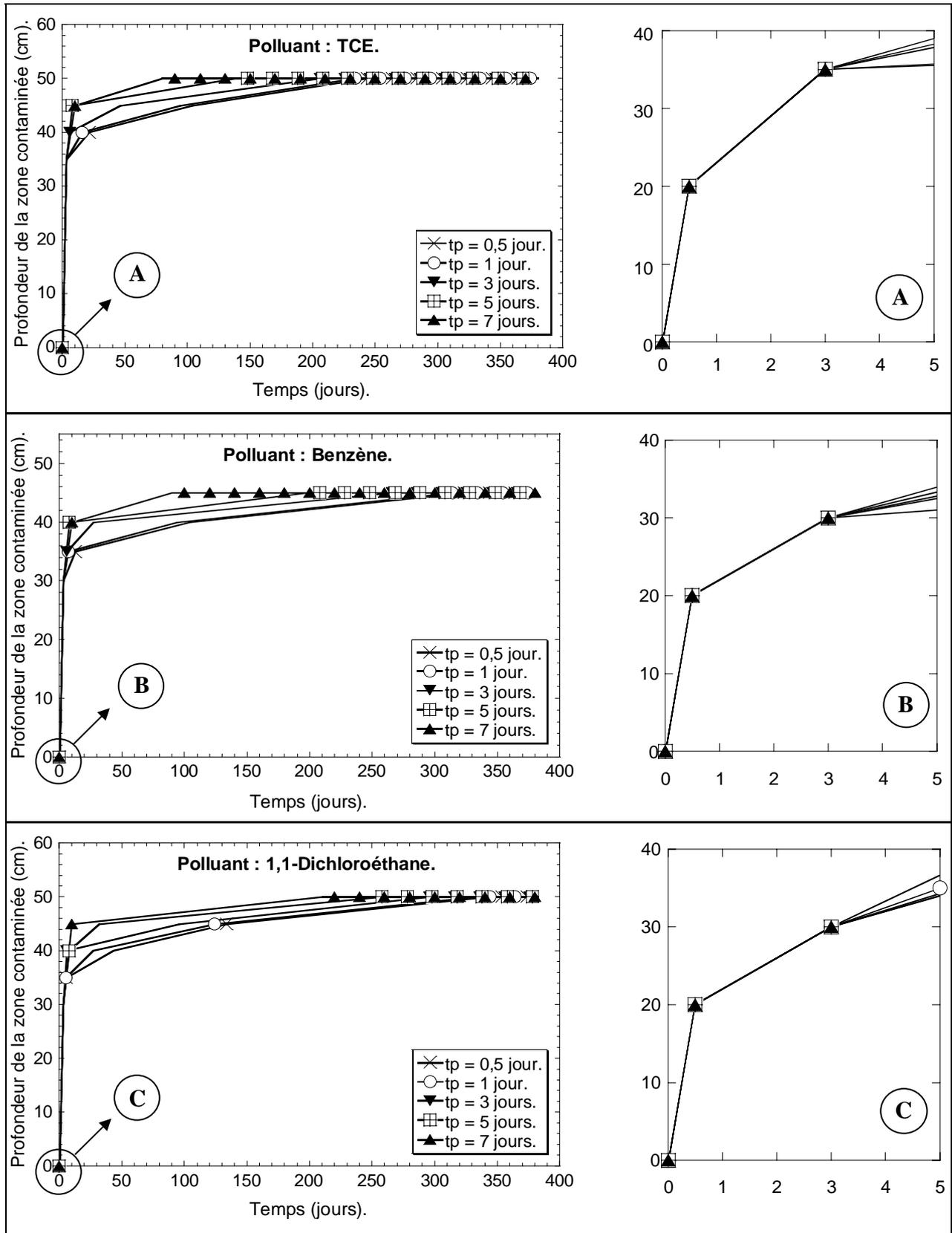


Figure V.18 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 3$ jours, une nappe à 3m et différentes durées t_p de lessivage par temps de pluie.

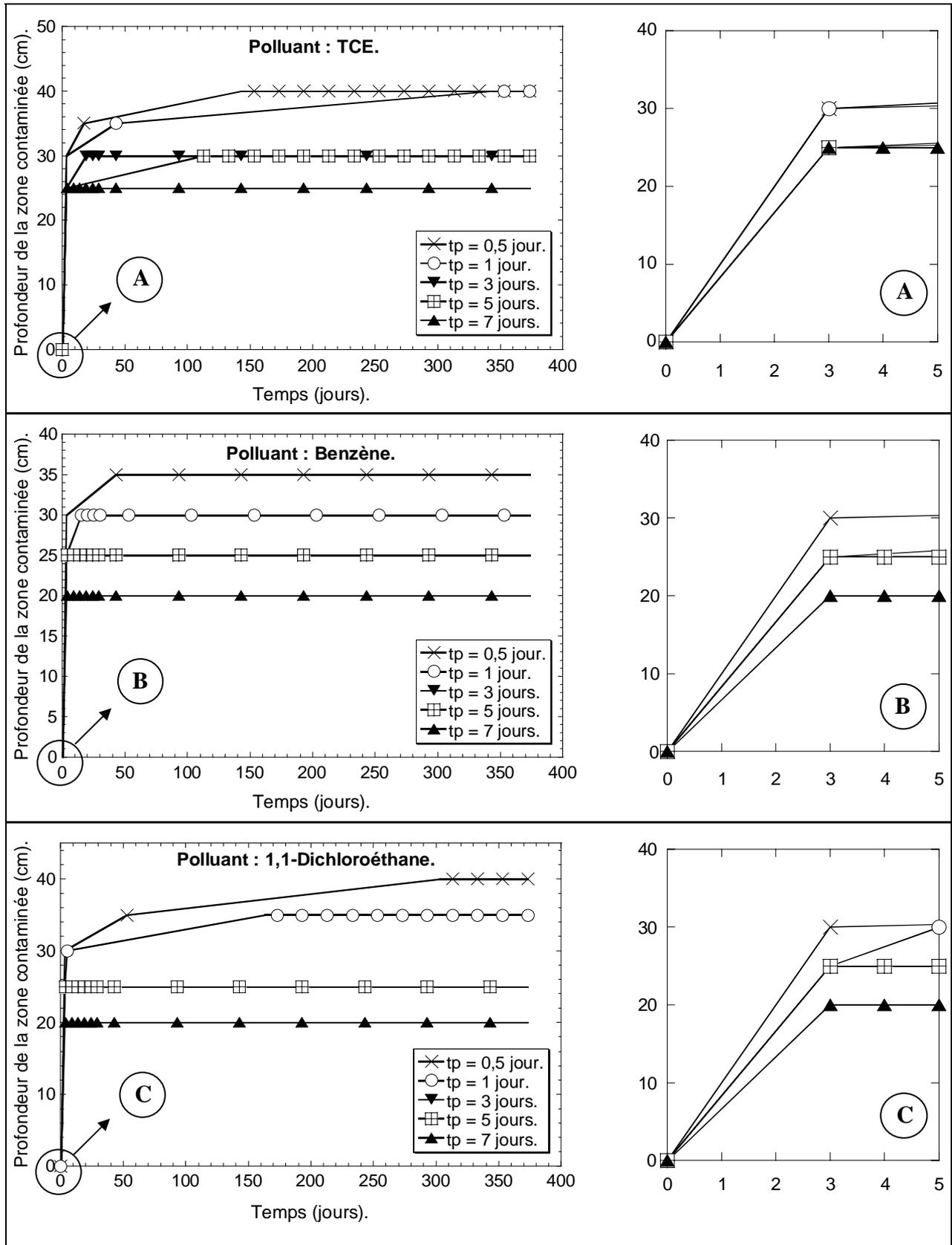


Figure V.19 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 3$ jours, une nappe à 3m et différentes durées t_p de pluie avant le déversement.

V.4.2- Zone présentant un risque notable

Il s'agit de la zone 1, entre 200 m et 600 m à partir de la limite sud du synclinal de Bachant. L'épaisseur de couverture considérée est de 2 m.

V.4.2.1- Influence du délai d'intervention

La figure (V.20) représente la profondeur de pénétration pour les 3 polluants étudiés en fonction du temps pour les deux positions P_N extrêmes de la nappe et deux temps de contact $t_c = 0,5$ jour et $t_c = 3$ jours.

Les phénomènes observés pour la zone 2 (figure V.17 et § V.1.1) se retrouvent ici, à savoir une profondeur de pénétration croissant avec le temps de contact d'une part, et avec la profondeur de la nappe d'autre part. On observe d'ailleurs que, la nappe étant ici plus profonde, les profondeurs de contamination atteintes sont plus importantes. Elles concernent par ailleurs une couche de couverture d'épaisseur plus faible, d'où un facteur de risque R plus fort. Enfin, il se confirme, par rapport aux résultats de la zone 2, que les fronts de contamination se stabilisent plus lentement quand la nappe est plus profonde.

De même, on retrouve, comme pour la zone 2, que le benzène migre moins profondément que le TCE, et que le front de contamination pour ce polluant se stabilise un peu plus vite.

Comme pour la zone 2, on peut conclure qu'il est d'autant plus important de décaper complètement le sol contaminé que celui-ci a été en contact plus longtemps avec le polluant. La profondeur à décaper est alors plus grande. Et dans le cas de la zone 1, la nappe étant globalement plus basse, les profondeurs à décaper sont plus importantes.

V.4.2.2- Influence du lessivage par temps de pluie

On considère toujours une période de pluie après la phase de mise en contact avec le sol, c'est à dire dans l'hypothèse où, ayant retiré la nappe de polluant en surface après un temps de contact t_c , un épisode pluvieux de durée t_p survient avant ou pendant qu'on décape le sol contaminé.

La figure (V.21) montre l'évolution du front de contamination des trois polluants avec le temps pour la nappe à 10m et un temps du contact du polluant à la surface du sol $t_c = 3$ jours, suivi d'une pluie de durée t_p variant entre 0,5 et 7 jours. Les résultats pour les autres valeurs de P_N et t_c sont donnés en annexe 5.

En comparant les figures (V.20) et (V.21) on voit que l'effet de la pluie survenant après le déversement est négligeable si sa durée est faible. Si elle dure plusieurs jours, elle augmente légèrement la profondeur finale du front d'infiltration du polluant. La vitesse de stabilisation du front de pollution augmente par ailleurs avec la durée de pluie t_p . Dans le cas de cette zone 1, où la nappe est sensiblement plus profonde que dans la zone 2, l'augmentation de la saturation du sol par la pluie, et donc la diminution des forces de capillarité, qui avait pour effet de freiner la progression du front d'infiltration du benzène, se fait moins sentir. L'effet d'entraînement de l'eau (lessivage) explique l'augmentation de la vitesse de migration et de la profondeur du front stabilisé sous l'effet de la pluie.

V.4.2.3- Effet d'une période de pluie avant le déversement

La figure (V.22) donne l'évolution du front d'infiltration des 3 polluants pour $t_c = 3$ jours et une nappe à 10 m de profondeur. Les résultats pour les autres valeurs de P_N et t_c sont donnés en annexe 5.

L'effet de la pluie antérieure au déversement est sensible : plus l'épisode pluvieux précédent l'accident est long, moins le front d'infiltration des polluants consécutifs à l'accident progresse profondément, et il tend par ailleurs à se stabiliser plus vite. On retrouve l'effet de recharge de la nappe par la pluie avant le déversement du polluant, qu'on avait constaté pour la zone 2. Cet effet est d'ailleurs proportionnellement moins important que dans le cas de la zone 2, où la nappe était moins profonde, et où cet effet de recharge se faisait plus sentir (figure V.19).

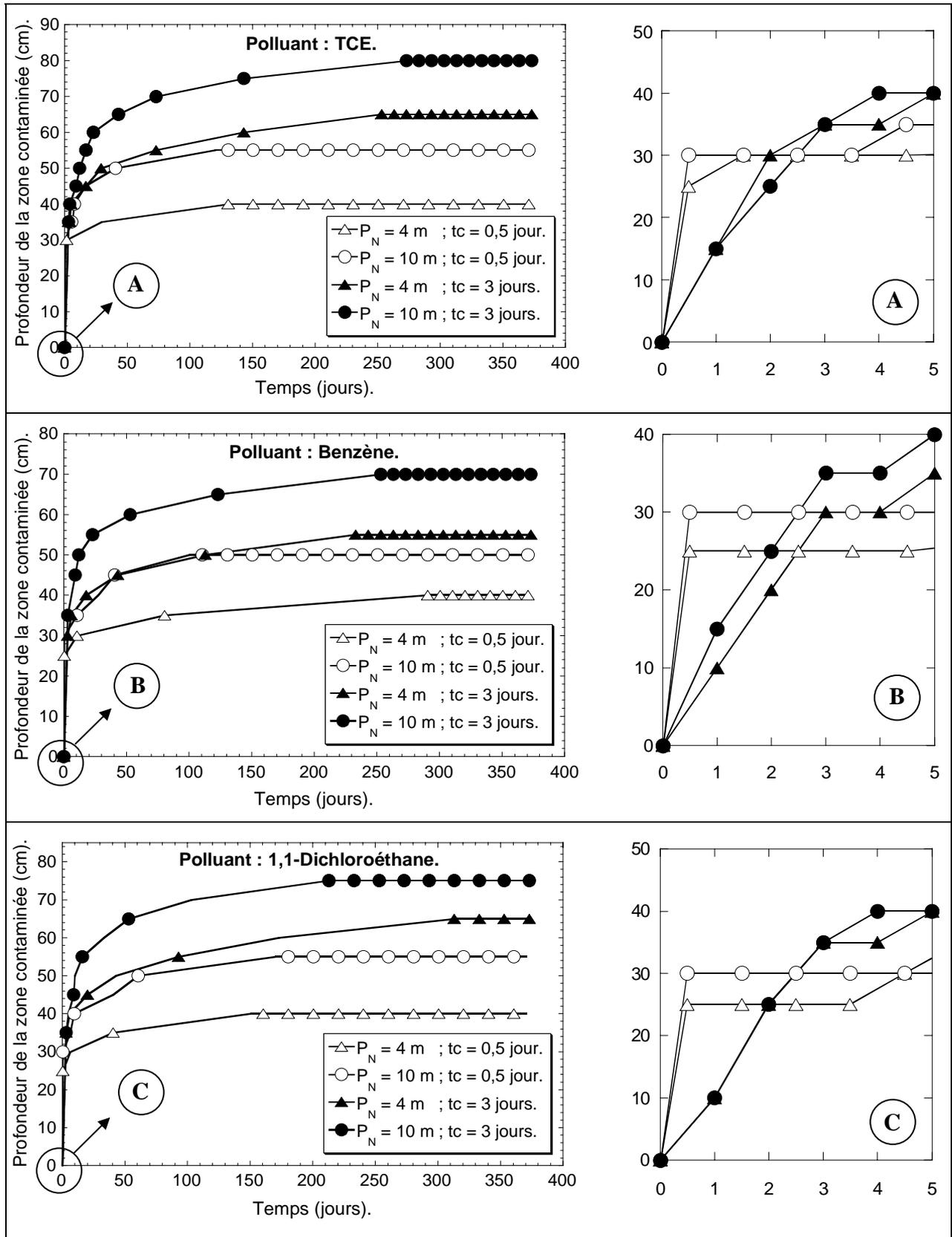


Figure V.20 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 0,5 \text{ jour}$ et $t_c = 3 \text{ jours}$, pour deux profondeurs de la nappe P_N .

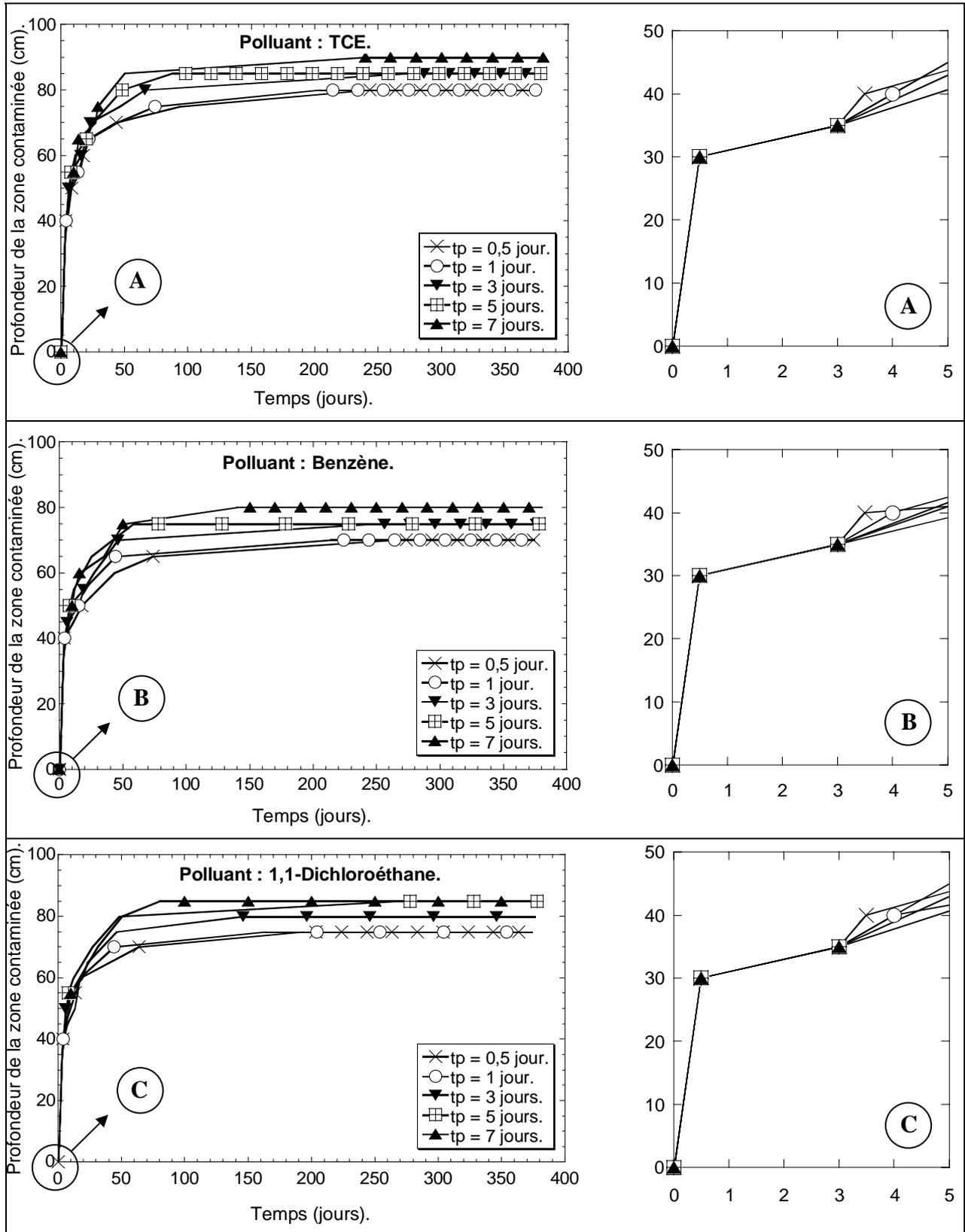


Figure V.21 : Front de pénétration des 3 polluants pour $t_c = 3$ jours, une nappe à 10 m et différentes durées t_p de lessivage par temps de pluie.

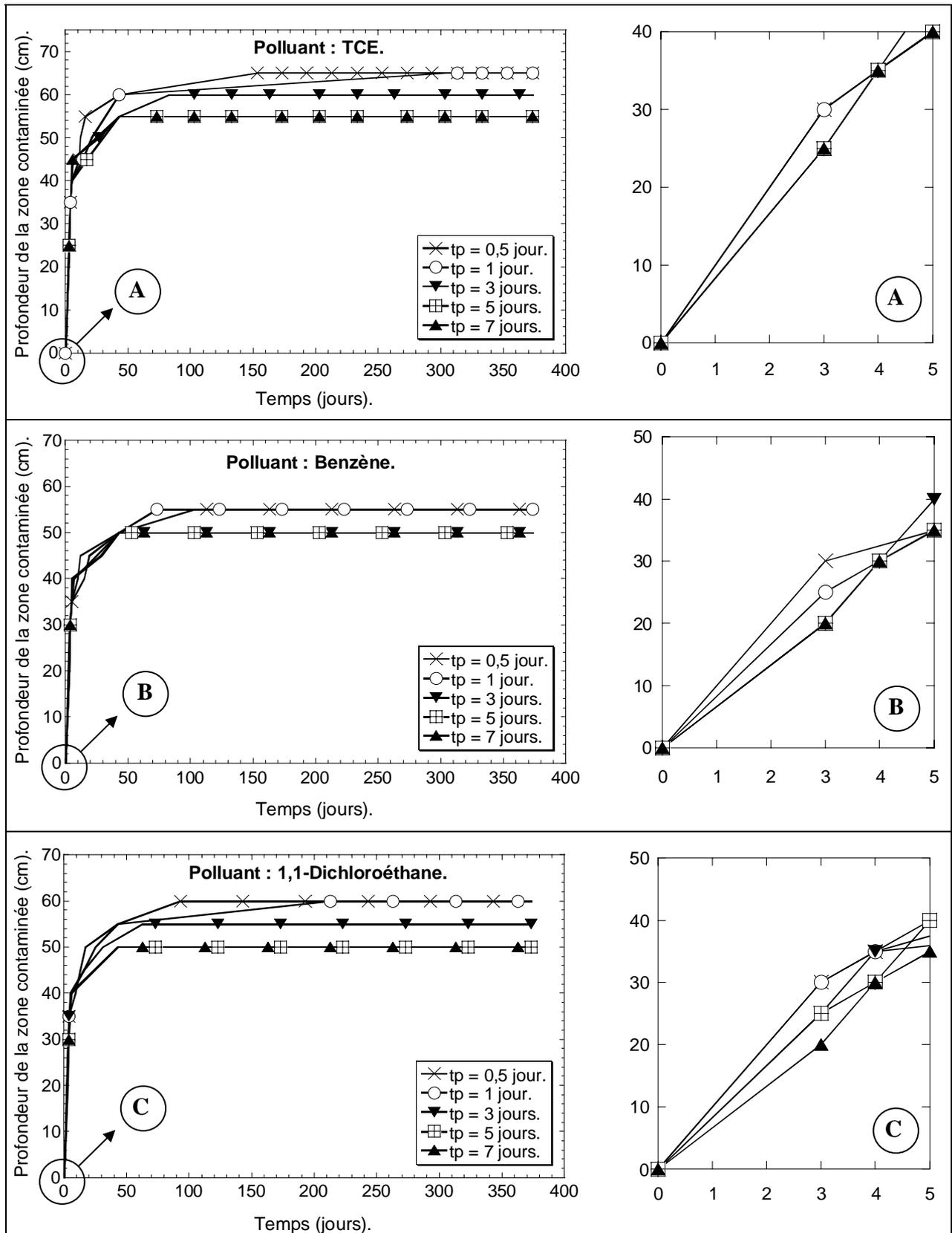


Figure V.22 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 3$ jours, une nappe à 10m et différentes durées t_p de pluie avant le déversement

V.5- Conclusions

Ce chapitre a comporté une modélisation à l'aide des réseaux de neurones de la migration de polluants dans les sols. L'analyse de différentes sections a permis d'étudier l'impact d'un projet routier sur la contamination de la nappe.

Le modèle est basé ici sur l'évaluation de la contamination d'un sol non saturé lors d'un déversement accidentel de trichloroéthylène. L'utilisation de ce modèle le long de la future RN2 entre Avesnes sur Helpe et Maubeuge a permis d'identifier les zones à risque. Une étude de risque plus approfondie (effet du délai d'intervention, incidence d'une météo pluvieuse avant ou après l'accident, cas d'autres polluants) a été ensuite effectuée dans ces zones. Cette étude a montré que :

- La profondeur contaminée augmente avec le temps de contact sol-polluant. Si le sol n'est pas décapé après nettoyage en surface, la migration peut se poursuivre sur plusieurs mois avant que le front d'infiltration ne se stabilise. On a montré qu'une pollution résiduelle peut migrer plus loin et plus lentement si la nappe est plus basse.
- Une période de pluie après le déversement (*lessivage* de la pollution) conduit généralement à une accélération de l'infiltration et ce d'autant plus que la nappe est plus basse. Ce phénomène est cependant peu sensible (quelques centimètres de différence par rapport à l'infiltration en l'absence de pluie) au cours des premiers jours d'infiltration.
- Un épisode pluvieux avant le déversement réduit la profondeur d'infiltration d'autant plus que la durée de la pluie est plus longue. L'effet de recharge de la nappe est faible pour une nappe peu profonde (peu d'effets capillaires) ou au contraire pour une nappe très profonde, car alors les pluies considérées ici sont insuffisantes pour modifier significativement le profil de saturation en eau.
- Le benzène (un des constituants des carburants) migre un peu plus rapidement, mais un peu moins profondément que le trichloroéthylène ou le 1,1-dichloroéthane (solvants chlorés).

PARTIE C

ÉTUDE DU TRANSFERT DE POLLUANTS
MISCIBLES DANS LA ZONE NON SATURÉE
DES SOLS.

APPLICATION:

POLLUTION DIFFUSE PAR LES NITRATES
D'ORIGINE AGRICOLE.

Chapitre VI : Pollution diffuse des nitrates d'origine agricole.

VI.1- Introduction

Les eaux souterraines sont une source importante d'eau de distribution publique, et ces sources sont souvent vulnérables à la contamination (Solley *et al.*, 1993). Les nitrates (NO_3^-) sont les polluants les plus souvent trouvés dans les eaux souterraines peu profondes du fait de sources ponctuelles (rejet d'eaux usées (fosses septiques)) et diffuses (agriculture) (Sivertun et Prange, 2003 ; Delgado et Shaffer, 2002). Beaucoup d'études ont prouvé que les pratiques agricoles, l'industrie laitière, et les lagunes sont la cause probable des niveaux excessifs de nitrates dans les eaux souterraines peu profondes (Lake *et al.*, 2003 ; Mitchell *et al.*, 2003 ; Carey, 2002). Des concentrations élevées en nitrates dans l'eau potable sont liées aux problèmes de santé tels que la méthémoglobinémie chez les enfants et le cancer de l'estomac chez les adultes (Wolfe et Patz, 2002 ; Hall *et al.*, 2001). Il existe des valeurs limites de concentration en nitrates admissibles dans l'eau potable. La Directive sur la qualité de l'eau potable 98/83/CE définit une valeur limite obligatoire fixée à 50 mg/litre, ce qui correspond à la valeur recommandée par l'Organisation Mondiale de la Santé. L'azote (N_2) est un élément nutritif essentiel pour les plantes (Delgado et Shaffer, 2002 ; Follett et Delgado, 2002 ; Delgado, 2001b). Néanmoins, quand l'épandage d'azote excède la demande de la plante et la capacité de dénitrification du sol, l'azote peut migrer jusqu'aux eaux souterraines, habituellement sous forme de nitrates. L'augmentation de la pollution en nitrates des eaux souterraines a mené à l'abandon de nombreux captages d'eaux dans des zones agricoles (Lasserre *et al.*, 1999). Dans de telles zones, des solutions peuvent être considérées pour réduire au minimum le risque de nitrates migrant aux eaux souterraines (Tesoriero et Voss, 1997 ; Lee *et al.*, 1991). La quantification précise des nitrates migrant aux eaux souterraines est difficile. Les nitrates migrant de la zone non saturée du sol présentent une interaction complexe entre l'utilisation du sol, le chargement d'azote, la recharge d'eaux souterraines, le cycle d'azote du sol, les caractéristiques du sol, et la profondeur du sol.

En Europe, et notamment en France, les concentrations en nitrates observées dans les eaux souterraines atteignent et dépassent assez fréquemment le seuil de potabilité, ce qui du point de vue environnemental constitue un problème sensible. Cette situation a conduit les pouvoirs publics à élaborer une politique de gestion environnementale pour la protection des ressources en eaux souterraines. La contamination des aquifères libres par les composés azotés issus des fertilisations est un problème crucial pour les régions d'intense activité agricole.

Dans l'Audomarois (département du Pas-de-Calais) et plus particulièrement dans le secteur de Houlle et Moulle, cette situation entraîne une détérioration sensible des ressources en eau potable provenant d'aquifères libres et génère des difficultés croissantes quant à leur gestion. L'eau de la nappe du champ captant d'Houlle et Moulle est indispensable à l'alimentation en eau potable des habitants de la Commune Urbaine de Dunkerque et de quelques communes dans le secteur d'Houlle et Moulle. La qualité de l'eau de la craie est affectée par une concentration significative en nitrates. Ce champ captant est classé irremplaçable dans le SDAGE (Schéma Directeur d'Aménagement et de Gestion des Eaux) Artois Picardie.

Les administrations concernées ont demandé la réalisation d'une étude de l'impact des flux azotés provenant de la surface sur la nappe de la craie et du transfert de la matière azotée dans la zone non saturée.

Notre contribution à cette étude consiste à modéliser le transfert des nitrates dans la zone non saturée en dessous de la zone racinaire afin de déterminer les flux d'eau et leur concentration en nitrates au toit de la nappe en fonction du temps. Elle s'insère dans le travail effectué par la société Générale des Eaux, qui consiste à estimer l'évolution des concentrations des nitrates à la surface de la nappe de craie.

Les résultats de la partie de l'étude qui traite de la modélisation de la transformation et du transport de l'azote dans la zone racinaire de la zone d'étude (simulation par Agriflux (Banton et Larocque, 1997)) ont été extraits du rapport Serhal (2004). Ces résultats, qui consistent à calculer le flux d'eau et sa concentration en nitrates en fonction du temps à la base de la zone racinaire, sont par la suite utilisés comme des paramètres d'entrées dans le logiciel WHI UnSat Suite Plus (VS2DT) afin de simuler la migration des nitrates en dessous de la zone racinaire.

La démarche suivie pour modéliser les flux d'eau et leur concentration en nitrates à la surface de la nappe est analogue à celle qu'on a utilisée dans la partie B de cette étude. Tout d'abord, nous avons déterminé quels paramètres ont la plus grande influence sur la migration des nitrates dans la zone non saturée (en dessous de la zone racinaire) en effectuant une étude paramétrique, développée à partir d'un modèle numérique (Module VS2DT du logiciel WHI UnSat Suite Plus, *Waterloo Hydrogeologic Inc.*, 2002). Ensuite, nous avons constitué une base de données en calculant les flux d'eau et leur concentration en nitrates à la surface de la nappe en utilisant ce logiciel pour des valeurs des paramètres d'entrée choisis dans un intervalle représentatif des variations observées dans le secteur d'étude. Puis, nous avons utilisé cette base de données pour créer un modèle de RNA (Najjar, 1999) qui permet de déterminer d'une façon très rapide l'évolution des flux d'eau et leur concentration en nitrates au toit de la nappe en n'importe quel point du secteur d'étude en fonction du temps. Ce modèle est ensuite appliqué à la construction de cartes de contamination en nitrates à la surface de la nappe.

VI.2- Travaux antérieurs sur la migration des nitrates vers les nappes

Les nitrates, très solubles, transitent sous forme dissoute dans l'eau du sol, dans les domaines non saturés et saturés. En non saturé, on considère souvent que le transfert de solutés se fait par *piston flow* : l'eau de pluie qui s'infiltre déplace l'eau déjà présente dans le sol vers la base du profil, et après chaque averse, le front de migration descend en fonction du volume infiltré et peut se mélanger avec l'eau déjà présente. Il faut rajouter à cela les transferts par les macropores (Beven et Germann, 1982), qui agissent comme des courts circuits et peuvent diminuer considérablement le temps de transfert du soluté. On considère aussi que toute la porosité du sol n'est pas utilisée pour le transfert de l'eau et de solutés, et qu'une partie est ainsi immobilisée temporairement. En saturé, le déplacement du soluté se fait en partie par convection avec l'eau, et en partie par dispersion, suivant le gradient de concentration du soluté (Knox *et al.*, 1993).

Le transfert des nitrates dans les sols résulte d'un grand nombre de facteurs interdépendants (Mollard *et al.*, 1998): facteurs climatologiques (importance des précipitations, leur répartition dans le temps, températures, évapotranspiration), facteurs agrologiques (propriétés physico-chimiques, hydrodynamiques et microbiologiques des sols), facteurs agronomiques (type de culture, travaux culturaux, niveau de fertilisation, couverture végétale, profondeur d'enracinement).

De nombreux auteurs ont suivi les effets de l'addition de fertilisants organiques sur la production de nitrates, les conséquences financières de l'usage intensif des engrais chimiques non adaptés aux besoins des cultures, la migration des nitrates dans le sol et ses effets polluants sur l'environnement (Singh *et al.*, 2002 ; Trindade *et al.*, 2001 ; Schroth *et al.*, 2001 ; Hadas *et al.*, 1999 ; Cambardella *et al.*, 1999 ; Mary *et al.*, 1999 ; Cambardella et Elliot, 1993). Mary (1992) considère qu'une partie de la pollution nitrique constatée aujourd'hui pourrait résulter d'une plus forte intensité de la minéralisation des sols qu'autrefois, même si le taux de matière organique a diminué. En effet, quand on apporte de l'azote, une partie (20 à 30 %) est prélevée par la microflore du sol et se trouve convertie en humus (Chaney, 1990); or cet azote récemment organisé est plus facilement minéralisable que l'humus ancien. L'augmentation des intrants azotés conduirait donc à augmenter le volume des restitutions organiques du sol dont la vitesse de renouvellement est rapide; ceci provoquerait un accroissement de la capacité de minéralisation des sols (Shen *et al.*, 1989). Cet accroissement de minéralisation serait donc la conséquence indirecte et à long terme d'éventuelle intensification des amendements agricoles. Cette hypothèse est confirmée par des travaux anglais (Addiscott *et al.*, 1991) et met en évidence que seul un retour à des niveaux de production beaucoup plus faibles pourrait permettre de diminuer notablement la minéralisation dans les sols d'agriculture intensive et donc de réduire les risques de fuites de nitrates

Cambardella et Elliot (1993) ont réalisé une étude comparative entre un sol naturel, un sol labouré et un troisième sol avec paillis. Ils ont constaté que la dégradation de la structure des agrégats organiques des sols labourés durant plusieurs années consécutives produit une perte importante de C et de N. Les travaux intensifs entraînent la formation de surfaces à fort ruissellement qui conduisent à une perte d'azote dans l'eau ruisselée. Owens et Edwards (1993) ont montré que la perte de nitrates par ruissellement est 3,5 fois plus importante pour un sol labouré que pour des sols cultivés sans labour avec une rotation soja-riz. Ils ont constaté que sur 8 averses, 7 produisent du ruissellement sur un sol labouré sans culture d'intersaison, alors que sur sols en présence de paillis ou de culture d'intersaison seul un événement pluvieux produit du ruissellement. Tindall *et al.* (1995) ont comparé les réactions d'une argile et d'un sable face au lessivage des nitrates et aux réactions de dénitrification probable. Les résultats montrent que la dynamique du transport des nitrates et les transformations dans la zone non saturée sont affectées par de petites variations locales de profil de teneurs en eau, du coefficient de diffusion des gaz dans le sol, de la quantité de NO_3^- qui transite à travers le sol, de la solubilité de N_2O .

La migration des nitrates est retardée sur l'argile mais elle s'effectue. En conditions non saturées, l'argile a peu tendance à dénitrifier quel que soit la teneur en eau de celle-ci. En général l'activité dénitrifiante augmente quand la teneur en eau croît. Singh *et al.* (2002) ont évalué les flux superficiels de NO_3^- , NH_4^+ et NO_2^- . Ils constatent que l'azote sous forme nitrates, peut se perdre très rapidement au cours des deux ou trois premières pluies ruisselantes. La forme d'azote NH_4^+ , qui par ailleurs se volatilise facilement, peut se perdre en une seule fois par ruissellement. Schroth *et al.* (2001) mentionnent que la combinaison d'une légumineuse avec la culture principale dans les systèmes agricoles permanents permet une réutilisation de l'azote minéral et donc la réduction des éventuelles lixiviations de nitrates.

Trindade *et al.* (2001) ont mis en évidence les effets d'une combinaison d'une culture principale de maïs et d'une culture mixte d'hiver (avoine - pâturage) sur l'azote qui, après la récolte du maïs, peut migrer lors des premières pluies du cycle suivant. Leurs résultats montrent que les plantes de la culture d'hiver peuvent immobiliser entre 83 et 116 kg N.ha⁻¹ qui en leur absence pouvaient être lixiviés. Les auteurs expliquent qu'il subsiste toujours une quantité d'azote dans le sol qui reste susceptible d'être lixiviée car les cultures principales comme le maïs n'ont pas une efficacité suffisante pour absorber la totalité de l'azote produite pendant la saison de culture.

D'autres auteurs (Baillon, 2000 ; Chiesi, 1993) ont étudié le taux de nitrates qui migrent vers la nappe et leur vitesse de migration dans la zone non saturée de la craie. Leurs méthodes consistent à comparer des profils successifs de nitrates sur une même parcelle à plusieurs années d'intervalle en effectuant une prise d'échantillon de sol (figure VI.1). Schématiquement, la propagation des solutés dans la zone non saturée crayeuse revient au déplacement d'une onde s'étalant de plus en plus dans le sens vertical au cours de son déplacement (dispersion hydrodynamique). Les chlorures ont été analysés car ils sont les témoins d'une migration normale en profondeur des nitrates, sans une interaction chimique avec l'engrais. Ce paramètre migre à la même vitesse que les nitrates, mais ils ne sont ni détruits ni relargués au fur et à mesure de leur migration.

Chiesi (1993) remarque un déplacement plus rapide des nitrates si l'historique des pluies efficaces est important. L'épaisseur du recouvrement de la craie intervient sur la vitesse de déplacement. Si celle-ci dépasse 1,2 m, seules les pluies efficaces comptent tandis que si elle est inférieure, la capillarité intervient également.

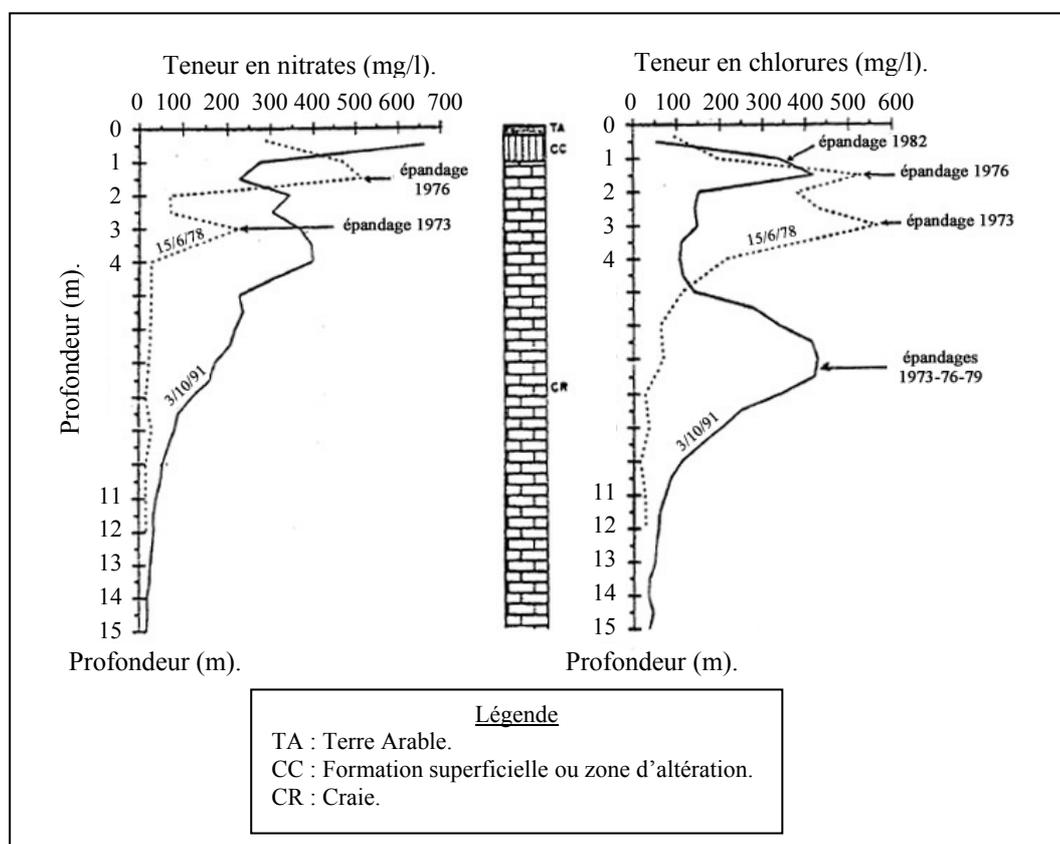


Figure VI.1 : Profils nitrates et chlorures obtenus en 1978 et 1991 en Champagne (Chiesi, 1993).

Afin d'estimer la vitesse moyenne de migration des nitrates dans la zone non saturée de la craie, Baillon (2000) et Lacherez (1998) ont utilisée la méthode qui repose sur les bilans agronomiques (AZOBIL (Rémy, 1981) et CORPEN (1991,1986)) où il s'agit d'équilibrer les apports avec les exportations ou les besoins avec les fournitures à la culture. A partir d'une vitesse moyenne d'infiltration, différentes hypothèses sont testées pour améliorer le calage du bilan par rapport au profil.

La vitesse moyenne de transfert des nitrates est de 0,3 à 1,25 m/an selon la nature du couvert végétal et le recouvrement de la craie pour Lacherez (1997), Chiesi (1993), Wellings et

Bell (1980), Vachier *et al.* (1979). La comparaison des résultats de deux campagnes de sondages (en 1986 et 1999) effectués en Cambrésis a montré une croissance moyenne de 0,2 mg/l de nitrates par an à la surface de la nappe (El Tabach, 2000).

VI.3- Présentation de la zone d'étude et résultats des suivis in situ

VI.3.1- Délimitation de la zone d'étude

La zone d'étude comprend 55 communes, qui constituent l'essentiel du bassin versant d'Houlle et Moulle, où se trouvent quinze captages qui alimentent en eau potable la communauté urbaine de Dunkerque (figure VI.2).

Ces captages sont gérés par la Lyonnaise des eaux, et répartis le long de la bordure Ouest du Marais Audomarois sur les communes de Houlle, Moulle, Eperlecques et Bayenghem-Les-Eperlecques (figure VI.3).

La zone d'étude de 410 km² s'inscrit dans une fenêtre de 17500m*23500m, dont les coordonnées sont (Lambert II étendu) :

$X_{\min} = 575000$	$Y_{\min} = 2633000$
$X_{\max} = 598500$	$Y_{\max} = 2650500$

VI.3.2- Contexte hydrogéologique

Le contexte géologique de la zone d'étude comprend les formations suivantes :

- A l'Ouest, la série crayeuse comprenant à la base les formations de la craie marneuse du Cénomaniens et du Turonien inférieur, surmontées par de la craie franche du Turonien Supérieur et du Sénonien ; l'ensemble a un pendage général vers l'Est-Nord-Est ; La série crayeuse repose sur les formations jurassiques qui affleurent à l'Ouest.
- A partir du méridien de Saint-Omer et en allant vers l'Est, la série crayeuse s'enneie sous la formation tertiaire comprenant à la base l'Argile de Louvil, surmontée par le Sable d'Ostricourt, eux-mêmes surmontés par l'Argile de Flandres.

La nappe la plus exploitée est celle de la craie Séno-Turonienne, la nappe s'écoule du Sud-Ouest vers le Nord-Est. Cette nappe est libre dans la partie Sud-Ouest et centre du bassin où la craie affleure, et devient captive au Nord-Est où la craie s'enneie sous les formations de l'Argile de Louvil.

Plusieurs stations météorologiques sont situées autour de la zone d'étude. La plus proche est celle de Saint Omer, qui se trouve au sud de la zone ; Elle indique une précipitation annuelle moyenne de 843mm, et une évapotranspiration de 634mm.

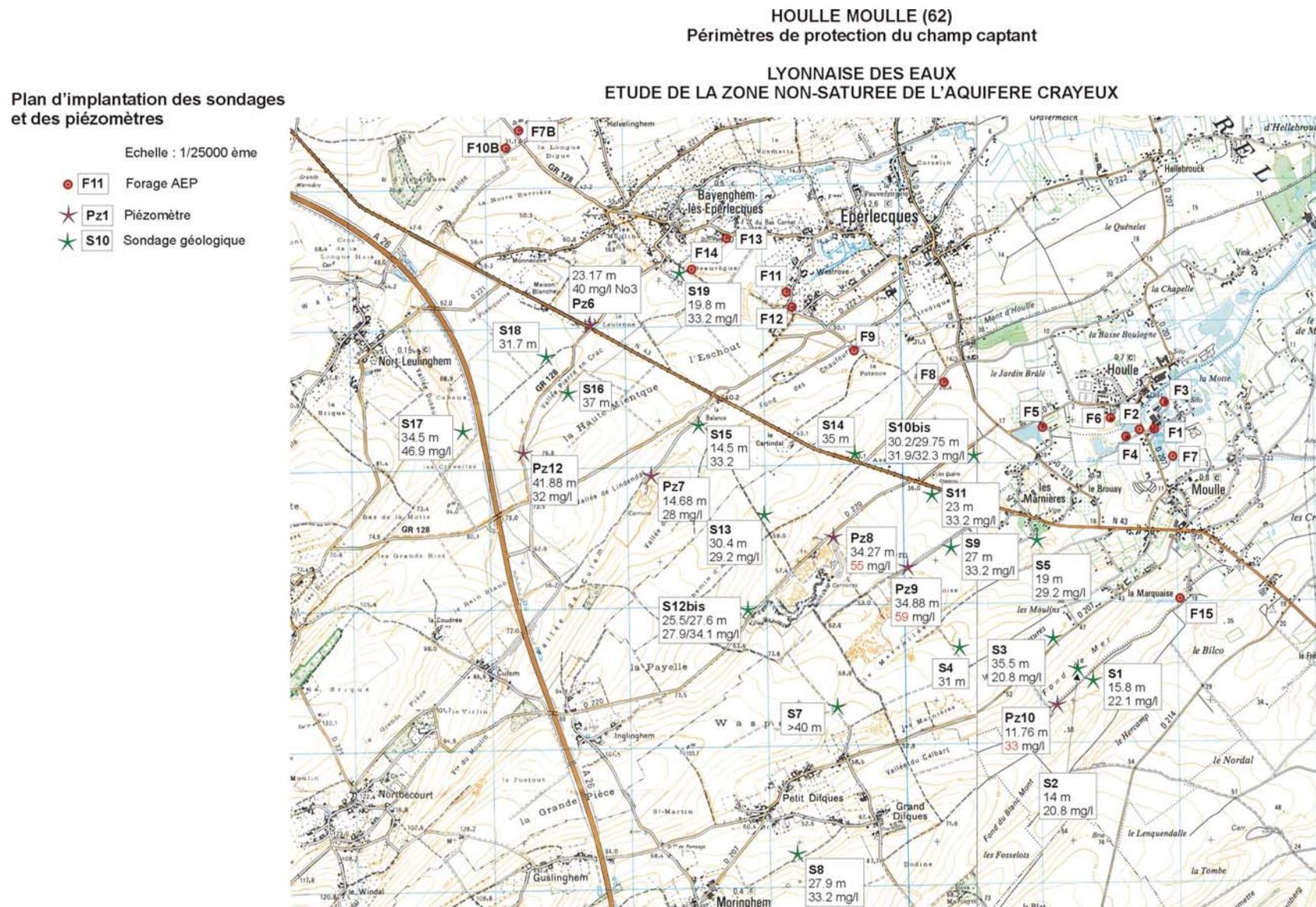


Figure VI.2 : Plan d'implantation des sondages, piézomètres et des forages A.E.P. (Bastin-Lacherez, 2004).

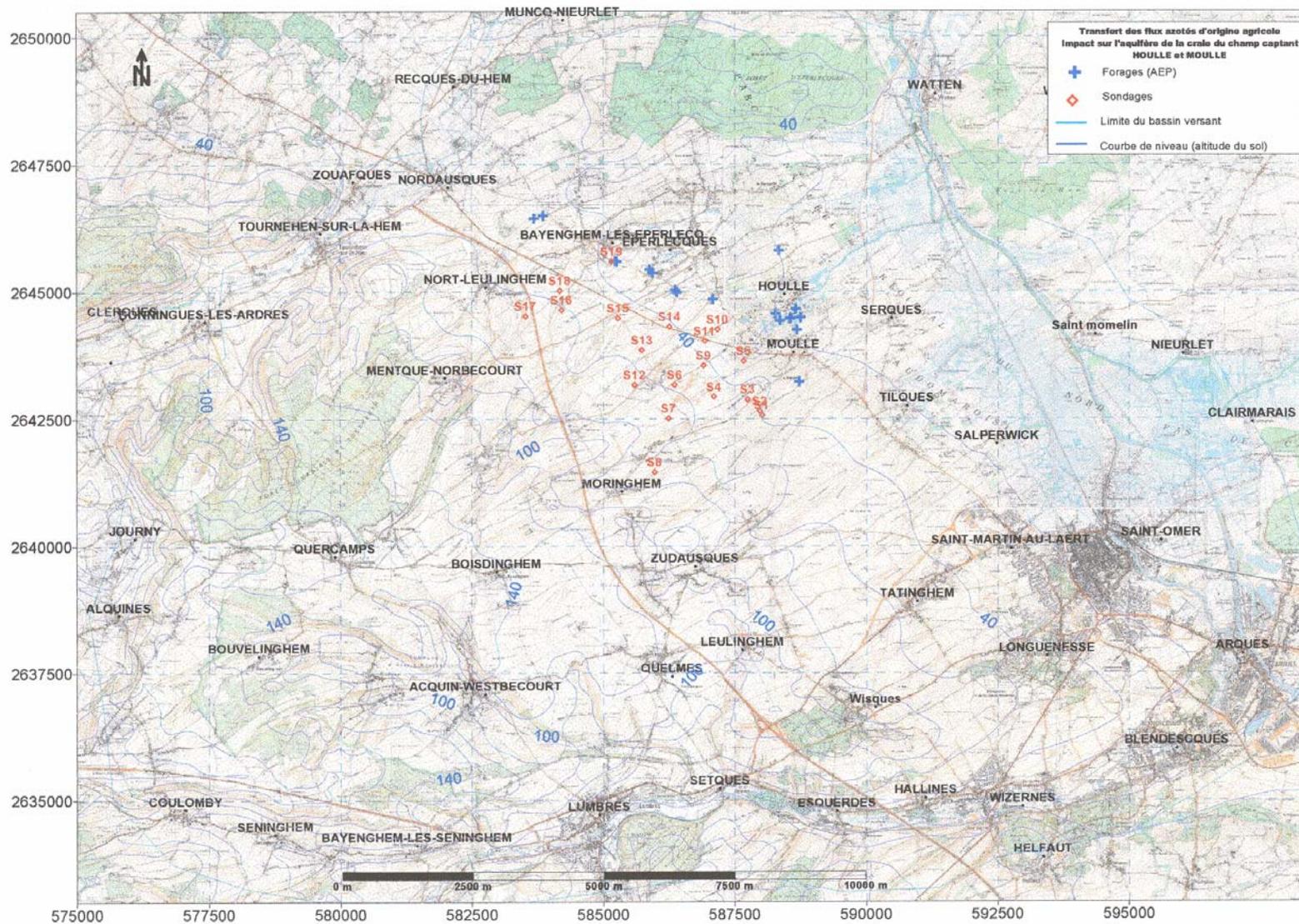


Figure VI.3 : Délimitation de la zone d'étude et localisation des sondages (d'après Serhal, 2004).

VI.3.3- Résultat des suivis in situ

Afin d'apprécier les évolutions de multiples facteurs agissant plus ou moins directement sur la qualité des eaux souterraines, plusieurs suivis ont été réalisés.

VI.3.3.1- Campagne de sondages

L'opération a été confiée à l'entreprise de sondages PONTIGNAC, 19 sondages ont été réalisés à la tarière hélicoïdale en décembre 2002-début 2003 (figure VI.2).

L'analyse des profils du sol nous montre une hétérogénéité spatiale importante. On constate que tous les profils du sol commencent par une couche de terre végétale silteuse, et se terminent dans la couche crayeuse, mais les couches intermédiaires varient énormément d'un sondage à l'autre.

Le tableau (VI.1) donne l'épaisseur de la couche de couverture et de la craie dans les sondages réalisés, et la profondeur de la nappe au moment de la réalisation de ces sondages (fin 2002).

Sondage	Epaisseur de la couche de couverture (m)	Epaisseur de la craie (m)	Profondeur de la nappe (m)
S1	0,3	19	15,8
S2	5	15	14
S3	12,5	7,5	35,5
S4	3,8	13	31
S5	7	13	19
S6	0,1	19,9	35
S7	1,1	18,9	23
S8	1,5	18,5	27,9
S9	3	14	27
S10	0,4	19,6	30,2
S11	1,5	18,5	23
S12	1,5	18,5	25,5
S13	4	16	30,4
S14	3,5	16,5	35
S15	5,6	14,5	14,5
S16	0,5	19,8	37
S17	0,1	19,7	34,5
S18	2,7	17,3	31,7
S19	7,1	12,9	19,8

Tableau VI.1 : Valeurs d'épaisseur de la couche de couverture, épaisseur de la craie et profondeur de la nappe pour chaque sondage (PONTIGNAC, 2002).

Une prise d'échantillon de sol a été réalisée régulièrement tous les 50cm, et les teneurs en nitrates, ammonium, chlorures et bores mesurées (Institut Pasteur de Lille).

On constate, d'après l'étude des profils azotés, que la concentration en nitrates varie beaucoup dans les deux premiers mètres et commence à se stabiliser en se rapprochant de la zone saturée (figure VI.4). On observe également sur la figure (VI.4) que dans certains sondages le seuil de potabilité en nitrates (50 mg/l) est largement dépassé.

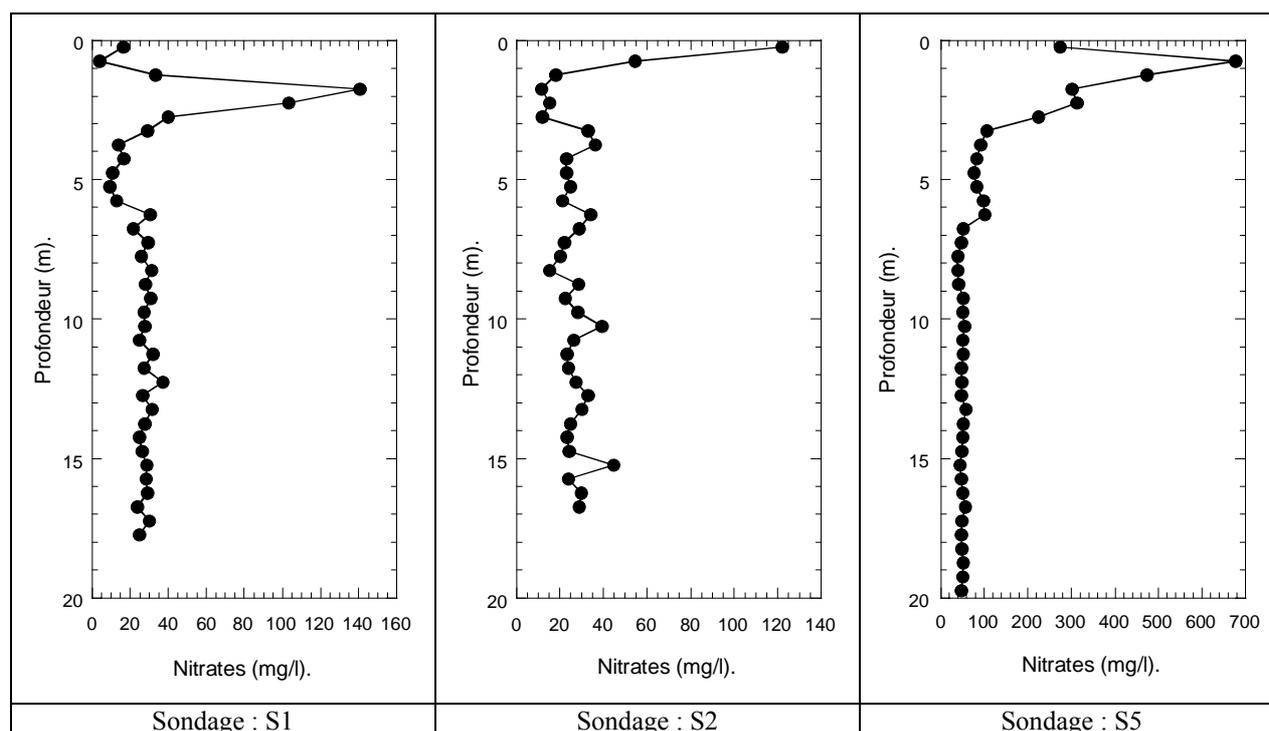


Figure VI.4 : Profils azotés mesurés (réalisés par SOREG en 2002).

VI.3.3.2- Contexte pédologique

La couverture pédologique des parcelles correspond à un sol de texture limoneuse, à limono-argileuse.

L'étude pédologique des parcelles réalisées par AGREN S.A. (laboratoire agréé par le ministère de l'agriculture), permet de différencier trois grands ensembles :

- 1) Sol limoneux (constitué essentiellement de limon, avec un peu de l'argile et de sable).
- 2) Sol limono-argileux (constitué essentiellement de limon, de l'argile et un peu de sable).
- 3) Sol limono-argileux-sableux (constitué essentiellement de limon, d'argile et de sable).

On constate, à travers les 19 profils de sol, que l'épaisseur de la couverture varie de quelques centimètres à quelques mètres, et que ce sol repose sur une couche crayeuse.

VI.3.3.3- Données piézométriques

La piézométrie reflète le sens d'écoulement des eaux souterraines. Elle permet la détermination de la variation de l'épaisseur de la zone non saturée.

En ce qui concerne la piézométrie de la zone d'étude, les données disponibles sont hétérogènes et incomplètes, et ne couvrent pas la totalité de la zone.

A l'échelle du bassin versant, la seule carte piézométrique trouvée pour cette zone est celle d'Août 1974 (basses eaux) (figure VI.5).

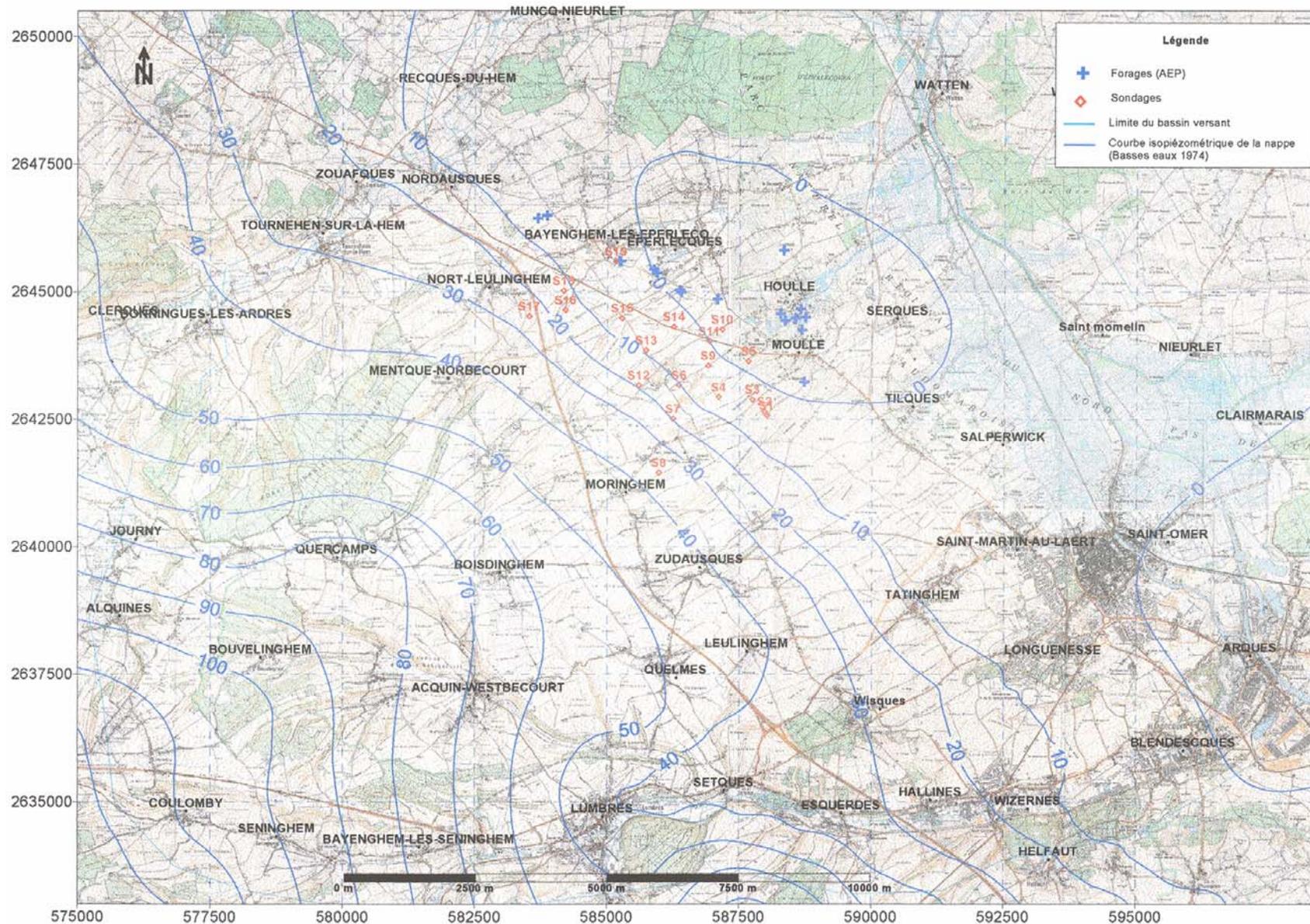


Figure VI.5 : Carte piézométrique (1974, basses eaux) (Serhal, 2004).

VI.3.3.4- Suivi agronomique

L'activité agricole est très développée, et il n'est pas rare de trouver des zones où seule l'agriculture est présente sur d'importantes surfaces.

Au cours des dernières décennies, la hausse de la productivité agricole s'est accompagnée d'une forte augmentation des fertilisations azotées qui a entraîné l'augmentation des concentrations en nitrates dans les eaux souterraines. Les pratiques culturales, comme le retournement des prairies, l'enfouissement des résidus de récoltes ou l'assolement, ont pu avoir une influence sur la dynamique spatiale et temporelle des flux de nitrates percolant vers la nappe.

Le suivi agronomique est la phase essentielle de connaissance des intrants du système. Les pratiques culturales et les fertilisations sont des facteurs qui influencent directement les quantités de matière disponible pour la percolation de pollutions diffuses azotées. Ces deux facteurs sont liés aux activités humaines, et traduisent le potentiel des matériaux polluants qui sera introduit dans le milieu.

A la demande de la Lyonnaise des Eaux, la chambre d'agriculture du Pas-de-Calais, a réalisé une enquête sur les historiques culturaux aux endroits des implantations des sondages. Cette enquête nous donne une idée sur l'assolement, le rendement, l'apport d'engrais minéral, le type et la quantité d'amendement organique, et le devenir des résidus de récoltes. En général, nous avons réussi à obtenir un historique, plus ou moins précis, sur les 12 dernières années (début 1991 à fin 2002). Sur l'ensemble des parcelles dont on a effectué les sondages (19 sondages), seulement neuf historiques ont pu être fournis (Bastin-Lacherez, 2004).

A l'échelle du bassin versant, les données RGA (Recensement Général Agricole) sont les seules données disponibles. D'après l'analyse de ces données, on a classifié les communes en 4 types selon les cultures pratiquées (figure VI.6), auxquelles on a attribué une rotation de culture :

- 1) Communes d'élevages : Ce sont des communes à fortes activités d'élevages, où on trouve des grandes surfaces cultivées en maïs fourrages.
- 2) Communes de polycultures : Dans ces communes on trouve surtout les cultures industrielles comme les betteraves à sucre.
- 3) Communes de culture légumière : Dans ces communes, les légumes frais comme les petits pois et les haricots verts, occupent de grandes surfaces.
- 4) Communes de culture maraîchage : Essentiellement dans la région du marais audomarois, où les cultures de poireau et chou-fleur sont abondantes.

Le tableau (VI.2) donne les trois types de rotation de cultures attribués aux 3 premières communes du bassin versant (communes d'élevages, communes de polycultures et communes de cultures légumières).

Rotation 1 (communes d'élevages)	Rotation 2 (communes de polycultures)	Rotation 3 (communes de culture légumière)
Blé tendre.	Blé tendre.	Blé tendre.
Orge et escourgeon.	Betterave industrielle.	Betterave industrielle.
Blé tendre.	Blé tendre.	Orge et escourgeon.
Pois protéagineux.	Pois protéagineux.	Légume.
Blé tendre.	Orge et escourgeon.	Blé tendre.
Maïs fourrage et ensilage.	Betterave industrielle.	Betterave industrielle.
Blé tendre.	Blé tendre.	Orge et escourgeon.
Orge et escourgeon.	Pomme de terre.	Légume.
Blé tendre.	Blé tendre.	Blé tendre.
Pois protéagineux.	Betterave industrielle.	Betterave industrielle.
Blé tendre.	Orge et escourgeon.	Orge et escourgeon.
Orge et escourgeon.	Pois protéagineux.	Légume.

Tableau VI.2 : Types de rotation de cultures attribuées aux communes du bassin.

VI.4- Modélisation numérique

Dans cette section, nous présentons quelques modèles numériques disponibles pour la simulation des processus de transport des solutés. Ensuite, nous décrivons brièvement les deux modèles utilisés dans cette étude pour simuler le transfert des nitrates dans la zone non saturée des sols. Puis, nous décrivons l'exemple de référence (transfert des nitrates dans un sol bicouche). Nous analysons ensuite l'influence des principaux paramètres sur les mécanismes de transfert des nitrates.

Les paramètres ayant une influence notable sur la migration des nitrates et tout particulièrement sur le flux d'eau et sa concentration en nitrates à la surface de la nappe sont par la suite ceux considérés pour créer des modèles de prévisions par les réseaux de neurones artificiels, traité par la suite.

Nous présentons dans l'annexe 6 les différentes formes de l'azote, le cycle de l'azote ainsi que les processus intervenant dans le cycle des nitrates.

VI.4.1- Principaux logiciels pour le transfert des solutés

Parmi la grande variété de logiciels disponibles, souvent mis au point aux Etats-Unis, peu sont capable de traiter une pollution sous tous ses aspects. Le tableau (VI.3) donne une synthèse des modèles disponibles pour la simulation des processus de transport des solutés.

Modèle	Auteur/Année	Processus simulés
PASTIS	Lafolie, 1991 ; Lafolie <i>et al.</i> , 2002.	Flux d'eau, chaleur, solutés, prise d'eau, prise d'azote, transformations d'azote organique (minéralisation, nitrification et dénitrification).
CRACK-NP	Mathews <i>et al.</i> , 2000.	Flux d'eau, flux de nitrates, croissance de la plante, prise d'azote, minéralisation et nitrification de l'azote.
SWATNIT	Vereecken <i>et al.</i> , 1991.	Transfert d'eau, transfert d'azote; transfert de chaleur, croissance de la plante, prise d'eau et d'azote par les plantes, transformations inorganiques de l'azote (nitrification, dénitrification, volatilisation), transformations organiques minéralisation immobilisation.
NLEAP	Ersahin <i>et al.</i> , 2001.	Flux d'eau, des solutés, de chaleur, transformation de l'azote, minéralisation-immobilisation, nitrification associé aux paillis résiduels.
PASTIS-CANTIS	Neel, 1996 ; Garnier <i>et al.</i> , 2001 ; Garnier <i>et al.</i> , 2002	Transfert d'eau, de solutés, de chaleur, transformation de l'azote, les bilans de C et N en prenant en compte la décomposition des paillis, la minéralisation-immobilisation, la nitrification et humidification.
LIXIM	Mary <i>et al.</i> , 1999	Minéralisation et nitrification d'azote organique, transport de nitrates.
AGRIFLUX2.0	Banton et Larocque, 1997	Transfert d'eau, de soluté, transformation de l'azote.
LESS-N	Banton et Larocque, 2002 ; Larocque <i>et al.</i> , 2002	Transfert de l'azote dans le contexte des cultures en pépinières.
WHI UNSAT Suite Plus (modèle VS2DT)	Waterloo Hydrogeologic Inc., 2002 http://www.waterloohydrogeologic.com	Transfert d'eau, de solutés.
HYDRUS	Simunek <i>et al.</i> , 1998	Transfert d'eau, de solutés, de chaleur.

Tableau VI.3 : Liste des principaux logiciels disponibles.

Dans le cadre de cette étude, afin de modéliser le transfert des nitrates d'origine agricole dans la zone non saturée, deux logiciels ont été utilisés. Ils sont brièvement décrits dans la

section suivante: AgriFlux2.0 (Banton et Larocque, 1997) pour simuler la transformation de l'azote dans la zone racinaire et WHI UnSat Suite Plus (module VS2DT de *Waterloo Hydrogeologic Inc.*, 2002) pour simuler le transfert des nitrates dans la zone non saturée des sols en dessous de la zone racinaire.

VI.4.2- Les logiciels utilisés : Agriflux2.0 et WHI UnSat Suite Plus

VI.4.2.1- AgriFlux2.0

AgriFlux2.0 (Banton et Larocque, 1997) est un modèle simulant les flux d'eau ainsi que les transformations de l'azote et des pesticides dans la zone non saturée du sol. Il s'agit d'un modèle unidimensionnel à compartiments qui simule le déplacement de l'eau et des différentes formes de l'azote et des pesticides. AgriFlux2.0 est composé de trois modules principaux, soit le module HydriFlux, qui simule le transport de l'eau (précipitations, ruissellement, infiltration, prélèvement d'eau par la culture, évaporation, percolation et drainage), le module NitriFlux, qui simule le cycle et le transport de l'azote (amendements, ruissellement, minéralisation, immobilisation, nitrification, dénitrification, prélèvement d'azote par la culture, drainage et lessivage) et le module PestiFlux qui simule les transformations des pesticides et de leurs sous-produits (application, volatilisation, ruissellement, adsorption et désorption lente et rapide, biodégradation, drainage et lessivage). D'autres modules peuvent venir se rattacher pour compléter la simulation des différents flux au niveau de la parcelle.

Agriflux2.0 est un modèle mécaniste fonctionnant avec un pas de temps journalier. Sa construction en couche permet de prendre en compte les hétérogénéités du sol, mais également de détailler la représentation des processus. Le fonctionnement dynamique de chaque couche est relativement classique : il s'agit d'un réservoir qui se vide lorsqu'il est plein avec l'hypothèse alors de gradient de charge unitaire, ce qui sous-entend une densité de flux q égale à la conductivité hydraulique non saturée. Le tableau (VI.4) résume les différentes composantes du cycle de l'eau, leur utilisation et leur signification au sein d'Agriflux2.0. Les figures (VI.7) et (VI.8) présentent les deux modules HydriFlux et NitriFlux.

Composantes du cycle de l'eau	Utilisation et signification
Précipitations	<ul style="list-style-type: none"> Mesurées ou simulées.
Evaporation	<ul style="list-style-type: none"> Basés sur l'évaporation potentielle mensuelle. Couches supérieures du sol.
Infiltration/Ruissellement	<ul style="list-style-type: none"> Infiltration dans la première couche du sol. Ce qui ne s'infiltré pas est dévolu au ruissellement.
Prélèvement	<ul style="list-style-type: none"> Eau extraite par les plantes. La courbe de prélèvement suit une normale.
Percolation	<ul style="list-style-type: none"> Transfert vertical entre les couches et vers la nappe. Si la capacité au champ est dépassée, la vitesse est fonction de la conductivité hydraulique non saturée $K(\theta)$.
Drainage artificiel	<ul style="list-style-type: none"> Interception de la nappe en sol mal drainé.

Tableau VI.4 : Caractéristiques du module HydriFlux.

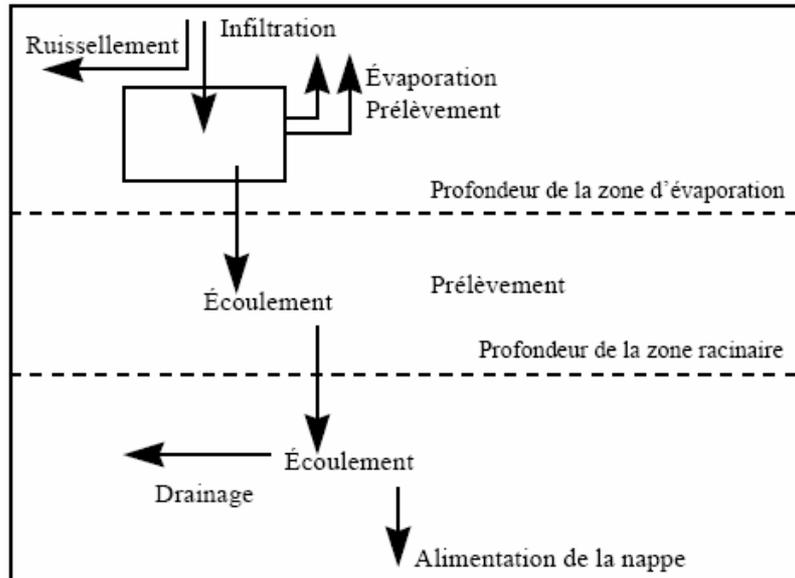


Figure VI.7 : Cycle de l'eau utilisé dans HydriFlux (Banton et al., 1995)

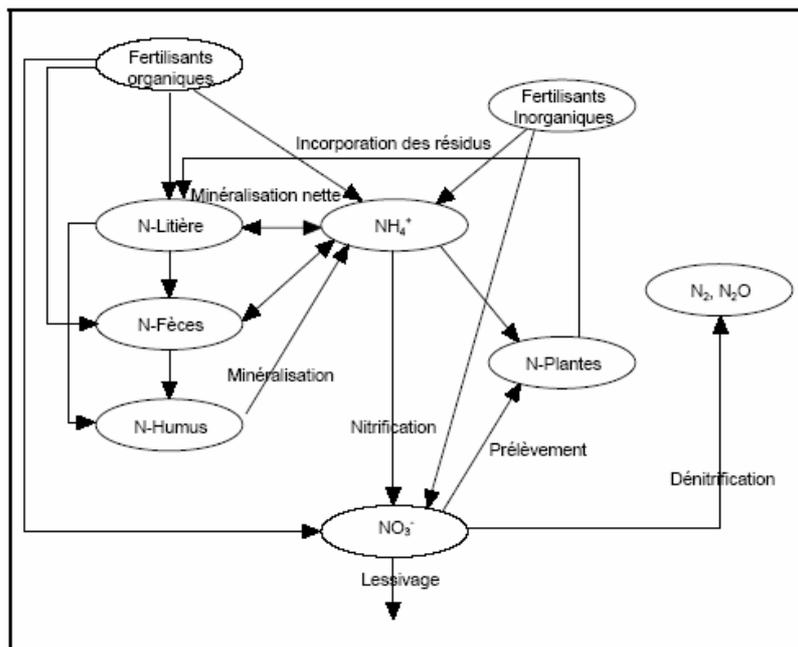


Figure VI.8 : Cycle de l'azote utilisé dans Nitriflux (Banton et al., 1995)

VI.4.2.2- WHI UnSat Suite Plus

Dans ce logiciel, la méthode des différences finies est employée pour rapprocher l'équation d'écoulement, qui est développée en combinant la loi de la conservation de la masse avec une forme non - linéaire de l'équation de Darcy, et l'équation d'emmagasinement. Le modèle analyse seulement les problèmes unidimensionnels.

Etant donné un volume (v) du milieu poreux entouré d'une surface (s), la loi de conservation de masse pour un liquide exige que l'équation suivante soit satisfaite :

$$\int_v \frac{\partial(\rho \times S \times \phi)}{\partial t} dv + \int_s \rho \times u_n \times ds - \int_v \rho \times q \times dv = 0 \quad (\text{VI.1})$$

Avec ρ : Masse volumique du liquide [M/L³] ;
 S : Saturation du liquide [L⁰] ;
 ϕ : Porosité du milieu poreux [L⁰] ;
 t : Temps [T] ;
 u_n : Flux de liquide / unité de surface dans la direction n normale à la surface [L/T] ;
 q : Volume de liquide ajouté ou prélevé par unité de volume par unité de temps [T⁻¹].

En supposant que le volume v est assez petit et que dans v , la densité du liquide (ρ), la saturation (S), et la porosité (ϕ) puissent être considérées comme uniformes. Le premier terme de l'équation (VI.1) peut être exprimé comme :

$$\int_v \frac{\partial(\rho \times S \times \phi)}{\partial t} dv = v \frac{\partial(\rho \times S \times \phi)}{\partial t} \quad (\text{VI.2})$$

Et le troisième terme comme :

$$\int_v \rho \times q \times dv = \rho \times q \times v \quad (\text{VI.3})$$

L'équation (VI.1) devient :

$$v \frac{\partial(\rho \times S \times \phi)}{\partial t} + \int_s \rho \times u_n \times ds - \rho \times q \times v = 0 \quad (\text{VI.4})$$

L'équation de Darcy généralisée pour un milieu poreux à saturation variable s'écrit comme suit :

$$U_n = \frac{k \times K_r(h) \times \rho \times g}{\mu} \times \frac{\partial H}{\partial n} \quad (\text{VI.5})$$

Avec k : Perméabilité intrinsèque du milieu poreux [L²] ;
 g : Accélération de la gravité [L/T²] ;
 μ : Viscosité dynamique de liquide [ML⁻¹T⁻¹] ;
 $K_r(h)$: Conductivité hydraulique relative (fonction de la pression h) [L⁰] ;
 $H = h + h_z$: Potentiel total de liquide (la hauteur de la colonne de liquide) [L] ;
 h_z : élévation potentielle [L] ;

Où $h = \frac{2 \times \sigma \times \cos(\alpha)}{r_c \times \rho \times g}$: Pression d'eau.

Avec σ : Tension de surface [L/T] ;
 α : Angle de contact liquide solide [degré] ;
 r_c : Rayon capillaire [L].

La conductivité hydraulique à saturation, K , souvent utilisé en hydrologie est exprimée par :

$$K = \frac{k \times \rho \times g}{\mu}, \quad [\text{LT}^{-1}] \quad (\text{VI.6})$$

Quand l'équation (VI.5) est substituée dans l'équation (VI.4), on obtient les résultats suivants:

$$v \frac{\partial(\rho \times S \times \phi)}{\partial t} - \int_s \rho \times K \times K_r(h) \times \frac{\partial H}{\partial n} \times ds - \rho \times q \times v = 0 \quad (\text{VI.7})$$

Où tous les termes sont réduits aux unités de la masse par unité de temps ($M.T^{-1}$).

Si toutes les quantités sous l'intégrale de surface peuvent être considérées constantes au-dessus de chacune des m faces d'un volume polygonal curvilinéaire général, v , tel qu'un cube ou un cylindre, l'équation (VI.7) peut être approchée par :

$$v \frac{\partial(\rho \times S \times \phi)}{\partial t} - \sum_{k=1}^m \rho \times K \times K_r(h) \times A_k \times \frac{\partial H}{\partial n_k} - \rho \times q \times v = 0 \quad (\text{VI.8})$$

Où A_k est la surface de la $k^{\text{ième}}$ face à laquelle n_k est orthogonale.

L'équation d'emmagasinement pour un fluide est exprimée sous la forme suivante :

$$v \frac{\partial(\rho \times S \times \phi)}{\partial t} = v \left[\rho \times \phi \times \left(\frac{\partial S}{\partial t} \right) + \rho \times S \times \left(\frac{\partial \phi}{\partial t} \right) + S \times \phi \times \left(\frac{\partial \rho}{\partial t} \right) \right] \quad (\text{VI.9})$$

Les fonctions S , ϕ , et ρ dépendent de H . Les expressions suivantes peuvent être définies :

Avec

$$C_m = \frac{\partial \theta}{\partial h} \quad : \text{Capacité spécifique de masse [L}^{-1}\text{] ;}$$

$$\alpha_c = \frac{\partial \phi}{\partial \bar{p}} \quad : \text{Matrice de compressibilité [M}^{-1}\text{LT}^2\text{], } \bar{p} = \text{pression moyenne [ML}^{-1}\text{T}^{-2}\text{] ;}$$

$$\beta_c = \frac{\partial \rho}{\rho \partial \bar{p}} \quad : \text{Compressibilité du fluide [M}^{-1}\text{LT}^2\text{] ;}$$

$$S_s \quad : \text{Coefficient d'emmagasinement [L}^{-1}\text{], exprimé par :}$$

$$S_s = \rho \times g \times (\phi \times \beta_c + \alpha_c) \quad (\text{VI.10})$$

La substitution de l'équation (VI.9) et (VI.10) dans l'équation (VI.8) fournit l'équation suivante, qui est écrite pour chaque subdivision de volume dans le domaine de solution :

$$v \left\{ \rho [C_m + S \times S_s] \right\} \frac{\partial H}{\partial t} - \rho \sum_{k=1}^m A_k \times K \times K_r(h) \times \frac{\partial H}{\partial n_k} - \rho \times q \times v = 0 \quad (\text{VI.11})$$

C'est la forme de l'équation non-linéaire d'écoulement qui est résolue par le logiciel.

Afin de déterminer le profil final de concentration en nitrates après un certain temps t , le modèle VS2DT nécessite des données concernant les propriétés des sols et du polluant ainsi que les quantités d'eaux lessivées et ses concentrations en nitrates, qui entrent dans le domaine, en fonction du temps.

Les données fournies au logiciel afin de calculer le profil final de concentration en nitrates après un certain temps t sont les suivantes :

Avec

$$\alpha' \quad : \text{Paramètre de Van Genuchten [L];}$$

$$\beta' \quad : \text{Paramètre de Van Genuchten [L}^0\text{];}$$

$$\phi \quad : \text{Porosité du milieu poreux [L}^3\text{/L}^3\text{];}$$

$$K_x \quad : \text{Conductivité hydraulique horizontale à saturation [L/T];}$$

$$S_s \quad : \text{Coefficient d'emmagasinement [L}^{-1}\text{];}$$

$$\rho \quad : \text{Densité apparente du sol [M/L}^3\text{];}$$

$$\alpha_L \quad : \text{Coefficient de dispersivité longitudinal [L];}$$

D_m : Coefficient de diffusion moléculaire [L^2/T];
Ce logiciel utilise la forme suivante de l'équation de Van Genuchten (1980) :

$$S_e = \left[\frac{1}{1 + \left(\frac{h}{\alpha'} \right)^{\beta'}} \right]^\gamma \quad (\text{VI.12})$$

Où

$$\alpha' = \frac{\alpha}{\left(2^{1/\gamma} - 1 \right)^{1-\gamma}}, \quad [L];$$

$$\beta' \quad \quad \quad , \quad [L^0];$$

$$\gamma = 1 - \frac{1}{\beta'}, \quad , \quad [L^0];$$

Où α , β et γ sont les paramètres de Van Genuchten (1980) (voir annexe 1, tableau A.5).

VI.4.3- Cas de référence pour le problème étudié

VI.4.3.1- Présentation du cas de référence

L'exemple de référence concerne la migration des nitrates dans un sol bicouche (figure VI.9). A partir de la surface du sol, on rencontre une couverture composée de limons et sables fins silteux d'épaisseur (H_c), ensuite une couche de craie qui constitue le réservoir de la nappe exploitée. Le niveau de la nappe est variable dans le temps et se situe à une distance (P_N) de la surface du sol (figure VI.9). L'épaisseur de la zone racinaire est prise à 1 m à partir de la surface du sol (Varado, 2004).

Les propriétés des sols et du polluant sont données dans le tableau (VI.5). Le tableau (VI.6) donne les historiques culturaux disponibles sur les 12 dernières années (du début de l'année 1991 à la fin de l'année 2002) à la surface du sol pour les 9 sondages (S2, S4, S6, S7, S9, S13, S14, S16 et S18) (Source : Chambre d'Agriculture du Pas-de-Calais).

Le profil initial de concentration en nitrates est considéré comme uniforme (35mg/l). Cette valeur a été calculée en faisant la moyenne des valeurs de concentrations en nitrates mesurées expérimentalement fin 2002 dans tous les sondages à des profondeurs au moins égales à 25m (profondeur choisi pour déterminer au mieux le profil initial uniforme de concentration en nitrates) (figure VI.10).

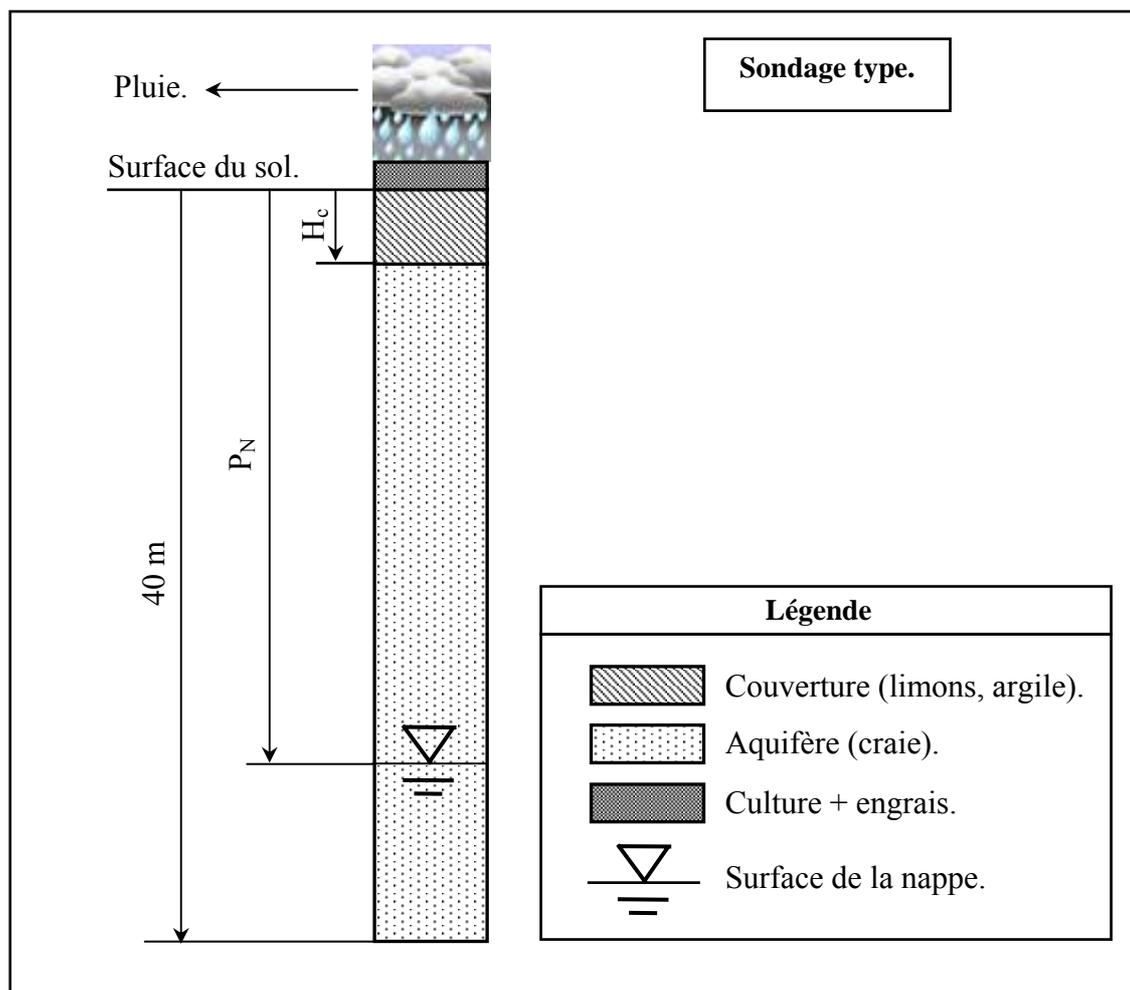


Figure VI.9 : Exemple de référence, profil de sol (Sondage type).

Propriétés des sols.					
Sol	Porosité ϕ	Conductivité hydraulique horizontale à saturation K_x (m/s)	Masse volumique apparente ρ (Kg/m ³)	Paramètres de Van Genuchten.	
				α' (m)	β'
Couverture (limon)	0,36	1×10^{-6}	1760	-1,25	1,25
Aquifère (craie)	0,42	5×10^{-4}	1600	-0,25	1,3
Propriétés du polluant (nitrates).					
Sol	Dispersivité longitudinale α_L (m)	Diffusion moléculaire (m ² /jour)	S_s (1/m)		
Couverture (limon)	0,65	15×10^{-10}	0,001		
Aquifère (craie)	5,49	15×10^{-10}	0,02		

Sources : Lootens et Skowron (2001), Mania (2000), WHI Unsat (2002).

Tableau VI.5 : Propriétés hydrodynamiques retenues pour le cas de référence.

Année	Type de culture								
	S2	S4	S6	S7	S9	S13	S14	S16	S18
1991	Blé	Blé.	Lin	Blé	Blé	Blé.	Blé	Blé	Blé
1992	Blé	Pois	Blé	Blé	Blé	Betterave sucrière.	Blé	Blé	Blé
1993	Blé	Blé	Escourgeon	Blé	Blé	Blé.	Blé	Blé	Blé
1994	Betteraves sucrières	Orge d'hiver	Jachère	Betteraves sucrières	Betteraves sucrières	Pomme de terre.	Betteraves sucrières	Betteraves sucrières	Betteraves sucrières
1995	Blé	Lin	Jachère	Blé	Blé	Blé.	Blé	Blé	Blé
1996	Blé	Blé	Jachère	Blé	Blé	Betterave sucrière.	Blé	Blé	Blé
1997	Endives	Betteraves sucrières	Jachère	Endives	Endives	Blé.	Endives	Endives	Endives
1998	Pois	Blé	Jachère	Pois	Pois	Pomme de terre.	Pois	Pois	Pois
1999	Blé	Pois	Jachère	Blé	Blé	Blé.	Blé	Blé	Blé
2000	Betteraves sucrières	Blé	Jachère	Betteraves sucrières	Betteraves sucrières	Betterave sucrière.	Betteraves sucrières	Betteraves sucrières	Betteraves sucrières
2001	Blé	Lin	Jachère	Blé	Blé	Blé.	Blé	Blé	Blé
2002	Blé	Blé	Jachère	Blé	Blé	Pomme de terre.	Blé	Blé	Blé

Tableau VI.6 : Historiques des types de cultures dans la zone des sondages (Source : Chambre d'Agriculture du Pas-de-Calais).

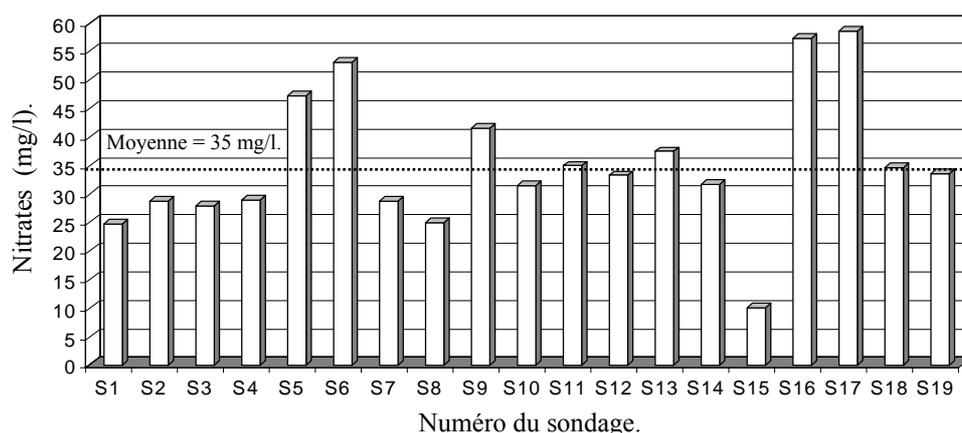


Figure VI.10 : Moyenne des valeurs de concentrations en nitrates mesurées expérimentalement fin 2002 dans les différents sondages à des profondeurs au moins égale à 25m.

VI.4.3.2- Phases de calcul

Les simulations sont réalisées en deux phases :

- 1) La première phase consiste à calculer le flux d'eau lessivé et sa concentration en nitrates en fonction du temps, à la base de la zone racinaire (l'épaisseur de la zone racinaire est fixée à 1m, Varado (2004)), à partir des données climatiques, des historiques culturaux et des données de la zone racinaire. Cette étude est réalisée à l'aide du logiciel Agriflux2.0 (Banton et Larocque, 1997).
- 2) La deuxième phase concerne la migration des eaux chargées en nitrates (d'après les résultats du logiciel Agriflux2.0) dans les couches de sol présent en dessous de la zone racinaire. La résolution numérique est effectuée en utilisant le logiciel WHI UnSat Suite Plus (Modèle VS2DT).

La description de ces deux phases est présentée sur la figure (VI.11). Dans cette étude, on aborde seulement la deuxième phase de simulation. Le résultat de la première partie a été tiré du rapport El Tabach *et al.* (2004).

Le modèle numérique unidimensionnel est discrétisé en mailles rectangulaires de 10cm de largeur. Les données historiques culturales ont été collectées durant la période du début 1991 à la fin de 2002 (voir tableau VI.6). Les simulations effectuées ont donc porté uniquement sur cette période.

A chaque simulation, on trace le profil de concentration en nitrates au cours du temps. On compare alors le profil de concentration en nitrates simulé avec celui déterminé expérimentalement (SOREG, 2002) à la même date (fin 2002).

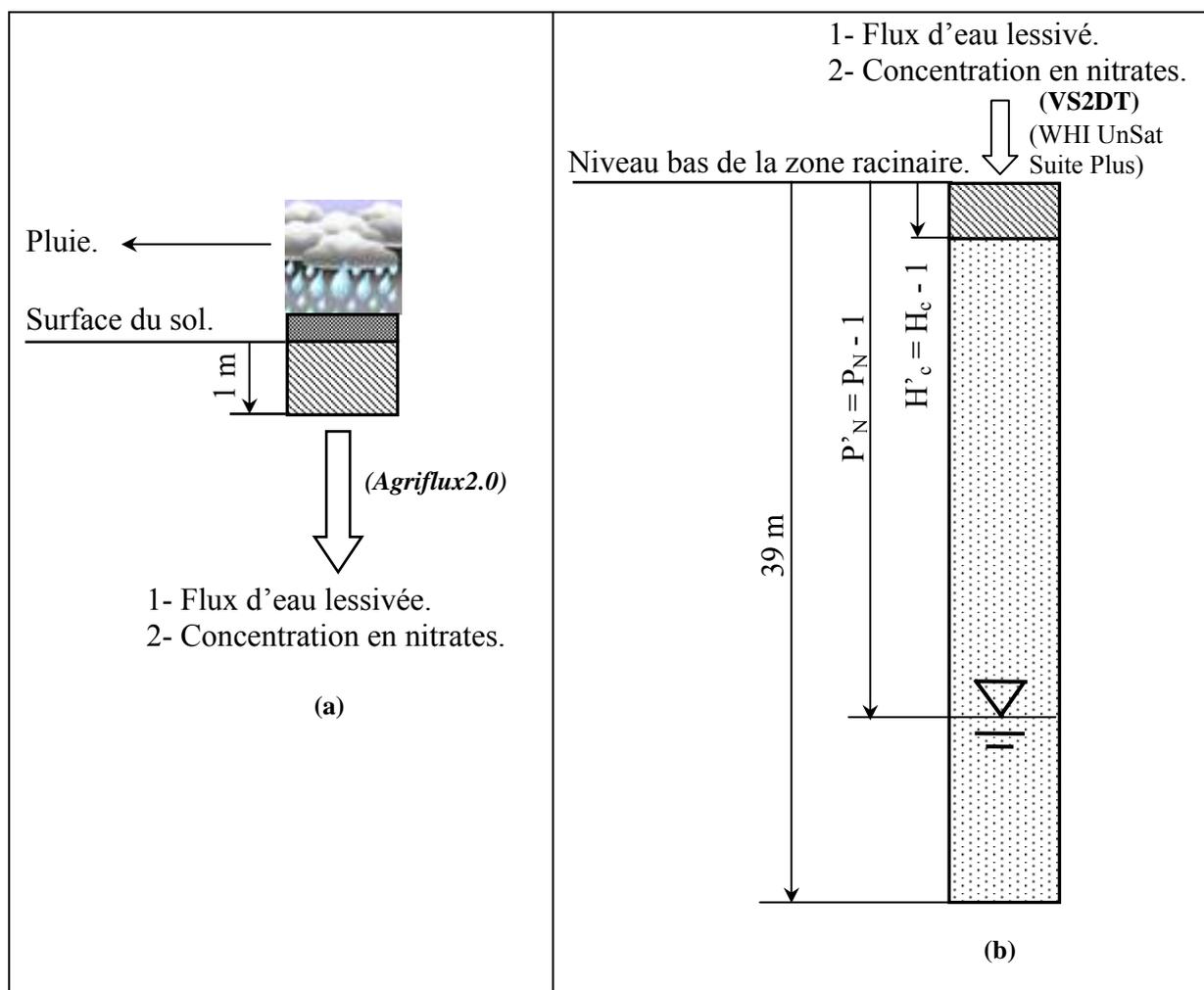


Figure VI.11 : Différentes étapes de simulations.

(a) Calcul du flux d'eau et sa concentration en nitrate à la base de la zone racinaire (Agriflux2.0).

(b) Migration dans la zone non saturée en dessous de la zone racinaire (Module VS2DT de WHI UnSat Suite Plus).

VI.4.3.3- Résultats

La comparaison entre la simulation effectuée en dessous de la zone racinaire et les mesures effectuées à la même date (fin 2002) pour les 9 sondages (S2, S4, S6, S7, S9, S13, S14, S16 et S18) est donnée sur la figure (VI.12). Le point zéro, présenté sur la figure VI.12, correspond au

niveau bas de la zone racinaire. Malgré la dispersion pour certains profils expérimentaux, on constate une bonne correspondance entre la simulation et les mesures effectués à la même date (fin 2002).

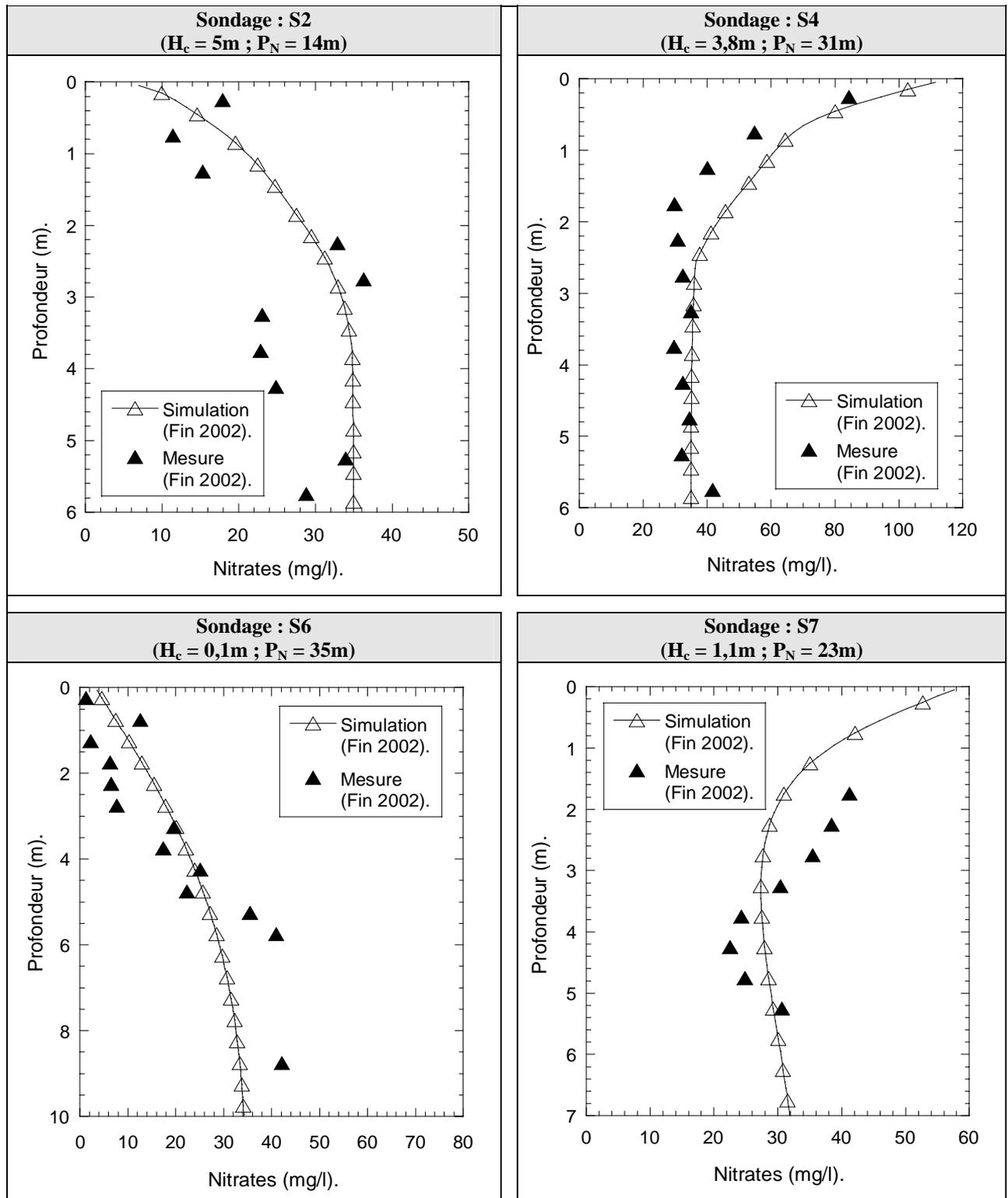


Figure VI.12 : Comparaison entre la simulation et les mesures pour les différents sondages (fin 2002).

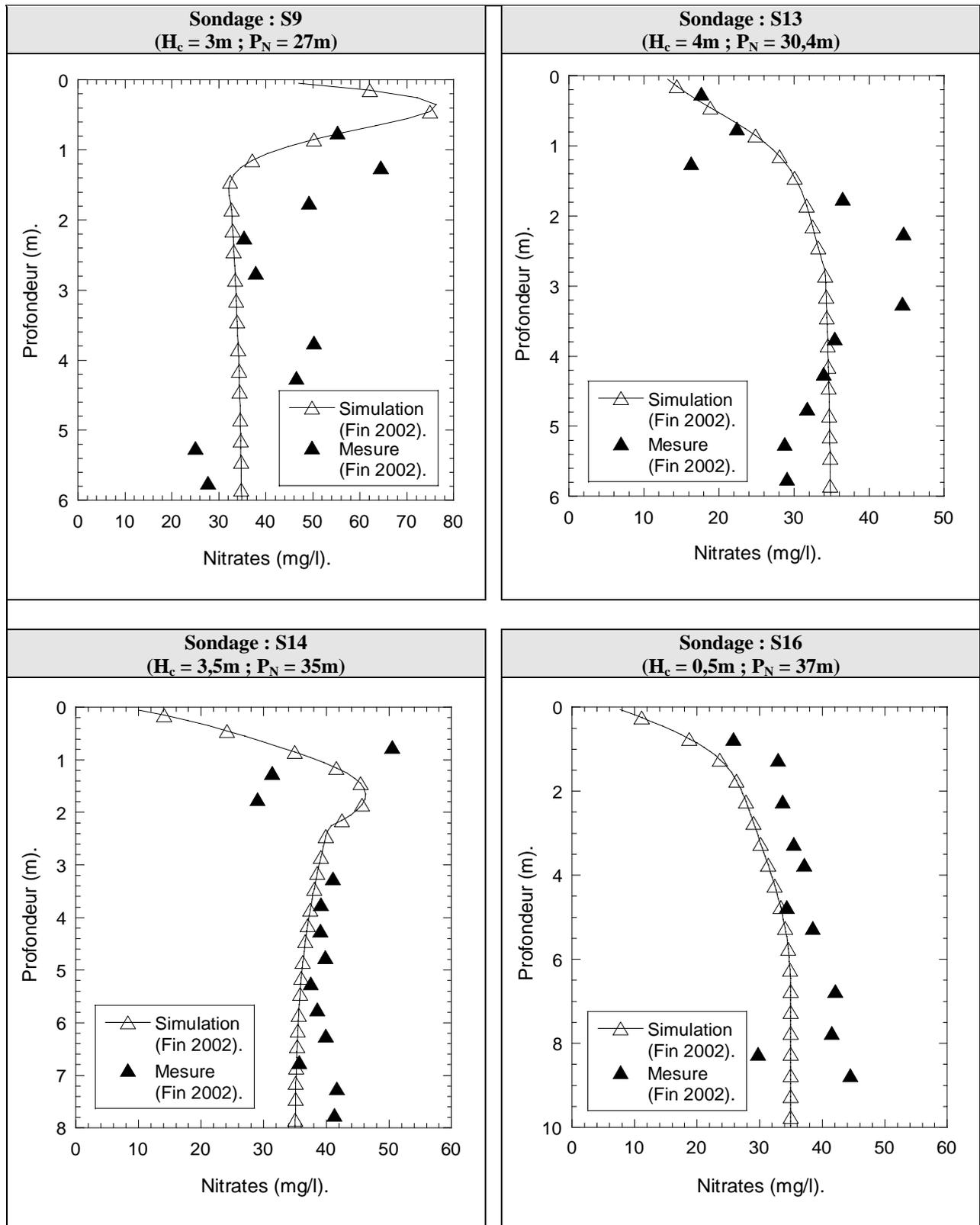


Figure VI.12 (suite) : Comparaison entre la simulation et les mesures pour les différents sondages (fin 2002).

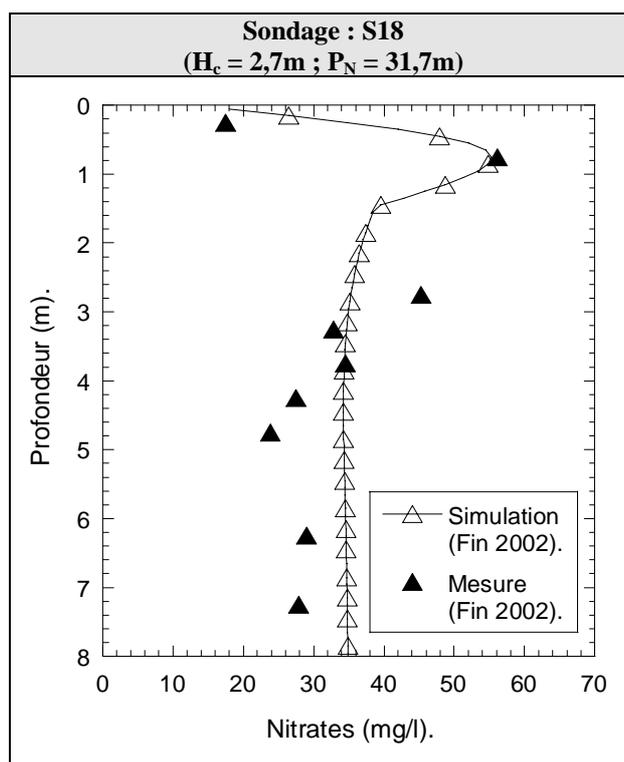


Figure VI.12 (suite) : Comparaison entre la simulation et les mesures pour les différents sondages (fin 2002).

Nous notons qu'il y a une différence de 10mg/l entre la simulation et les mesures effectués à une profondeur comprise entre 2,2m et 3,4m dans le sondage S13. L'examen du sondage géologique S13 a montré qu'il n'y a pas d'autre formation géologique à une profondeur comprise entre 2,2m et 3,4m. Donc, nous pouvons expliquer cette différence de 10mg/l par une valeur sous estimée de quantité d'engrais donné par les agriculteurs durant l'année 1996.

VI.4.4- Etude paramétrique

Dans cette partie, on étudie l'influence du temps de simulation (t), de l'épaisseur de la couche de la couverture (H'_c), de la profondeur de la nappe (P'_N) et le type de cultures présent à la surface du sol sur la migration des nitrates dans la zone non saturée du cas de référence (sondage S13).

VI.4.4.1- Influence du temps de simulation (t)

La figure (VI.13) illustre l'évolution du profil de concentration en nitrates simulé en dessous de la zone racinaire en fonction du temps. On constate logiquement une variation des profils de concentration en nitrates en fonction du temps. Ceci peut être expliqué par les variations dans le temps des pluies et des historiques culturaux à la surface du sol, durant la période de simulation (entre début 1991 et fin 2002).

Il s'agira de mener les simulations pendant un temps suffisamment long pour déterminer la concentration en nitrates et l'apport d'eau à la surface de la nappe, aux points considérés. Le temps t constituera donc une des variables d'entrée du problème.

VI.4.4.2- Influence de l'épaisseur de la couche de couverture (H'_c)

La figure (VI.14) donne les résultats des simulations pour deux cas différents d'épaisseur de couverture ($H'_c = 3\text{m}$ (cas de référence) et 1m) à la fin de l'année 2002. On note que l'épaisseur de la couche de couverture affecte d'une manière sensible la migration des nitrates dans la zone non saturée.

Nous pouvons conclure que l'épaisseur de la couche de couverture joue un rôle important sur la migration des nitrates dans la zone non saturée.

VI.4.4.3- Influence de la profondeur de la nappe (P'_N)

On se propose dans cette section d'examiner l'influence d'une remontée de la nappe. Plusieurs simulations ont été effectuées en faisant varier la profondeur de la nappe P'_N ($P'_N = 29,4\text{m}$ pour l'exemple de référence). La figure (VI.15) illustre l'évolution du profil de concentration en nitrates (fin de l'année 2002) pour l'exemple de référence. On note que la remontée de la nappe a pour effet de ralentir légèrement la migration des nitrates dans la zone non saturée.

Bien que les résultats aient montré que ce paramètre n'a pas beaucoup d'influence sur la migration des nitrates dans la zone non saturée, ce paramètre est important dans notre étude car il indique le niveau où on s'intéresse à déterminer le flux d'eau et sa concentration en nitrates.

VI.4.4.4- Influence du type de culture présent à la surface du sol

La figure (VI.16) donne les résultats des simulations (fin de l'année 2002) pour deux cas différents de type de cultures présentes à la surface du sol (cas de référence, voir tableau VI.6, et cas de pâtures durant toute la période de simulation). Nous constatons que le type de culture présente à la surface du sol influe d'une manière très importante sur la migration des nitrates dans la zone non saturée. Nous notons que la présence de pâtures à la surface du sol diminue l'apport de concentration en nitrates qui entre dans le sol. Ce même résultat a été trouvé dans les travaux de Trindade *et al.* (2001).

Ces résultats montrent que le type de culture présent à la surface du sol affecte de manière importante la migration des nitrates dans la zone non saturée.

VI.4.4.5- Influence de la précipitation annuelle totale

La figure (VI.17) donne les résultats des simulations pour trois cas de précipitations annuelles totale P_t (Cas de référence (843 mm/an) et deux valeurs différentes de P_t prises constantes sur toute la durée de simulations ($P_t = 900\text{ mm/an}$ et $P_t = 1100\text{ mm/an}$)).

Nous constatons que la précipitation annuelle totale joue un rôle important sur la migration des nitrates dans la zone non saturée des sols. Lorsque la précipitation annuelle totale augmente, les nitrates migrent plus profondément, avec des concentrations plus faibles.

Ces résultats montrent que ce paramètre est très important pour prévoir le flux d'eau et sa concentration en nitrates à la surface de la nappe.

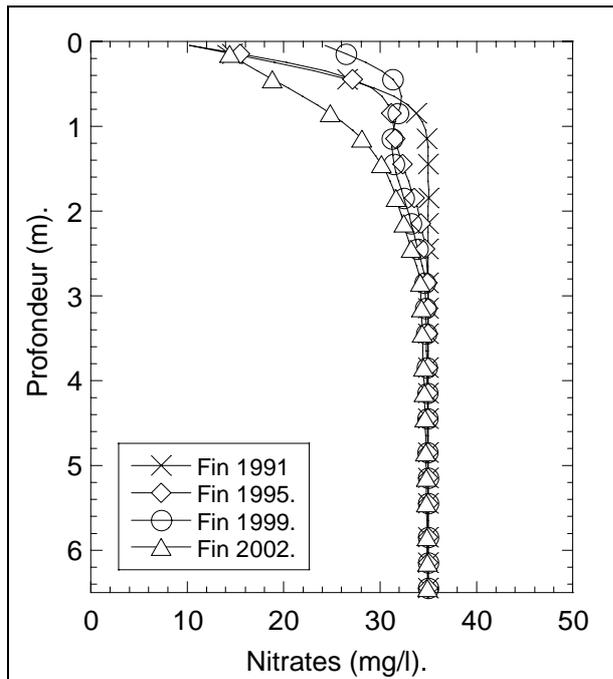


Figure VI.13 : Evolution des profils des concentrations en nitrates en fonction du temps.

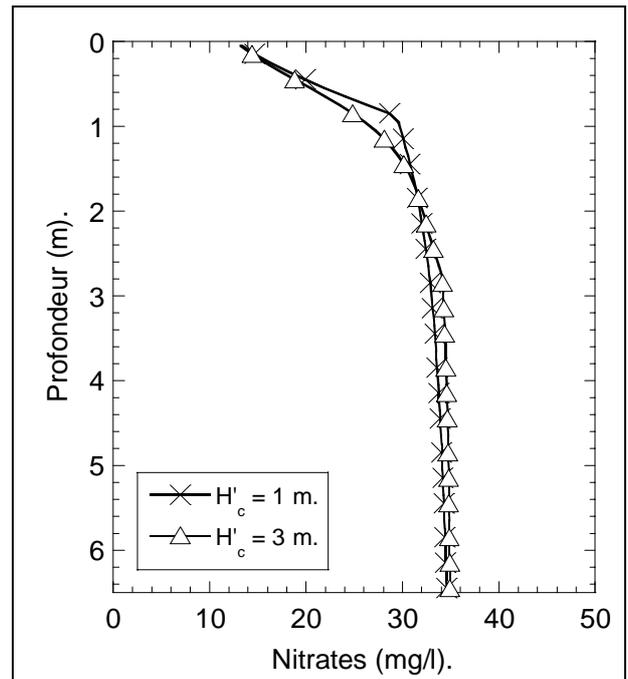


Figure VI.14 : Influence de l'épaisseur de la couverture sur la migration des nitrates dans la zone non saturée (fin 2002).

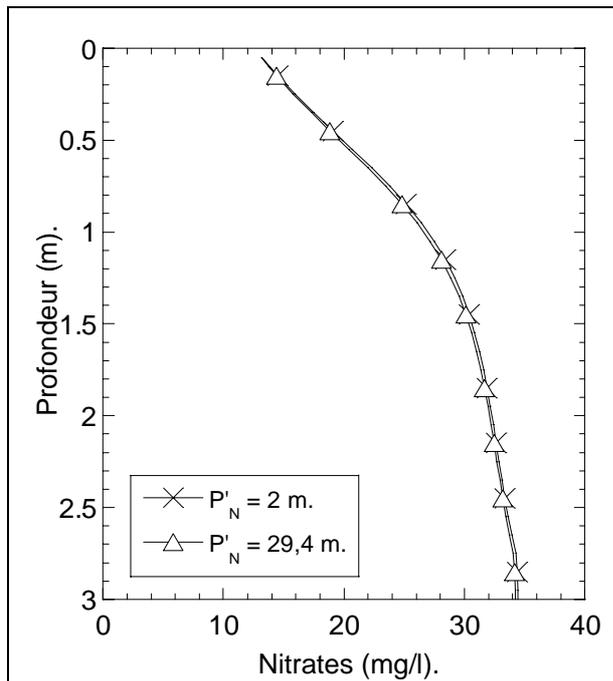


Figure VI.15 : Influence de la profondeur de la nappe sur la migration des nitrates dans la zone non saturée (fin de l'année 2002).

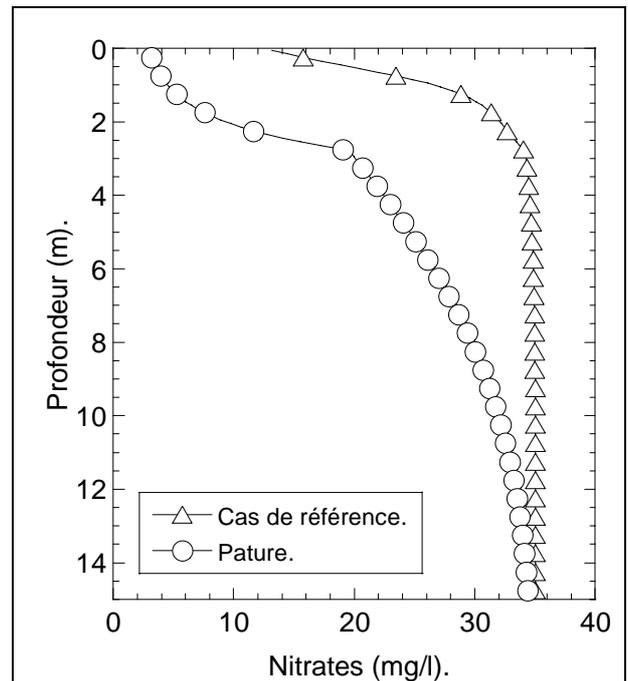
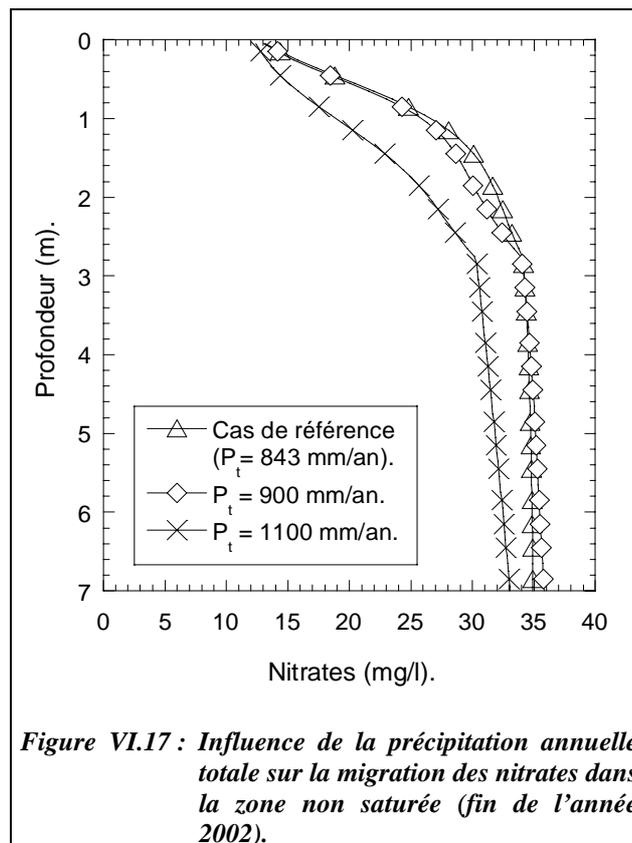


Figure VI.16 : Influence du type de culture présent à la surface du sol sur la migration des nitrates dans la zone non saturée (fin de l'année 2002).



VI.5- Prédiction de la migration des nitrates vers la nappe de la craie par RNA

La bonne correspondance trouvée entre les profils mesurés (SOREG, 2002) et simulés (voir chapitre VI, paragraphe IV.3.3) pour les différents sondages a permis de valider les simulations numériques de la migration depuis la surface du sol. L'application de cette approche sur l'ensemble de la zone d'étude (410 km²), où les propriétés géologiques et hydrodynamiques varient, représenterait cependant un effort de calcul trop important. Nous avons donc appliqué la même approche que celle utilisée dans l'étude de la pollution accidentelle, basée sur le couplage d'un modèle numérique (modèle VS2DT du logiciel WHI UnSat Suite Plus) et d'un modèle à base de réseaux de neurones artificiels pour déterminer rapidement en n'importe quel point de la zone d'étude le flux d'eau et sa concentration en nitrates au toit de la nappe en fonction du temps.

Nous avons constitué une base de donnée avec les paramètres d'entrée H'_c (épaisseur de la couche de couverture en dessous de la zone racinaire), P'_N (profondeur de la nappe en dessous de la zone racinaire, t (temps) et Rot (rotation de cultures), et sortie le flux d'eau et sa concentration en nitrates à la surface de la nappe. Puis, on a construit un réseau de neurones sur cette base.

VI.5.1- Approches traitements de données

Dans cette section, nous décrivons la base de données utilisée pour créer les modèles de prévision du flux d'eau et sa concentration en nitrates au toit de la nappe en n'importe quel point

de la zone d'étude par la régression linéaire multiple (RLM) et le réseau de neurones artificiels de type perceptron multicouche (MLP). Ensuite, nous présentons les deux modèles de RLM et MLP.

VI.5.1.1- Base de données

La base de données est constituée en calculant les flux d'eau et leur concentration en nitrates au toit de la nappe à l'aide du logiciel WHI UnSat Suite Plus (modèle VS2DT) pour des valeurs des paramètres d'entrée choisis dans un intervalle représentatif des variations observées dans le secteur d'étude : quatre types de rotations de cultures (voir paragraphe III.3.4); le temps t varie de début 1967 à fin 2002 avec un pas de temps d'une année; 17 valeurs de H'_c (0m ; 0,5m et de 1m à 15m avec un pas de 1m) et des valeurs de P'_N (0,1m ; 5m ; 10m ; 15m ; 20m ; 25m ; 30m) s'étendant entre 0m et 30m. Au total, la base inclut 17136 cas différents, qui sont divisés en 3 sous-ensembles : le premier (60% de la base de données) est employé pour créer le modèle de réseaux de neurones artificiels (phase d'apprentissage), le deuxième (20% de la base de données) est nécessaire pour optimiser le modèle (phase de test) et le troisième (20% de la base de données) est réservé pour la validation de ce modèle sur des exemples non utilisés dans la phase d'apprentissage et la phase de test. Les résultats concernant la variation des concentrations en nitrates au toit de la nappe, construite pour les 4 rotations de cultures à la fin de l'année 2002, est représentée graphiquement sur la figure (VI.18).

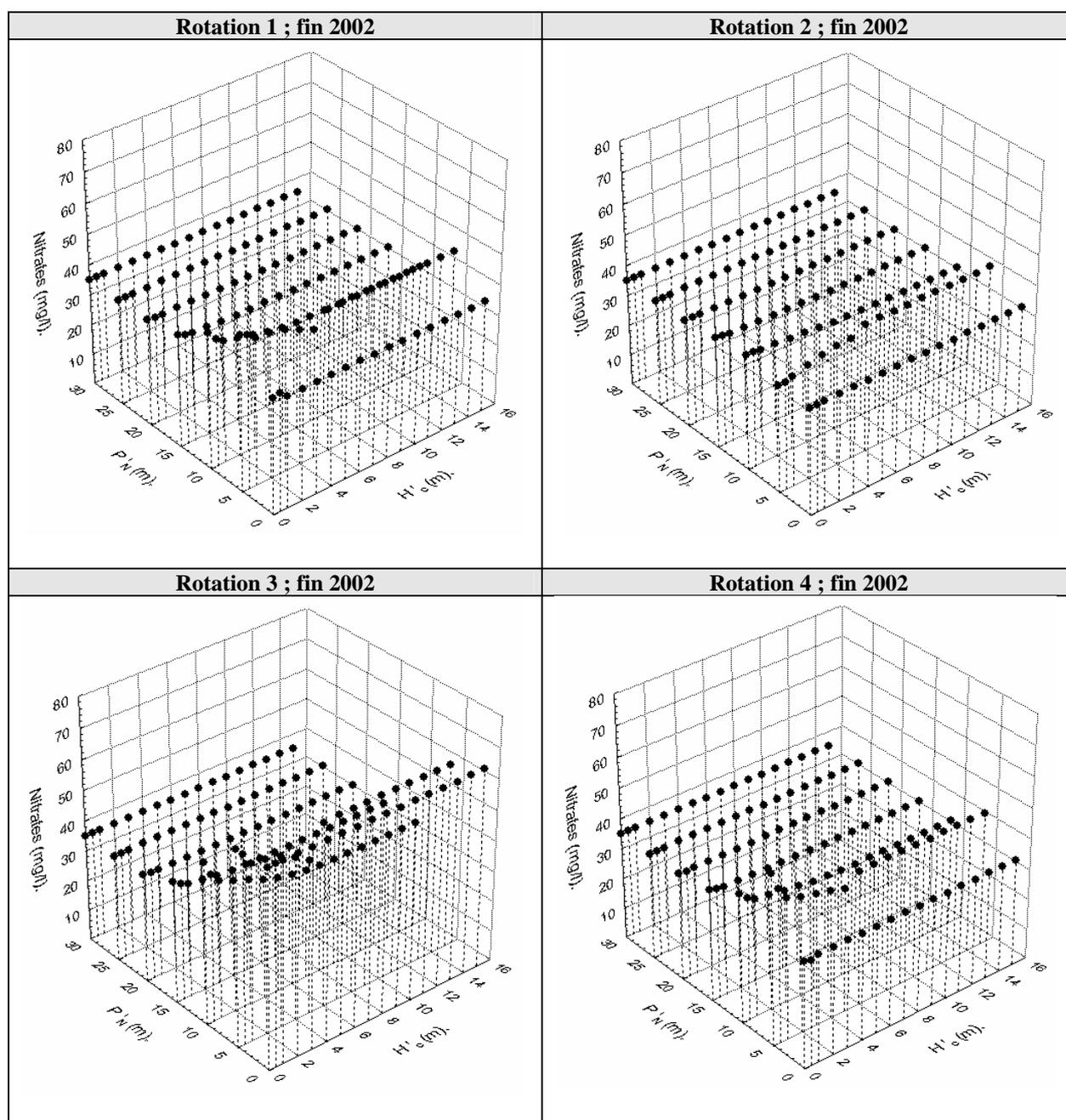


Figure VI.18 : Évolution de la concentration des nitrates pour les 4 rotations de cultures en fin 2002 (extraite de la base de données).

VI.5.1.2- Modèle de régression linéaire multiple (RLM)

On recherche une approximation g d'une variable Y , dépendant linéairement de p variables d'entrée X_j (voir équation V.1). Dans notre cas, le flux d'eau (m/an) et sa concentration en nitrates $[\text{NO}_3^-]$ en mg/l à la surface de la nappe sont recherchés séparément en fonction de H'_c , P'_N , t et Rot . Les coefficients des 2 modèles sont déterminés par la méthode des moindres carrés à partir du premier ensemble de la base de données (données d'apprentissage). La deuxième et la troisième partie de la base de données sont utilisées pour tester et valider le modèle. Les 2 équations trouvées après calcul auront la forme suivante :

$$[\text{NO}_3^- \text{ (mg/l)}] = -0,9404 \times (\log(t)) - 0,31464 \times H'_c - 0,67740 \times P'_N + 0,73956 \times C + 52,96 : \quad (\text{IX.1})$$

(Modèle1.a)

$$\text{Flux d'eau (m/jour)} = 0,0011 \times (\log(t)) + 0,000017 \times H'_c - 0,000018 \times P'_N + 0,000067 \times C - 0,003267 : \quad (\text{IX.2})$$

(Modèle1.b)

Les coefficients de détermination R^2 obtenus entre les valeurs cibles connues et les valeurs simulées par la régression linéaire multiple (RLM) varient entre 0,32 et 0,65 (tableau VI.7 et figure VI.19). Ces faibles valeurs s'expliquent par le fait que la relation entre les paramètres d'entrées (t , H'_c , P'_N , Rot) et les paramètres de sorties (flux d'eau (m/an) et $[\text{NO}_3^- \text{ (mg/l)}]$) est très complexe et non linéaire (voir paragraphes IV.2.1 et IV.2.2) : la régression linéaire multiple ne peut restituer cette complexité.

VI.5.1.3- Modèle de réseau de neurones artificiels

Le schéma représentant le réseau neuronal est illustré dans la figure (VI.20). Il comporte 3 couches de neurones : la couche d'entrée (4 neurones), la couche de sortie (2 neurones), et une couche cachée.

Le nombre optimum de nœuds dans la couche cachée (15) est déterminé en réduisant au minimum l'erreur ASE (voir équation I.56) entre les sorties prévues par le modèle et les sorties connues pour le sous-ensemble de test (figure VI.21).

La performance du MLP utilisé peut être évaluée en examinant la corrélation entre les valeurs de sorties estimées et les cibles connues pour les différentes phases de simulation. La figure (VI.22) montre ces corrélations. Les nuages de points sont proches de la première bissectrice, et les coefficients R^2 sont supérieurs à 0,9 dans tous les cas, indiquant une bonne capacité de prévision du modèle (tableau VI.7). Les coefficients R^2 sont logiquement apparus des valeurs un peu plus élevées pour la phase d'apprentissage, avec les données ayant servi à construire le réseau, que pour les phases de test et de validation, basées sur des données indépendantes.

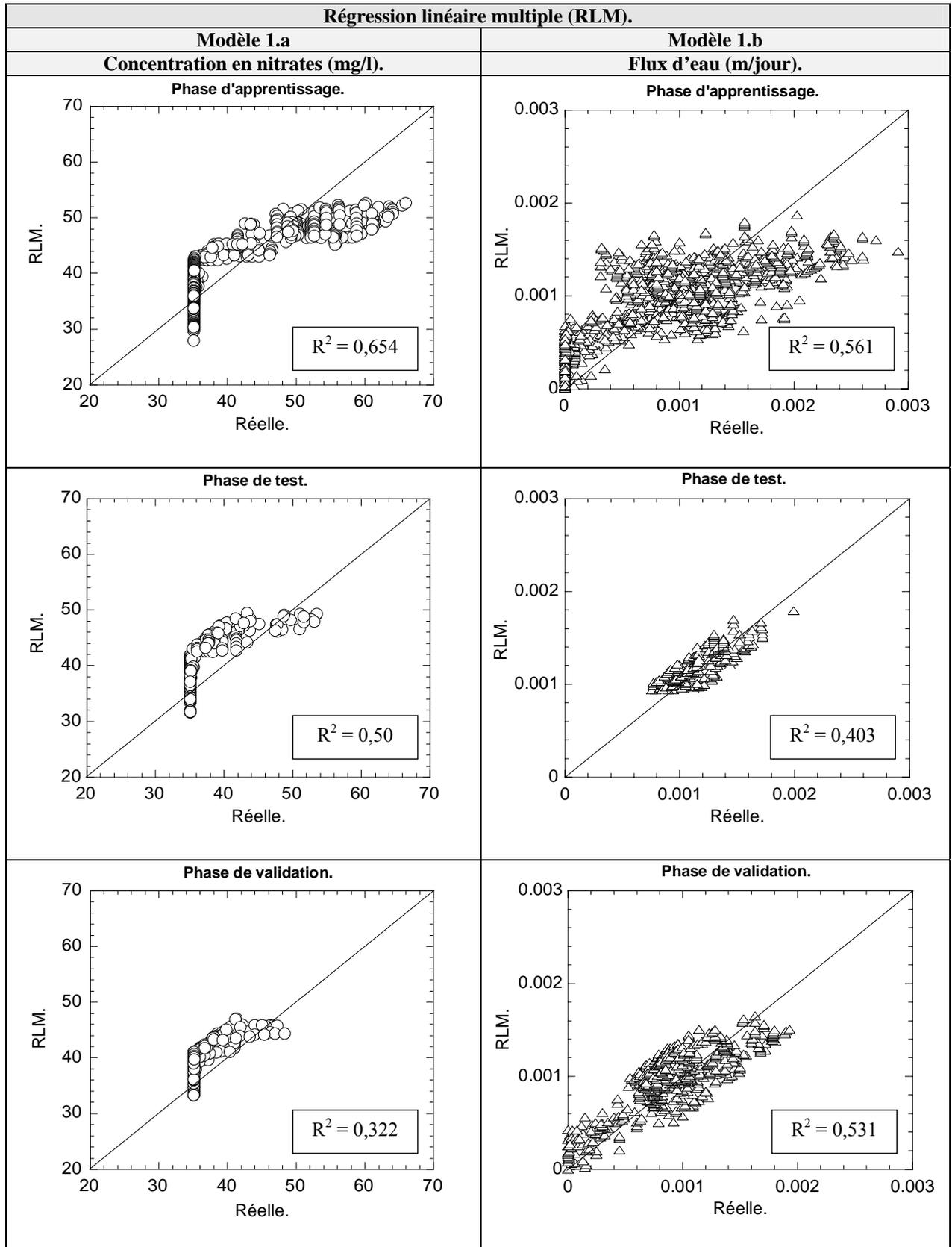


Figure VI.19 : Comparaison entre les valeurs réelles et valeurs prévues par la régression linéaire multiple.

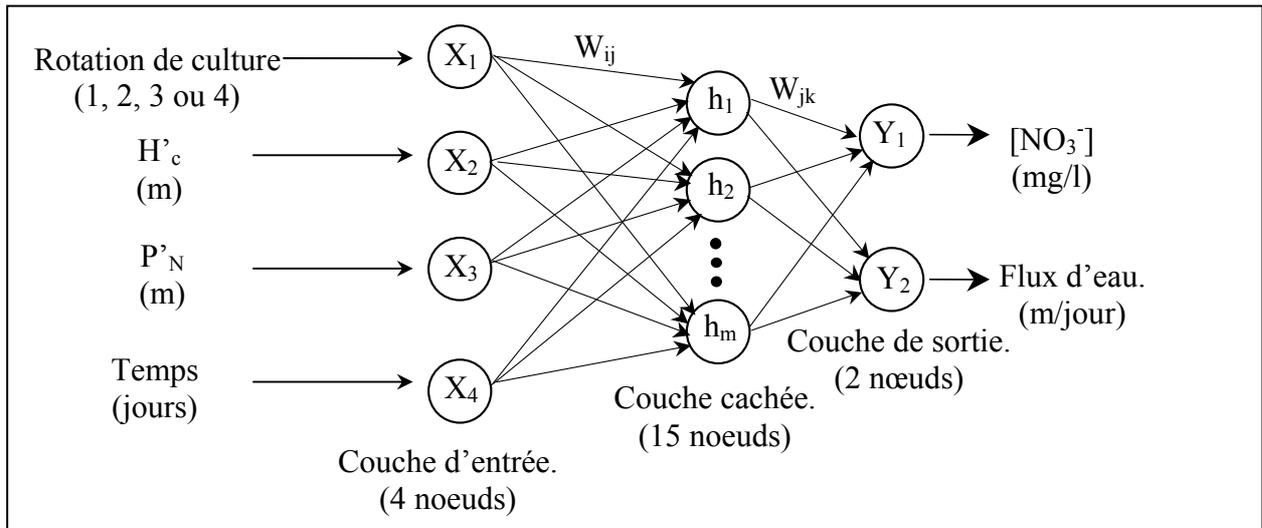


Figure VI.20 : Schéma illustrant l'architecture du réseau de neurones utilisé.

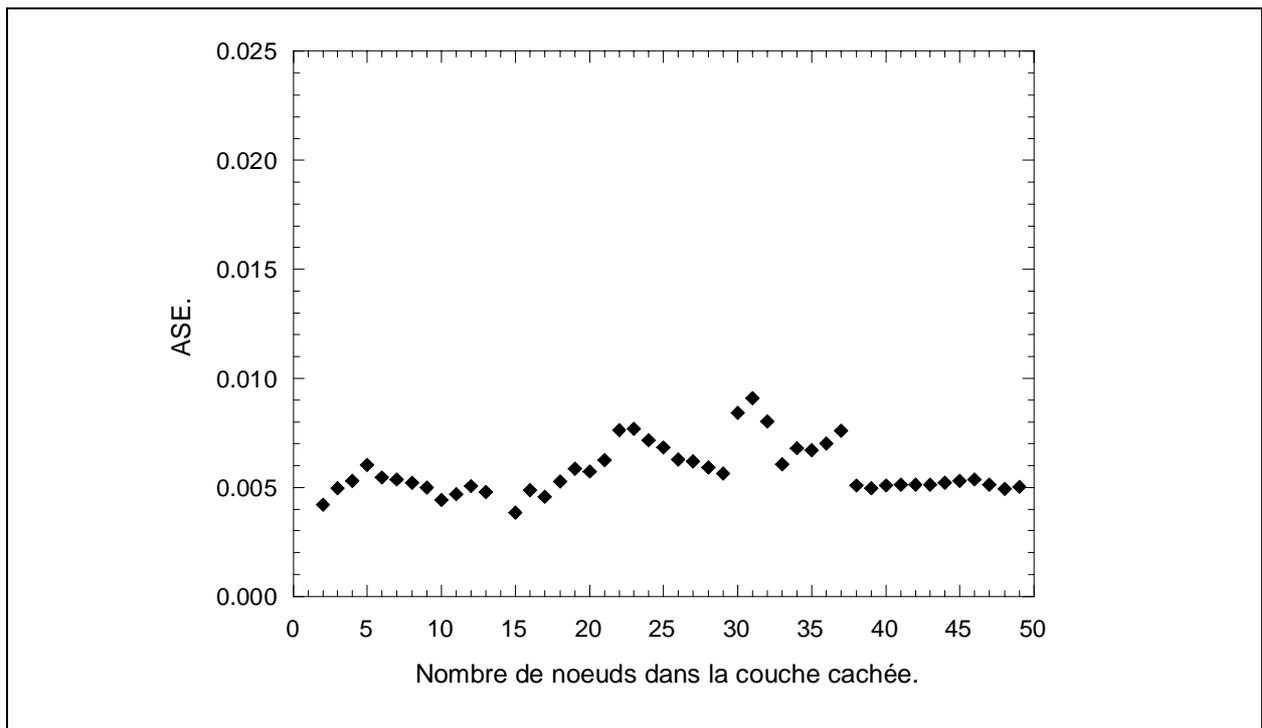


Figure VI.21 : Evaluation des erreurs quadratiques moyennes (ASE) de l'échantillon de test en fonction du nombre de neurones dans la couche cachée.

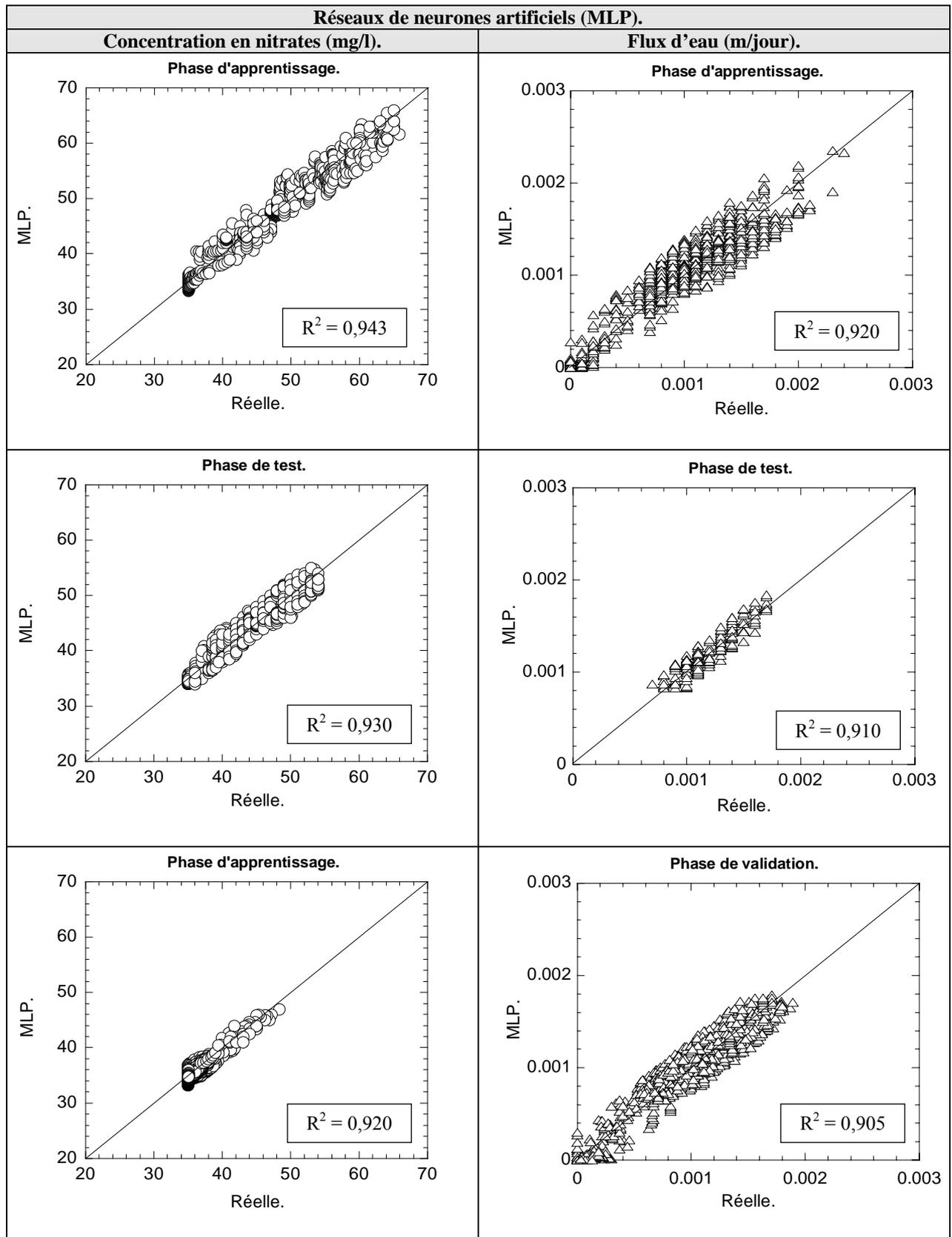


Figure VI.22 : Comparaison entre les valeurs réelles et valeurs prévues par le réseau de neurones artificiels.

VI.5.2- Résultats et discussions

Les coefficients de corrélation R^2 entre les valeurs connues et les valeurs prévues pendant toutes les phases de simulation sont présentés dans le tableau (VI.7). Les valeurs prévues sont très proches des valeurs connues ($R^2 \approx 1$), ce qui démontre la capacité de ce réseau à fournir des prévisions précises. La bonne concordance entre les valeurs prévues et les valeurs connues "jamais-vues" (phase de validation) atteste des possibilités de généralisation de ce modèle.

R^2	Modèle RLM		Modèle MLP	
	Modèle 1.a [NO ₃ ⁻] en (mg/l)	Modèle 1.b Flux d'eau (m/jour)	[NO ₃ ⁻] en (mg/l)	Flux d'eau (m/jour)
Phase d'apprentissage.	0,654	0,561	0,943	0,920
Phase de test.	0,500	0,403	0,930	0,910
Phase de validation.	0,322	0,531	0,920	0,905

Tableau VI.7 : Valeurs de R^2 entre les valeurs réelles et les valeurs prévues pour toutes les phases de simulations.

Les résultats fournis par le MLP sont ensuite collectés dans un fichier Excel. Ce fichier contient les valeurs des flux d'eau (m/an) et ses concentrations en nitrates (mg/l) à la surface de la nappe pour divers temps de simulation et pour différents points de la zone d'étude. A titre d'exemple, nous présentons sur la figure (VI.23) et sur la figure (VI.24), respectivement, la carte du flux d'eau et la carte de sa concentration en nitrates à la surface de la nappe calculées à la fin de l'année 1986 pour toute la zone d'étude. Durant cette période, on constate que la recharge en eau à la surface de la nappe varie entre 0 et 0,35 m/an (figure VI.23). La concentration en nitrates à la surface de la nappe durant la même période varie entre 0 et 40mg/l sur toute la zone d'étude, avec ponctuellement quelques pics entre 40 et 60 mg/l (figure VI.24).

VI.6- Conclusions

Ce chapitre a comporté une étude de l'impact des pratiques agricoles sur les flux des nitrates vers la nappe de la craie. L'étude a été réalisée dans le bassin versant de Houlle et Moule. L'étude vise à prévoir l'évolution des flux d'eau et leur concentration en nitrates en fonction du temps au toit de la nappe à n'importe quel point de la zone d'étude.

Le chapitre a comporté d'abord une analyse des phénomènes qui interagissent lors de l'infiltration des nitrates dans le sol et de comparer les logiciels de la littérature en terme de capacité à simuler les phénomènes mis en jeu lors de l'infiltration des nitrates dans le sol.

Les simulations ont été effectuées à l'aide du logiciel WHI UnSat Suite Plus (module VS2DT, *Waterloo Hydrogeologic Inc., 2002*). La bonne correspondance entre les profils de concentrations en nitrates simulés et celles mesurés à la même date a permis de valider les simulations numériques de la migration depuis la surface du sol.

L'étude paramétrique effectuées sur le cas de référence a permis de tirer les conclusions suivantes:

- L'épaisseur de la couche de couverture limoneuse en dessous de la zone racinaire (H'_c) joue un rôle important sur la migration des nitrates dans le sol. En effet, lorsque H'_c augmente le transfert des nitrates dans la zone non saturée diminue ;

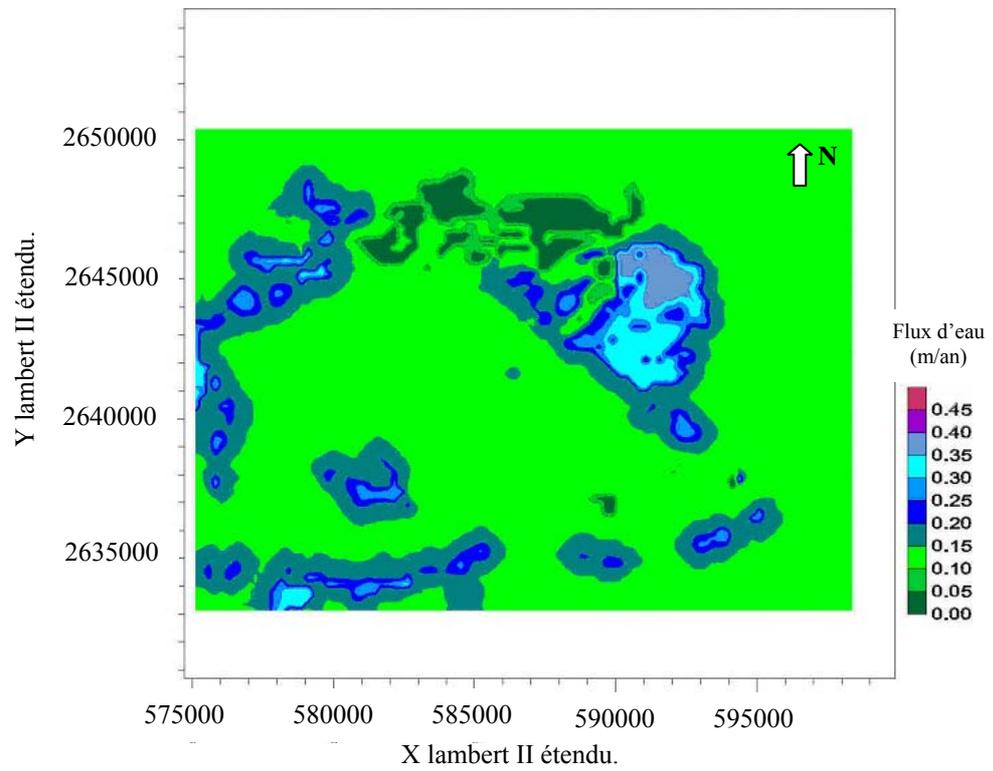


Figure VI.23 : Carte de flux d'eau à la surface de la nappe à la fin de l'année 1986.

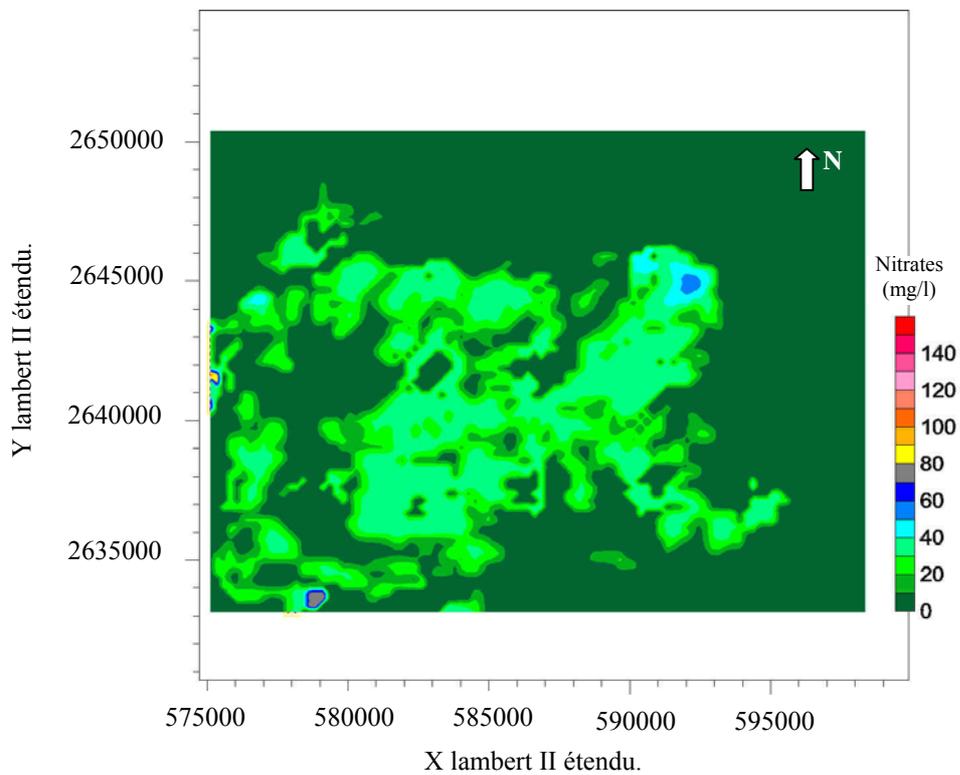


Figure VI.24 : Carte de concentration en nitrates à la surface de la nappe à la fin de l'année 1986.

- Le type de culture présent à la surface du sol influe aussi sur la migration des nitrates dans la zone non saturée. En effet, chaque type de plante a sa capacité d'absorber son besoin en azote alors que l'excès reste dans le sol et risque d'être entraîné par lessivage ;
- La remontée de la nappe a pour effet de ralentir légèrement la migration des nitrates dans la zone non saturée.

L'utilisation du réseau de neurones artificiels pour prévoir l'évolution des flux d'eau et leur concentration en nitrates au toit de la nappe à l'échelle du bassin versant de Houlle et Moule a donné des bons résultats. Malgré la complexité du problème, les coefficients de détermination R^2 entre les valeurs estimés par le réseau de neurones artificiel et les valeurs connues sont proches de l'unité indiquant un degré élevé d'exactitude de prévision.

L'originalité de notre méthode réside dans le fait que nous pouvons prévoir rapidement, en utilisant le réseau de neurones artificiels que nous avons créé, l'évolution des flux d'eaux et leurs concentrations en nitrates au toit de la nappe en n'importe quel point de la zone d'étude en connaissant juste 4 paramètres facilement mesurables dans notre secteur d'étude (H'_c , P'_N , type de culture ou rotation de culture et le temps t de simulation).

L'application de ce réseau de neurones artificiels sur notre zone d'étude a permis de tracer des cartes d'évolution des flux d'eaux et de concentrations en nitrates au toit de la nappe en fonction de temps, afin de visualiser les zones vulnérables. Ceci nous a permis de donner quelques recommandations : Dans la partie Est de la zone d'étude, la nappe n'est pas trop profonde, de même que l'épaisseur de la couche de couverture ; le temps nécessaire pour que les nitrates puissent parcourir cette distance est très faible, d'où la nécessité de bien contrôler les intrants dans cette zone, surtout en amont des captages. Par contre, dans la zone Ouest, la nappe est très profonde, la profondeur de la nappe atteint 80m et l'épaisseur de la couche de couverture est importante, donc le temps de transfert des nitrates est plus long.

CONCLUSION GENERALE

Ce travail avait pour objectif l'étude d'impact d'une pollution accidentelle et d'une pollution agricole sur les ressources en eau souterraine.

De nombreux modèles de transfert de polluants dans les sols non saturés ont été proposés. Ces modèles sont très utiles pour étudier l'influence de certains paramètres sur la migration de polluants, mais ils deviennent lourds dans les cas où il s'agit d'étudier la pollution sur une large zone hétérogène. L'usage de ces modèles est souvent limité à l'étude de pollutions ponctuelles.

La méthodologie suivie dans ce travail consiste, à coupler la méthode des éléments finis et la méthode des réseaux de neurones pour étudier l'impact de pollution dans des larges zones. La méthode des éléments finis est utilisée pour construire une base de données. Cette base sert à la calibration des modèles réseaux de neurones qui seront par la suite utilisés pour l'étude de l'impact de pollution sur les ressources en eau.

Cette méthode a été appliquée avec succès sur l'étude d'impact d'un projet routier sur la contamination de la nappe par des liquides non miscibles à l'eau après leur déversement lors d'un accident routier et sur le problème du transfert des nitrates d'origine agricole vers la nappe. On donne ci-après les principales conclusions pour ces applications.

Pour l'étude d'impact d'un projet routier sur la contamination de la nappe, l'étude par éléments finis a permis d'identifier quatre paramètres ayant un effet majeur sur la migration des hydrocarbures dans le sol non saturé: l'épaisseur de la couche de couverture H_c , sa perméabilité intrinsèque k , la profondeur de la nappe P_N et le temps de contact du polluant avec la surface du sol t_c . La profondeur de la zone contaminée D et la quantité de polluant injectée dans le sol Q ont été calculées pour des combinaisons de valeurs typiques de ces paramètres d'entrée, pour former une base de données sur le risque de pollution par accidents routiers.

Cette base de données a été utilisée pour tester trois modèles de réseaux de neurones artificiels. Les performances de ces réseaux ont été comparées entre elles et à celles obtenues par la méthode plus largement répandue de régression multilinéaire. Ces comparaisons ont montré que les réseaux de neurones artificiels présentent de bonnes capacités à rendre compte de la complexité des processus de transfert de polluants.

L'utilisation du modèle à réseau de neurones le long du profil de la future RN2 a permis d'identifier les zones à risque, sur lesquelles on a effectué une étude plus approfondie (effet du délai d'intervention, incidence d'une météo pluvieuses avant ou après l'accident, cas d'autres polluants). Cette étude a montré que :

- La profondeur contaminée augmente avec le temps de contact sol-polluant. On a aussi montré qu'une pollution résiduelle peut migrer plus loin et plus lentement si la nappe est plus basse.
- Une période de pluie après le déversement (lessivage de la pollution) accélère l'infiltration de polluants et ce d'autant plus que la nappe est plus basse.
- Un épisode pluvieux avant le déversement réduit la profondeur d'infiltration d'autant plus que la durée de la pluie est plus longue.
- La nature du polluant (on n'a considéré ici que des hydrocarbures) a peu d'incidence sur la migration de polluant dans les premiers jours après le déversement. Globalement, on a trouvé que le benzène (un des constituants des carburants) migre un peu plus rapidement, mais un peu moins profondément que le trichloroéthylène ou le 1,1-dichloroéthane (solvants chlorés).

Ce modèle par réseaux de neurones constitue un outil simple pour évaluer la profondeur de la couche de sol contaminée en cas de déversement accidentel de TCE. Il peut donc être utilisé par les concepteurs du projet comme un outil de prévision de risque de contamination de la

ressource en eau souterraine contre une pollution accidentelle. Il peut aussi participer à la construction d'un outil d'aide à la gestion de crise pour les autorités compétentes en cas d'accident, puisqu'il permet d'estimer rapidement l'épaisseur de sol à décaisser pour éradiquer les risques d'atteinte à la nappe.

Il faut enfin noter que pour une configuration géologique donnée (limon sur craie ou limon sur calcaire) et pour le polluant concerné, le modèle RNA élaboré peut être utilisé facilement. Dans le cas d'une géologie différente et/ou d'un autre type de polluants, la base de données doit être reconstruite et le réseau calibré.

La deuxième application concerne l'étude du transfert des nitrates d'origine agricole vers la nappe de la craie dans le bassin versant de Houlle et Moule.

Une étude par différences finies a montré que le transport de nitrates est principalement contrôlé par quatre paramètres, à savoir : l'épaisseur de la couche de couverture en dessous de la zone racinaire H'_c , la profondeur de la nappe en dessous de la zone racinaire P'_N , le type de culture ou rotation de culture présente à la surface du sol et le temps d'observation t . Le flux d'eau et sa concentration en nitrates ont été calculés pour des valeurs typiques de ces paramètres. Une base de données a ainsi été construite pour projet d'étude. Cette base a servi par la suite à la calibration des modèles basés sur les réseaux de neurones artificiels et la régression multilinéaire. La confrontation de ces modèles a montré que le réseau de neurones donne une meilleure performance.

L'application de ce réseau de neurones artificiels a permis de tracer les cartes d'évolution des flux d'eau et leur concentration en nitrates au toit de la nappe en fonction de temps. Ces cartes permettent de suivre l'évolution des flux d'eau et de leurs concentrations en nitrates dans la zone d'étude et d'identifier les zones vulnérables.

Le modèle de réseau de neurones artificiels peut être élargi en intégrant d'autres cas de cultures et servir à l'étude des bassins versants possédant la même typologie du sol (une couverture du limon surmontant un aquifère crayeux) et le même type de rotation de cultures.

Il serait intéressant de continuer le travail à enrichir notre base de données pour d'autres polluants concernant l'étude d'impact d'une pollution accidentelle par les hydrocarbures et pour d'autres types de cultures présent à la surface du sol concernant l'étude du transfert des nitrates vers la nappe souterraine.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Abriola L. M. et Pinder G. F. (1985).** A multiphase approach to the modeling of porous media contamination by organic compounds 1. Equation development. *Water Resources Research*, 21, 19-26.
- Addiscott T.M., Whitmore A.P. et Poulson D.S. (1991).** *Farming and the Nitrate Problem*, CAB international, 170 p.
- Addy K.L., Gold A.J., Groffman P.M. et Jacinthe P.A. (1999).** Ground water nitrate removal in subsoil of forested and mowed riparian buffer zones. *J. Environ. Qual.*, 28:962-970.
- AFNOR (2000).** Méthode de détection et de caractérisation des pollutions : réalisation d'un forage de la qualité de l'eau souterraine au droit d'un site potentiellement pollué. Fascicule de documentation.
- Alshihabi O. (2002).** Etude en laboratoire du comportement d'un sol compacte non saturé, influence des cycles de séchage-humidification. Thèse, Université des Sciences et Technologies de Lille.
- Amraoui N. (1992).** Etude expérimentale de l'influence de l'état initial d'un sol non saturé sur sa courbe de rétention. Rapport de D.E.A. I.N.P.L., Ecole National Supérieure de Géologie – Nancy, 177 p.
- Anderson M.R. et Johnson R.L. (1987).** The dissolution of residual dense non-aqueous phase liquid (DNAPL) from a saturated porous media, Proc. NWWA/API Conference on Petroleum Hydrocarbons and Organic Chemicals in Ground Water, pp. 409-428.
- ANTEA (2000).** Amélioration de la connaissance du site des champs captants du sud de lille- Etude « hydrogéologie et modélisation ». Rapport volume 1. Analyse bibliographique et documentaire. Rapport N° A21345-Direction Départementale de l'Equipement du Nord (D.D.E.59).
- ASTM (1995).** Standard guide for risk-based corrective action applied at petroleum release sites. American Society for testing and materials, ASTM E 1739-95, PA, USA.
- ATMD (1993).** Association Française du Transport routier de Matière Dangereuses, Vous avez dit dangereux ? ATMD, Paris ; 24p.
- ATSDR (1990).** Toxicological profile for 1,1 dichloroéthane. Atlanta, GA : U.S. Department of Health and Human Services, Public Health Service.
- Auriault J.-L. (1987).** Nonsaturated deformable porous media: Quasistatics, *Transport in Porous Media*, vol. 2, 45–64.
- Baer U. (1996).** Comportement des pesticides dans les sols : Evaluation et simulation de la dissipation au champ. Thèse Institut National Agronomique Paris-Grignon, 155p.
- Baillon K. (2000).** Impact des flux azotés de surface sur la nappe de la craie et modélisation de leur transfert dans la zone non saturée-Application à la zone vulnérable du Cambrésis (59). Rapport de stage-Mastère Spécialisé en Génie de l'Eau, Polytech'Lille.
- Banton O., Larocque M. et Cormier M. (1995).** Modélisation du transport des nitrates dans la zone non saturée pour l'évaluation de la contamination des eaux souterraines. *Hydrogéologie*, 4 23-30.
- Banton O. et Larocque M. (1997).** Agriflux 2.0 - Manuel d'utilisation. Logiciel d'évaluation des pertes environnementales de nitrates et de pesticides. Rapport INRS-Eau.
- Banton O. et Larocque M. (2002).** LessN 3.0 – Manuel d'utilisation. Logiciel de simulation du devenir de l'azote (N) et des pesticides appliqués dans les pépinières forestières. INRS-Eau, Québec, Canada, 73 p.

- Barriuso E., Calvet R., Schiavon M. et Soulas G. (1996).** Les pesticides et les polluants organiques des sols. Transformations et dissipation. Forum « le sol, un patrimoine menacé ? » Paris, 24 octobre 1996.
- Basheer I. A. et Najjar Y. M. (1995).** A neural-network for soil compaction. *Proc., 5th Int. Symp. Numerical Models in Geomechanics*, G. N. Pande and S. Pietruszczak, eds., Rotterdam: Balkema, 435-440.
- Bastin-Lacherez S. (2004).** Synthèse des résultats de sondages, et calcul du flux azoté par la méthode du bilan AZOBIL CORPEN. Rapport final pour l'entreprise « Lyonnaise Des Eaux », Mastère spécialisé en Génie de l'eau, Polytech'Lille.
- Beale R. et Jackson T. (1990).** Neural computing : an introducing. IOP Publishing, Bristol.
- Bear J. (1988).** Dynamics of fluids in porous media, Dover Publications, Inc. New York.
- Bélamie R. Leynaud G. Oberlin G. et Ferry M. (1984).** Recherches méthodologiques sur les transferts d'azote vers les eaux superficielles en milieu rural. C.R. Acad. Agric. de France, 70 (12):1565-1576.
- Benremita H. et Schäfer G. (2001).** Transport du trichloroéthylène en milieu poreux partiellement saturé: étude expérimentale et simulation numérique. Actes du XV^{ième} Congrès Français de Mécanique, Nancy, 3-7 septembre 2001.
- Bentoumi O. (1995).** Transfert par infiltration de l'eau dans les sols fins compacts non saturés. Etude de la diffusivité et de la conductivité hydraulique. Thèse, Institut National des Sciences Appliquées de Lyon.
- Beven K. et Germann P. (1982).** Macropores and water flow in soils. *Wat. Res. Res.*, 18 (5), 1311-1325.
- Bishop, C. M. (1995).** Neural Networks for pattern Recognition, Oxford University Press, Oxford, 482.
- Blanchard C. (2000).** Caractérisation de la mobilisation potentielle des polluants inorganiques dans les sols pollués. Thèse, Institut National des Sciences Appliquées de Lyon.
- Blondel T. (2001).** Pollution souterraine Paramètres et paramétrage des modèles en écoulement et en transport de polluants : Porosité efficace - Kd/R - Temps de demi-vie. Rapport INERIS : Projet TRANSPOL- Programme 2000-Volet 2.
- Bockman O., Kaarstad O. et Lie OH. (1990).** *Agriculture et fertilisation*. Oslo : Norsk Hydro, 258 p.
- Bolt G.H. (1979).** Soil chemistry, physico-chemical models. Elsevier, New-York, 479 pp.
- Bour O. (2003).** Synthèse des résultats des modélisations multiphasiques du programme TRANSPOL. Rapport institut national de l'environnement industriel et des risques (INERIS) DRC-03-46520/DESP-R01a.
- BRGM (1997).** Conception d'un réseau de surveillance de la qualité des eaux souterraines au droit d'un site de stockage de déchets, ultimes ou non. Guide méthodologique. Documents du BRGM, n° 273.
- BRGM (1999).** Pollution accidentelle routières et autoroutières. Méthodes et moyens de prévention et d'intervention pour la protection des eaux souterraines. Edition BRGM.
- BRGM (2000).** Politique nationale en matière de sites et sols pollués. BRGM Editions - juin 2000.
- BRGM (2000).** Pollutions accidentelles routières et autoroutières. Méthodes et moyens de prévention et d'intervention pour la protection des eaux souterraines. Manuels & Méthodes n° 36. Editions BRGM.
- BRGM (2000a).** Gestion des sites (potentiellement) pollués. Evaluation simplifiée des risques et classification des sites. Version 2. BRGM Editions - Mars 2000.
- BRGM (2000b).** Gestion et traitement des sites pollués. Diagnostic approfondi et évaluation détaillée des risques. Guide technique. BRGM Editions – Mars 2000.

- BRGM (2001).** Guide sur le comportement des polluants dans les sols et les nappes. Applications dans un contexte d'Évaluation Détaillée des Risques pour les ressources en eau. Documents du BRGM 300. Editions BRGM.
- Brooks R.H. et Corey A.T. (1964).** Hydraulic properties of porous media. Hydrology Paper, N°3, Colorado State University, Fort-Collins, Colorado, USA, p. 27.
- Brouyère S., Dassargues A., Therrien R. et Sudicky E. (2001).** Modelling of dual porosity media: comparison of different techniques and evaluation on the impact on plume transport simulations, IAHS Publication n°265 (ModelCARE'99 postproceedings) Ed. F. Stauffer.
- Brun P. (1989).** Cinétique d'infiltration au sein d'une couche d'argile compactée: étude expérimentale et numérique. Thèse de doctorat de l'École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 217 p.
- Brusseau M. L. (1991).** Transport of organic chemicals by gas advection in structured or heterogeneous porous media: Development of a model and application to column experiments, Water Resources Research, Vol. 27, No.2, 3189–3199.
- BURGEAP (2001).** Étude d'évaluation des risques pouvant menacer les champs captants au sud de Lille. Rapport d'étape de phase 2. DDE du Nord, Arrondissement grands travaux, cellule études routières. Rapport N° RAS206a/A.7498/C.000142.
- Calvet R., Terce M. et Arvieu J.C. (1980).** Adsorption des pesticides par les sols et leurs constituants. III- Caractéristiques générales de l'adsorption des pesticides. Ann. Agron., 31, 239-257.
- Calvet R. (1995).** Modelling pesticides leaching in soils: main aspects and main difficulties. Eur. J. Agron., 4, 473-484.
- Cambardella, C.A. et Elliot E. T. (1993).** Carbon and Nitrogen Distribution in Aggregates from Cultivated and Native Grassland Soils. *Soil Science Society of America Journal* 57: 1071-1076.
- Cambardella C.A., Moorman T.B., Jaynes D.B., Hatfield J.L., Parkin T.B., Simpkins W.W. et Karlen D.L. (1999).** Water quality in Walnut Creek watershed: nitrate–nitrogen in soils, sub-surface drainage ester, and shallow groundwater. J. Environ. Qual. 28, 25–34.
- Cannon A.J. et McKendry I. (1999).** Forecasting all-India summer monsoon rainfall using regional circulation principal components : a comparison between neural network and multiple regression models. Int. J. Clim.:19, 1561-1578.
- Carey B.M. (2002).** Effects of Land Application of Manure on Ground Water at Two Dairies over the Sumas-Blaine Surficial Aquifer. Washington State Department of Ecology, Olympia, WA 75 pp.
- Carsel R.F. et Parrish R.S. (1988).** Developing Joint Probability Distribution of Soil-Water Retention Characteristic. Water Resources Research, (24), 755-769.
- Caubel V. (2001).** Influence de la haie de ceinture de fond de vallée sur les transferts d'eau et de nitrate. Thèse de doctorat à l'École Nationale Supérieure Agronomique de Rennes. N° d'ordre 2001-6.
- Chaney K. (1990).** Effect of nitrogen fertilizer rate on soil nitrate nitrogen content after harvesting winter wheat. *Journal of Agricultural Science*, Cambridge, 114, 171-176.
- Charbeneau R.J. (2000).** Groundwater hydraulics and pollutant transport. Prentice Hall, Upper Saddle River, N.J.
- Charbeneau R.J., Russel T.J., Lake L.W. et McAdams M.J. III (1999).** Free-product recovery of petroleum hydrocarbon liquids. American Petroleum Institute, API Pub. 4682, Washington, D.C.
- Charbeneau R.J., Weaver J.W., et Lien B.K. (1995).** The hydrocarbon spill screaming model (HSSM) – volume 2: Theoretical background and source codes. U.S. EPA report EPA/600/R-94/039B, April 1995, Ada, Oklahoma, 259 p.
- Chiesi F. (1993).** Transfert et épuration dans la zone non saturée de la craie en Champagne. Thèse, univ. Reims.

- Childs E.C. et Collis-George N. (1950).** The permeability of porous materials, Proc. Roy. Soc., London, A-201, p. 392-405.
- Cho J. H., Sung K. S. et Ha S. R. (2004).** A river water quality management model for optimising regional wastewater treatment using a genetic algorithm. *Journal of Environmental Management* 73, 229-242.
- Commission Européenne (CE) (1996).** Technical Guidance Document in support of Commission Directive 96/67/EEC on risk assessment for new notified substances and Commission Regulation (EC) No 1488/94 on risk assessment for existing substances. Commission Européenne.
- Commission Européenne (CE) (1998).** Directive 98/83/CE du Conseil du 3 novembre 1998 relative à la qualité des eaux destinées à la consommation humaine *Journal officiel n° L 330 du 05/12/1998 p. 0032 – 0054.*
- CORPEN (1986).** Amélioration des pratiques agricoles pour réduire les pertes de nitrates vers les eaux. Ministères de l'Agriculture et de l'Environnement, 39 pp.
- CORPEN (1991).** Interculture : gérer l'interculture pour limiter les fuites de nitrates vers les eaux. Ministères de l'Agriculture et de l'Environnement, 40 pp.
- Coulibaly P., Anctil F. et Bobée B. (2000).** Daily inflow Forecasting using Artificial Neural Networks with Stopped training Approach. *Journal of Hydrology*, 230: 244-257.
- Craig F.F. (1971).** The Reservoir Engineering Aspects of Waterflooding: Society of Petroleum Engineers of AIME.
- Croney D., Coleman J.D. et Black W.P.M. (1958).** Studies of the movement and distribution of the water in the soil in relation to highway design and performance, HRB Spec. Report 40: 226-252, Washington D.C.
- Cybenko G. (1989).** Approximation by superposition of sigmoidal functions, *mathematics of control, signals and systems*, 2, pp. 303-314, pp. 377-403.
- D.A.E.I (1998).** L'utilisation des véhicules de transport routier de marchandises en 1997. La direction des Affaires économiques et internationales - Paris - DAEI - Juillet 1998.
- D.T.T. (1997).** Les accidents de transport de marchandises dangereuses par voie routière et ferroviaire en France ; Bilan 1996. Min. de l'Équipement, Paris ; 52 p.
- Dan A., Oosterbaan J. et Jamet P. (2002).** Contribution des réseaux de neurones artificiels (RNA) à la caractérisation des pollutions de sol. Exemples des pollutions en hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP). *Comptes Rendus Geosciences*, Volume 334, Issue 13, October 2002, Pages 957-965.
- Dana E. et Shahrour I. (2002).** Hierarchy of physical phenomena governing the contamination of subsurface water sources by hydrocarbons. UNAST 2002, 3rd International Conference on Unsaturated soil, Recife, Bresil. 10-13 Mars. Edité par J.F.T. JUCA, Tacio M.P. de Campos et Fernando A.M. Marinho, A.A. Balkema Publishers, Vol 1, pp:59-64.
- Dayhoff J.E. (1990).** Neural network architectures. Van nostrand reinhold, New York.
- Delage P. et Cui Y. J. (2000).** Les essais sur les sols non saturés, Journées d'étude ENPC, 14 et 15 novembre, Paris.
- Del Frate F., Ferrazzoli P. et Schiavon G. (2003).** Retrieving soil moisture and agricultural variables by microwave radiometry using neural networks. *Remote Sensing of Environment* 84 (2003) 174-183.
- Delgado J.A. (2001b).** Control of nitrogen transformations to increase nitrogen-use efficiency and protect environmental quality. *Erosion Control* 7(5), 68–75.
- Delgado J.A. et Shaffer M.J. (2002).** Essentials of a national nitrate leaching index assessment tool. *Journal of Soil and Water Conservation* 57, 327–335.
- Directive 67/548/CEE du Conseil, du 27 juin 1967,** concernant le rapprochement des dispositions législatives, réglementaires et administratives relatives à la classification,

l'emballage et l'étiquetage des substances dangereuses JO 196 du 16.8.1967, p. 1. Directive modifiée en dernier lieu par la directive 2001/59/CE de la Commission (JO L 225 du 21.8.2001, p. 1).

Directive 91/414/CEE du Conseil, du 15 juillet 1991, concernant la mise sur le marché des produits phytopharmaceutiques. *Journal officiel n° L 230 du 19/08/1991 p. 0001 – 0032*.

Directive 95/36/CE de la Commission, du 14 juillet 1995, modifiant la directive 91/414/CEE du Conseil concernant la mise sur le marché des produits phytopharmaceutiques *Journal officiel n° L 172 du 22/07/1995 p. 0008 - 0020*.

Domenico P. et Robbins G. (1985). A new method of contaminant plume analysis. *Ground Water*, vol. 23, n°4, p. 476-485.

Domenico, P.A. et Schwartz, F.W. (1998). *Physical and Chemical Hydrogeology*. John Wiley and Sons.

Draper N. et Smith H. (1998). *Applied regression analysis* (3rd ed.). New York: John Wiley and Sons.

Dullien F. A. L. (1992). *Porous media, fluid transport and pore structure*, 2nd edition, Academic press, San Diego.

Ed Diny S. (1993). Etude expérimentale des transferts hydriques et du comportement mécanique d'un limon non saturé. Thèse I.N.P.L, Ecole Nationale Supérieure de Géologie-Nancy, juin 1993, 177 p.

Edil T. B. et Sabri E. Motan (1984). Laboratory evaluation of soil suction components, *Geotech. Testing J.*, vol. 7 N°4, pp. 173-181.

El-Ehwan M. et Houston S.L. (1990). Settlement and moisture movement in collapsible soils, *J. Geotech. Eng.*, vol. 116 N°10, pp. 1521-1535.

Ellena L-M, Olampi S. et Guarnieri F. (2003). Détection automatique de transports de matières dangereuses dans des séquences d'images. *Sirtech - Ecole des Mines de Paris – Pôle Cindyniques*.

El Tabach E. (2000). Modélisation des concentrations en nitrates dans la nappe de la craie. Rapport de stage D.E.A en génie civil, Université de Science et Technologie de Lille, Laboratoire de Mécanique de Lille (LML UMR CNRS 8107), Polytech'Lille.

El Tabach E. (2004). Etude d'impact d'une pollution accidentelle sur la ressource en eau souterraine. XXII^{èmes} Rencontres Universitaires de Génie Civil - Ville et génie civil. Concours du prix jeune chercheur « René Houpert ». Marne-la-vallée, 3-4 juin.

El Tabach E. (2004). Modélisation du transfert des nitrates dans la zone non saturée du champ captant de Houille et Mouille. Rapport final pour l'entreprise « Lyonnaise Des Eaux », Mastère spécialisé en Génie de l'eau, Polytech'Lille.

El Tabach E., Lancelot L. et Shahrour I. (2004). Etude d'impact d'une pollution accidentelle sur un projet routier. Journée Nationales de Géotechnique et de Géologie (JNGG Lille 2004). Lille, 28-30 juin.

El Tabach E., Lancelot L. et Shahrour I. (2004). Parameters governing the infiltration of an accidental NAPL pollution towards groundwater resources. *Journal of Environmental Modelling and Software*. (article soumis).

El Tabach E., Lancelot L. et Shahrour I. (2005). Estimation de la migration d'une pollution accidentelle en utilisant les réseaux de neurones artificiels. XVII^e Congrès Français de Mécanique (CFM), Université de Technologie de Troyes, 29 août-2 septembre 2005, accepté le 30/03/2005.

El Tabach E., Lancelot L., Shahrour I. et Najjar Y. (2004). Estimation de la migration d'une pollution accidentelle : comparaison des approches réseaux de neurones artificiels et régression multilinéaire. Colloque International de Géotechnique. Beyrouth, 19-22 mai.

El Tabach E., Lancelot L., Shahrour I. et Najjar Y. (2004). Predicting of depth of contaminated zone and quantity of pollutant injected using an artificial neural network and multiple regression methods. *Journal of Neural Computing and Applications*. (article soumis).

- El Tabach E., Lancelot L., Shahrour I., Maillot H. et Najjar Y. (2004).** Estimation de la migration d'une pollution accidentelle : comparaison des approches réseaux de neurones artificiels et régression multilinéaire. *Revue Française de Géotechnique*. (sous press).
- El Tabach E., Lancelot L. et Shahrour I. (2005).** Paramètres gouvernant l'infiltration d'une pollution accidentelle d'hydrocarbures vers les ressources d'eaux souterraines. *Revue internationale de Studia Geotechnica et Mechanica*, Vol. XXVII, N°1-2, 2005, p. 187-201.
- EPA (1999a).** Monitored natural attenuation of petroleum hydrocarbons. U.S. EPA Remedial Technology Fact Sheet, EPA/600/F-98/021, May 1999, 3p.
- EPA (1999b).** Monitored natural attenuation of chlorinated solvents. U.S. EPA Remedial Technology Fact Sheet, EPA/600/F-98/022, May 1999, 3p.
- Ersahin S. et Karaman M. R. (2001).** Estimating potentiel nitrate leaching in nitrogen fertilized and irrigated tomato using the computer model NLEAP. *Agricultural Water Management*. 51: 1-12.
- Falta R.W., Pruess K., Finsterle S. et Battistelli A. (1995).** T2VOC User's Guide, Lawrence Berkeley Laboratory Report LBL-36400, March 1995.
- Fausset L. (1994).** Fundamentals of neural networks : Architectures, Algorithms, and Applications, 1st edition. Prentice Hall, Englewood Cliffs: N.J., pp. 289-330, 310, 298, 298, 325.
- Faust C.R., Guswa J. H. et Mercer J. W. (1989).** Simulation of three-dimensional flow of immiscible fluids within and below the unsaturated zone. *Water Resources Research*, 25, 2449-2464.
- Firestone M.K. (1982).** Biological denitrification. In "Nitrogen in agricultural soils" (F.J. Stevenson, ed), pp 289-318. Am; Soc. Agron., Madison, Wisconsin.
- Follett R.F. et Delgado J.A. (2002).** Nitrogen fate and transport in agricultural systems. *Journal of Soil and Water Conservation* 57, 402-408.
- Forsith P.A. (1988).** Simulation of non aqueous phase groundwater contamination. *Advances in Water Resources*, vol. 18.
- Fredlund D.G. et Rahardjo H. (1993).** Soil mechanics for unsaturated soils. John Willey & Sons, Inc.
- Fredlund D.G. et Xing A. (1994).** Equations for the soil-water characteristic curve. *Can. Geotech. J.*, Vol. 31, p. 533-546.
- Fredlund D.G., Xing A. et Huang S. (1994).** Predicting the permeability function for unsaturated soils using the soil-water characteristic curve. *Can. Geotech. J.*, Vol. 31, p. 533-546.
- Galya (1987).** A horizontal plane source model for ground water transport. *Ground Water*, 25, n° 6.
- Gardner W.R. (1958).** Some steady state solutions of the unsaturated moisture flow equation with application evaporation from a water table. *Soil Science*, Vol. 85, p. 228-232.
- Gardner W.R. (1970).** Field measurement of soil science. *Soil Sci. Soc. of Am. Proc.*, vol. 34, p. 832-833.
- Garnier P., Neel C., Mary B. et Lafolie F. (2001).** Evaluation of a nitrogen transport and transformation model in a bare soil. *European Journal of Soil Science* 52: 253-268.
- Garnier P., Neel C., Aita C., Recous S., Lafolie F. et Mary B. (2002).** Modelling carbon and nitrogen dynamics in a bare soil with and without straw incorporation. *Soumis dans European Journal of Soil Science*.
- Gaudet J.P., Jegat H., Vachaud G. et Wierenga P.J. (1977).** Solute transfer with exchange between mobile and stagnant water, through unsaturated sand. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 41, 665-671.
- Glejser H. (1969).** A new test for Heteroscedasticity. *Journal of the American Statistical Association* 64, pp 316-323.
- Goldfeld S.M. et Quandt R.E. (1965).** Some Tests for Homoscedasticity. *J.Am.Statist.Ass* 60, pp539-47.

- Goody D. C., Bloomfield J. P., Harrold G. et Leharne S. A. (2002).** Towards a better understanding of tetrachloroethene entry pressure in the matrix of Permo-Triassic sandstones. *Journal of Contaminant Hydrology*, volume 59, Issues 3-4, December 2002, pages 247-265.
- Gosselin L., Jobidon R. et Bernier L. (1999).** Genetic variability and structure of Canadian populations of *Chondrostereum purpureum*, a potential biophytocide. *Molec. Ecology* 8: 113-122.
- Grossberg S. (1976).** Adaptive pattern classification and universal recoding, ii : Feedback, expectation, olfaction, and illusions. *Biological Cybernetics*, 23:187-202.
- Grossberg S. (1988).** Nonlinear neural networks : principles, mechanisms, and architectures. *Neural Networks*, 1:17-61.
- Guarnaccia J., Pinder G., et Fishman M. (1997).** NAPL: Simulator documentation, EPA/600/R-97/102, Environmental Protection Agency, United State.
- Guyonnet D. (1998).** Approche mathématique de l'impact des sites contaminés sur les eaux souterraines dans un contexte d'analyse de risque. Thèse, Ecole Polytechnique de Lausanne.
- Guyonnet D., Bourguine B., Chilès J.P., Fargier H. et Côme B. (2001).** Prise en compte de l'incertitude dans l'évaluation du risque d'exposition : cas d'un site pollué par du cadmium. Journée scientifique de l'Industrie Minérale et Environnement (IME), février 2001.
- Guyonnet D., Côme B., Perrochet P. et Parriaux A. (1999).** Comparing two methods for addressing uncertainty in risk assessments. *Journal of Environmental Engineering*, 125, 7, p. 660-666.
- Hadas A., Sagiv B. et Haruvy N. (1999).** Agricultural practices, soil fertility management modes and resultant nitrogen leaching rates under semi-arid conditions. *Agric. Water Manage.* 42, 81-95.
- Hall M.D., Shaffer M.J., Waskom R.M. et Delgado J.A. (2001).** Regional nitrate leaching variability: what makes a difference in northeastern Colorado. *Journal of the American Water Resources Association* 37(1), 139-408.
- Haykin S. (1994).** *Neural Networks: a comprehensive foundation*. Macmillan College Publishing Company, New York.
- Haynes R.J. (1986b).** Uptake and assimilation of mineral nitrogen by plants. In *Mineral nitrogen in the plant-soil system*, pp 303-378, *Physiological ecology*, ed. TT Kozłowski, Madison, Wisconsin, 483p.
- Hénault C. et Germon J.C (1995).** Quantification de la dénitrification et des émissions de protoxyde d'azote (N₂O) par les sols. *Agronomie*, 15, 321-355.
- Haykin S. (1996).** *Neural Networks: a comprehensive foundation*, Prentice Hall.
- Hillel D. (1988).** L'eau et le sol: Principe et processus physiques. Collection PEDASUP 5, 288p.
- Hillel D. (1998).** *Environmental soil physics*. Academic Press. San Diego, California. 427-443p.
- Hofstee C., Oostrom M., Dane J.H. et Walker R.C. (1998).** Infiltration and redistribution of perchloroethylene in partially saturated, stratified porous media. *Journal of Contaminant Hydrology*, Volume 34, Issue 4, 15 November 1998, Pages 293-313.
- Houston S. L., Houston W. et Wagner A. M. (1994).** Laboratory filter paper suction measurements, *Geotech. testing J.*, vol 17 N°2, pp. 185-194.
- Hsu K.L., Gupta H.V. et Sorooshian S. (1995).** Artificial neural network modeling of the rainfall-runoff process. *Water Resour. Res.* 31 (10), 2517-2530.
- Imhoff P.T., Jaffe P.R. et Pinder G.F. (1992).** An experimental study of the dissolution of trichloroethylene in saturated porous media, Princeton University Water Resources Program Report : WR-92-1.
- INERIS (2001).** Méthode de calcul des Valeurs de Constat d'Impact dans les sols. Document INERIS DRC-01-25587/DESP-R01, Novembre 2001.

- INERIS (2002).** Fiche de données toxicologie et environnementale des substances dangereuses (Trichloroéthylène). Document INERIS-DRC-00-N°25590-APi/SD –N°00DF039.doc, Version N°2 / avril 2002.
- INERIS (2003).** Fiche de données toxicologie et environnementale des substances chimiques (Trichloroéthylène). Document INERIS-DRC-00-N°25590-APi/SD –N°00DF039.doc, Version N°1 / décembre 2003.
- INERIS (2004).** Fiche de données toxicologie et environnementale des substances chimiques (Benzène). Document INERIS-DRC-01-N°25590-APi/SD –N°00DF256.doc, Version 6 janvier 2004.
- Jeannot R., Lemièrre B. et Chiron S. (2000).** Guide méthodologique pour l'analyse des sols pollués. Rap. BRGM R 50128, 110 p., 44 fig., 3 ann.
- Jellali S. (2000).** Pollutions d'aquifères poreux par les solvants chlorés. Mécanismes de transport avec échanges entre phases. Expérimentations sur site contrôlé avec le trichloroéthylène. Thèse, Université Louis Pasteur, Strasbourg.
- Kara R. (1998).** Mesures in situ des très faibles perméabilités - Contribution à l'amélioration des méthodes de mesure par expérimentation en vraie grandeur et modélisation numérique. Thèse, Institut National Polytechnique de Lorraine.
- Karunanithi N., Grenney W.J., Whitley D. et Bovee K. (1994).** Neural networks for river flow prediction. *Journal of Computing in civil Engineering*, ASCE 8 (2), 201-220.
- Katyal A. K., Kaluarachchi et Parker J. C. (1991).** Mofat: A two-dimensional finite element program for multiphase flow and multicomponent transport, Program documentation and User's guide, EPA/600/2-91/020, Environmental Protection Agency, U.S.A.
- Knox R.C., Sabatini D.A. et Canter L.W. (1993).** Subsurface transport and fate processes. Ed Lewis, 429p.
- Krahn J. et Fredlund D. G. (1971).** On total, matric and osmotic suction, *Soil science*, vol. 114 N°6, pp. 339-348.
- Lacherez S. (1996).** Caractérisation et suivi de l'avancée d'un front de pollution azoté dans la zone non saturée d'un bassin versant crayeux du Nord-Pas de Calais: la vallée de l'Escrebieux. Mémoire de DEA, Ecole nationale Supérieure de Géologie de Nancy.
- Lacherez S. (1997).** Examen des conditions d'exploitation du champ captant d'Airon-Saint-Vaast. Etude de la zone non saturée et de la nappe de la craie. Rapport du bureau d'étude SOREG.
- Lacherez S. (1998).** Caractérisation d'un front de pollution azotée dans la zone non saturée d'un bassin versant crayeux, Quiéry La Motte. Etude complémentaire du bureau d'étude SOREG.
- Lachtermacher G. et Fuller J.D. (1994).** Backpropagation in hydrological time series forecasting. In: K.W. Hipel, A.I. MacLeod, U.S. Panu & V.P. Singh (eds), *Stochastic and Statistical methods in hydrology and environmental engineering*, vol.3, time series analysis in hydrology and environmental engineering : 229-242.
- Lafolie F. (1991).** Modelling water flow, nitrogen transport and root uptake including physical non-equilibrium and optimization of the root water potential. *Fertilizer Research*. 27: 215-231.
- Lafolie F., Mary B., de Cockborne A. -M., Sevenier G., Mohrath D. (Soumis, 2002).** Water application rate consequences on crop growth, water and nitrogen balances: experiment and modeling. *Soil Science Society of America Journal*.
- Lake L.W. (1989).** Enhanced oil recovery. Prentice Hall, Englewood Cliffs, N.J.
- Lake I.R., Lovett A.A., Hiscock K.M., Betson M., Foley A., Sunnenberg G., Evers S. et Fletcher S. (2003).** Evaluating factors influencing groundwater vulnerability to nitrate pollution: Developing the potential of GIS. *Journal of Environmental Management* 68 (3), 315e328.
- Lallahem S. (2002).** Structure et modélisation hydrodynamique des eaux souterraines : Application à l'aquifère crayeux de la bordure nord du bassin de paris. Thèse univ. Lille1, 219p.

- Lallahem S. et Mania J. (2002a).** A linear and non-linear rainfall-runoff models to evaluate aquifer outflow. *Tribune de l'Eau*. N°1, Vol. 55, N° 615.
- Lancelot L., El Tabach E. et Shahrour I. (2002).** Modélisation des transferts de polluants. Rapport d'avancement de contrat n°1 pour la DDE Avesnes sur Helpe, 23 p.
- Lancelot L., El Tabach E., Shahrour I., Vachet C. et Najjar Y. (2003).** Transferts de polluants dans les zones non saturées. Application à l'impact d'une pollution accidentelle sur les eaux souterraines. 13^{ième} Congrès Régional d'Afrique de la Mécanique des Sols et de la Géotechnique, Marrakech 8 au 11 décembre 2003.
- Lancelot L., El Tabach E., Shahrour I. et Vachet C. (2003).** Transferts de polluants dans les zones non saturées-Application à l'impact d'une pollution accidentelle sur les eaux souterraines. 16^{ième} Congrès Français de Mécanique. Nice, 1-5 septembre.
- Lapidus L. et Amundson N.R. (1952).** Mathematics of absorption in beds. 6- The effects of longitudinal diffusion in ion exchange and chromatographic columns. *J. Phys. Chem.* 56, 984-988.
- Larocque M., Banton O., Gagnon J. et Camiré C. (2002).** Using models to manage soil inorganic nitrogen in forest tree nurseries. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 66 : 602-612.
- Lasserre F., Razack M. et Banton O. (1999).** A GIS-linked model for the assessment of nitrate contamination in ground water. *Journal of Hydrology* 224, 81-90.
- Laval-Martin et Mazliak (1995).** *Physiologie végétale. Tome 1 - Nutrition et métabolisme.* 1995 (Hermann).
- Lebon V. et Bour O. (1999).** TRANSPOL- Intercomparaison des méthodes et des modèles de migration de polluants dans les sols et les eaux. Proposition du cas-type 1 (version 1.1). Rapport INERIS-SSE-99-21EP02/R04 du 19 avril 1999.
- Lee Y.W., Dahab M.F. et Bogardi I. (1991).** Nitrate risk management under uncertainty. *Journal of Water Resources Planning and Management* 118(2), 151-165.
- Lefebvre R. (2003).** *Ecoulement multiphase en milieux poreux. Programme gradué en science de la terre, Université Laval/INRS-Eau, Terre et Environnement. Notes de cours, cinquième éditions.*
- Lenhard R. J. et Parker J. C. (1987).** Measurement and prediction of saturation-pressure relationships in three-phase porous media systems, *Journal of Contaminant hydrology*, Vol. 1, 407-424.
- Lyman W.J., Reehl W.F. et Rosenblatt D.H. (eds.) (1990).** *Handbook of chemical property estimation methods*, American Chemical Society, Washington DC, USA.
- Machet J.M., Pierre D., Recours S. et Rémy J.C. (1987).** Signification du coefficient réel d'utilisation et conséquences pour la fertilisation azotée des cultures. *C.R. Acad. Agric. de France*, 3 39-55.
- Maison P. (2000).** Un modèle hydrologique de suivi de la pollution diffuse en bassin versant- Approche mécaniste simplifiée de la zone non saturée. Thèse de doctorat à l'Institut National Polytechnique de Toulouse.
- Marinho F. A. M. et Chandler R. J. (1995).** Cavitation and the direct measurement of soil suction, 1st int. Conf. of Unsaturated Soils, Paris, vol. 2, pp. 623-630.
- Martin J.-C. et Roux J.-c. (1999).** *Pollutions accidentelles routières et autoroutières. Manuels et méthodes.* Edition BRGM.
- Mary B. (1992).** Gérer l'interculture pour maîtriser la pollution nitrique. Journée d'étude « interculture et nitrates », CORPEN-COMIFER, 16p.
- Mary B., Baudoin N., Justes E. et Machet J.M. (1999).** Calculation of nitrogen mineralization and leaching in fallow soil using a simple dynamic model. *European Journal of Soil Science.* 50: 549-566.
- Matheron G. (1970).** *La théorie des variables régionalisées et ses applications: Fascicule 5.* Centre de Géostatiques, Ecole des Mines de Paris, Fontainebleau, 212 p.

- Matthews A. M., Armstrong A.C., Leeds-Harrison P.B., Harris G.L. et Catt J.A. (2000).** Development and testing of a model for predicting tillage effects on nitrate leaching from cracked clay soils. *Soil & Tillage Research*. 53: 245-254.
- Mazzola A. (1997).** Integrating artificial neural networks and empirical correlations for the prediction of water-subcooled critical heat flux. *Rev. Gén. Therm.* 36, 799-806.
- Mc Bride M. (1994).** *Environmental Chemistry of Soils*. Oxford University Press, 352 p.
- McCulloch W.S. et Pitts W. (1943).** A logical calculus of the ideas immanent in nervous activity, *bull. Math. Biophys.*, 5, p. 115-133.
- McKee C.R. et Bumb A.C. (1984).** The importance of unsaturated flow parameters in designing a monitoring system for hazardous wastes and environmental emergencies. *In Proceedings, Hazardous Materials Control research Institute National Conference*, Houston, Texas, p. 50-58.
- McKee C.R. et Bumb A.C. (1987).** Flow-testing coalbed methane production of water and gaz. *SPE Formation Evaluation*, p. 599-608.
- Mendoza C. et Frind E. (1990).** Advective-dispersive transport of dense organic papers in the unsaturated zone, 1, Model development. *Water Resources Research* 26(3): 379-387.
- Mercer J.W. et Cohen R.M. (1990).** Transport of immiscible fluid in the subsurface, *Journal of Contaminant Hydrology*, Geotrans, Inc., Herndon, Virginia (USA), 80 pages.
- Miller Cass T., Christakos G., Imhoff P. T., McBride J. F., Pedit J. A. et Trangenstein J. A. (1998).** Multiphase flow and transport modeling in heterogeneous porous media: challenges and approches, *Advances in Water Resources*, Vol. 21, No.2, 77–120.
- Miller Cass T., Christakos G., Imhoff P. T., McBride J. F., Pedit J. A. et Trangenstein J. A. (1998).** Multiphase flow and transport modeling in heterogeneous porous media: challenges and approches, *Advances in Water Resources*, Vol. 21, No.2, 77–120.
- Ministère de l'Aménagement du Territoire et de l'Environnement (1996).** Directive n°96/61 CE du Conseil du 24 septembre 1996, relative à la prévention et la réduction intégrée de la pollution (dite directive IPPC).
- Mitchell R.J., Babcock R.S., Gelinis S., Nanus L. et Stasney D.E. (2003).** Nitrate distributions and source identification in the Abbotsford-Sumas aquifer, Northwestern Washington State. *Journal of Environmental Quality* 32, 789-800.
- Mollard A., Le Roch C., Lacroix A., Grappey C. et Bel F. (1998).** The choice of economic instruments applied to nonpoint water pollution : an economic approach based on the contribution of natural sciences. In M. O'Connor & U. Ganslasser : *Ecology and society : life sciences dimensions*. Filander Press, Francfort, 17 p.
- Montgomery D., Peck E. et Vining G. (2001).** *Introduction to linear regression analysis*, Wiley.
- Mualem Y. (1976).** A new model for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated porous media, *Water Resources Research*, Vol. 12 (No. 3), 513–522.
- Mualem Y. (1986).** Hydraulic conductivity of unsaturated soils: Prediction and formulas, *Methods of Soil Analysis, Part 1. Physical and Mineralogical Methods–Agronomy monograph no. 9 (2nd edition)*, 799–823, Madison, USA.
- Muller J.C. et Mary B. (1981).** Influence des résidus de culture sur la réorganisation de l'azote minéral. *C.R. Acad. Agric. de France*, 67 (10):898-901.
- Musy A. et Soutter M. (1991).** *Physique du sol*. Presses Polytechniques et Universitaires Romandes, Collection Gérer l'environnement, 6, 332 p.
- Nadal M., Schuhmacher M. et Domingo J.L. (2003).** Metal pollution of soils and vegetation in an area with petrochemical industry. *The Science of The Total Environment*, In Press, Corrected Proof.
- Najjar Y. (1999).** Quick Manual for the Use of ANN program TR-SEQ1. Department of Civil Engineering, Kansas State University, Manhattan, Kansas, USA.

- Najjar Y. et Zhang X. (2000).** Characterizing the 3D Stress-Strain Behavior of Sandy Soils: A Neuro-Mechanistic Approach, In Numerical Methods in Geotechnical Engineering, ASCE Geotechnical Special Publication No. 96, Filz, G. and Griffiths, D. (Editors), pp. 43-57.
- Najjar Y.M., Basheer I. A. et Hajmeer M. N. (1997).** Computational neural networks for predictive microbiology: i. Methodology. International Journal of Food Microbiology 34, pp. 27-49.
- Neel C. (1996).** Modélisation couplée du transfert et des transformations de l'azote: paramétrisation et évaluation d'un modèle en sol nu. Thèse Docteur, Paris, Université Paris 6: 254.
- Nowak C., Mossmann J.-R. et Saada A. (2002).** Etat des connaissances sur l'atténuation naturelle : mécanismes et mise en œuvre. Rapport BRGM/RP-51960-FR, 97 p., 9 fig., 10 tabl., 4 ann.
- NRC (National Research Council) (1994).** Alternatives for Ground Water Cleanup. Committee on Ground Water Cleanup Alternatives, Commission on Geosciences, Environment and Resources. National Academy Press, Washington, D.C., 315p.
- OMS (1994).** Directives de qualité pour l'eau de boisson. Genève, OMS. 2nd editing, vol 1, p 202.
- Oostrom M. et Lenhard R. J. (1998).** Comparaison of relative permeability–saturation–pressure parametric models for infiltration and redistribution of a light non–aqueous phase liquid in sandy porous media, Advances in Water Resources, Vol. 21, No.2, 145–157.
- Owens L. B. et Edwards W. M. (1993).** “Tillage Studies with a Corn-Soybean Rotation: Surface Runoff Chemistry.” Soil Science Society of America Journal. 57: 1055-1060.
- Pagotto C. (1999).** Etude sur l'émission et le transfert dans les eaux et les sols des éléments traces métalliques et des hydrocarbures en domaine routier. Thèse, Ecole des Mines de Nantes.
- Pankow J.F. et Cherry J.A. (1996).** Dense chlorinated solvent and other DNAPLs in ground water: history, behavior and remediation, Waterloo press, Ontario, Canada, 260 pages.
- Parker J. C., Lenhard R. J. et Kuppusamy T. (1987).** A parametric model for constitutive governing multiphase flow in porous media, Water Resources Research, Vol. 23, No. 4, 618–624.
- Pinder G. F. et Abriola L. M. (1986).** On the simulation of non–aqueous phase organic compounds in the subsurface, Water Resources Research, Vol 22, No. 9, 109–119.
- Pinheiro A. (1995).** Un outil d'aide à la gestion de la pollution agricole: Le modèle POLA. Institut National Polytechnique, Toulouse, 344 pages.
- Poulsen M.M. et Kueper B.H. (1992).** A field experiment to study the behavior of tetrachloroethylene in unsaturated porous media. Environ. Sci. Technol., 26(5), pp. 889-895.
- Razakarisoa O. (1990).** Dissolution et rétention sélective d'hydrocarbures en milieu poreux saturé. Impact de l'air résiduel et rôle du matériau solide lors de leur propagation, Thèse de l'Université Louis Pasteur de Strasbourg, 149 pages.
- Rémy J.C. (1981).** Etat actuel et perspectives de la mise en oeuvre des techniques de prevision de la fumure azotée. C.R. Académie Agric. France, 67, 859-874.
- Rémy J.C. et Hébert J. (1977).** Le devenir des engrais azotés dans le sol. C.R. Acad. Agr. France, 11 700-710.
- Richards L.A (1931).** Capillary conduction of liquids through porous medium, physics 1, p. 169-173.
- Richards L.A. (1941).** A pressure-membrane extraction apparatus for soil solution. Soil science, Vol. 51, pp. 377-386.
- Ridley A. M. et Burland J. B. (1993).** A new instrument for the measurement of soil moisture suction, Géotechnique 43 N°2, pp. 321-275.
- Robinson T. et Fallside F. (1991).** A recurrent error propagation network speech recognition system. Computer Speech and Language, 5:259-274.

- Rose W. (1987).** Relative permeability, Chapter 28 in Handbook of petroleum reservoir engineering, Society of petroleum engineers, Dallas.
- Sardin M. Schweich Leu F.J. et Van Genuchten M.Th. (1991).** Modeling the nonequilibrium transport of linearly interacting solutes in porous media : a review. *Water Res. Res.*, 27 (9):2287-2307.
- Scheidtger A. E. (1972).** The physics of flow through porous media, 3rd edition, University of Toronto press.
- Scheigg H. O. et Schwille F. (1991).** Hydrocarbons in porous media, Transport processes in porous media, Editors Bear J. and Corapcioglu M. Y., NATO ASI series, Series E: Applied Sciences, Vol. 202, pp. 71–201, Kluwer academic publishers, The Netherlands.
- Schofield R.K. (1935).** The pF of water in soil. *Trans. Intern. Cong. Soil Sci.* 3rd, 2, p.37-48.
- Schroth G., Salazar E. et Da Silva Jr. J.P. (2001).** “Soil Nitrogen Mineralization under Tree Crops and a Legume Cover Crop in Multi-Strata Agroforestry in Central Amazonia : Spatial and Temporal Patterns.” *Experimental Agricultural*. 37: 253-267.
- Schwille F. (1988).** Dense chlorinated solvents in porous and fractured media model experiments, Transcrit par Pankow J. F., English Language Edition, Lewis publishers, Chelsea, Michigan, 146 pages.
- Serhal H. (2004).** Transfert des flux azotés d’origine agricole. Rapport final pour l’entreprise « Lyonnaise des eaux », Mastère spécialisé en Génie de l’eau, Polytech’Lille.
- SETRA (1999).** L’eau & la route. La pollution accidentelle sur les grandes infrastructures. Volume 6. Service d’Etudes Techniques des Routes et Autoroutes.
- SETRA-CSTR, CETE de l’Est, CETE de Lyon (1989).** Je sale moins, je sale mieux. Rapport SETRA-CSTR, CETE de l’Est et de Lyon, note d’information, éditée par le SETRA, Bagneux, France, n° 53, 4p.
- Shahin M. A., Jaksa M. B. et Maier H.R. (2001).** Artificial Neural Network Applications in Geotechnical Engineering, *Australian Geomechanics* 36(1), Australian Geomechanics Society, pp. 49-62.
- Shen S.M., Hart P.B.S., Powlson D.S. et Jenkinson D.S. (1989).** The nitrogen cycle in the Broadbalk Wheat Experiment: 15N labeled fertilizer residues in the soil and in the soil microbial biomass. *Soil Biol. Biochem.*, 21, 529-533.
- Simunek J., Sejna M. et Van Genuchten M. Th. (1998).** The HYDRUS-1D software package for simulating the movement of water, heat, and multiple solutes in variably saturated media. Riverside, California, U.S., Salinity Laboratory, USDA, ARS.
- Singh M., Bhattacharya A. K., Nair T.V.R., Singh A.K. (2002).** Nitrogen loss through subsurface drainage effluent in coastal rice field from India. *Agricultural Water management*. 52: 249-260.
- Sivertun A. et Prange L. (2003).** Non-point source critical area analysis in the Gisselo watershed using GIS. *Environmental Modelling & Software* 18 (10), 887-898.
- Skandaji H. (1996).** Déformabilité des sols argileux non saturés: étude au laboratoire et application à la modélisation. Thèse de doctorat, INPL, Nancy, 320 p.
- Sleep B. E. et Sykes J. F. (1989).** Modeling the transport of volatile organics in variably saturated media, *Water Resources Research*, Vol. 25, No.1, 81–92
- Smith J. et Eli R.N. (1995).** Neural-Network Models of Rainfall-Runoff Process, *Journal of Water Resources Planning and Management*, 121, 499-509.
- Smith M.S. et Tiedge J.M. (1979a).** Phases of denitrification following oxygen depletion in soil. *Soil Biol. Biochem.*, 11:261-267.
- SOGREAH (2000).** "RN2 : Mise à 2x2 voies entre Avesnes-sur Helpe et Maubeuge. Etude Hydraulique et Hydrogéologique", Rapport d'étude n°830061 R1, Direction Départementale de l'Équipement (DDE) d'Avesnes-sur-Helpe. Octobre 2000.

- SOLEN (2002).** RN2 : Rapport d'étude géotechnique N° G01915BE02CR01V1BE.doc 02CR01V1BE. Résultats des essais de perméabilité du type NASBERG.
- Solley W. B., Pierce R. R., et Perlman H. A. (1993).** Estimated Use of Water in the United States in 1990, U.S. Geological Survey Circular 1081, Washington, DC, 1993.
- SOREG (2002).** Synthèse des résultats de la campagne de 19 sondages à Houlle et Moulle. Rapport, Polytech'Lille, Mastère Génie de l'eau.
- Soulas G. (1996-b).** Modelling of Biodegradation of Pesticides in Soil. In "Soil Ecotoxicology", Chap. 5, pp. 117, CRC Press, Lewis Publishers.
- Soulas G. et Lagacherie B. (1990).** Modelling of microbial processes that govern degradation of organic substrates in soil, with special reference to pesticides. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. B.* 329, 369-373.
- Standford G., Frere M.H. et Schwaninger D.H. (1973).** Temperature coefficient of soil nitrogen mineralization. *Soil Science*, 115 (4):321-323.
- Standford G. et Vander Pol R.A., Dzienia S. (1975).** Denitrification rates in relation to total and extractable soil carbon. *Soil Sci. Soc. Amer. Proc.*, 39, 284-289.
- Stephens D.B. (1996).** Vadose zone hydrology. Lewis Publishers, Boca Raton, Florida.
- Tang B., Hsieh W., Monahan A. et Tangang F. (2000).** Skill comparisons between neural networks and canonical correlation analysis in predicting the equatorial Pacific sea surface temperatures. *J. Climate*: 13, 287-293.
- Tesoriero A.J. et Voss F.D. (1997).** Predicting the probability of elevated nitrate concentrations in the Puget Sound Basin: implications for aquifer susceptibility and vulnerability. *Ground Water* 35(6), 1029-1039.
- Tessier D. (1975).** Recherches expérimentales sur l'organisation des particules dans les argiles, Thèse d'Ingénieur, Conservatoire National des Arts et Métiers.
- Tindall J.A., Petrusak R.L. et McMahan P.B. (1995).** Nitrate transport and transformation processes in unsaturated porous media. *J. Hydrol.* 169, 51-94.
- Tokar A.S. et Johnson P.A. (1999).** Rainfall-runoff modeling using artificial neural networks. *J. Hydrology. Engng ASCE* 4(3), 232-239.
- Trindade H., Coutinho J., Jarvis S. et Morira N. (2001).** Nitrogen mineralisation in sandy loam soils under an intensive double - cropping system with dairy-cattle slurry applications. *European Journal of Agronomy*. 15: 281-293.
- US-EPA/SWER (2000).** Proceedings of the Ground-Water/Surface-Water Interactions WorkShop. Rapport EPA/542/R-00/007, United States Environmental Protection Agency, Solid Waste and Emergency Response, Washington, DC 20460.
- Vachier P., Cambier P. et Prost R. (1979).** Structure d'un milieu poreux : la craie. *Ann. Agron.*, 30, n°2, p 247-263.
- Van Genuchten M. Th., Davidson J.M. et Wierenga P.J. (1974).** An evaluation of kinetic and equilibrium equations for the prediction of pesticide movement in porous media. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 38, 29-35.
- Van Genuchten M. Th. (1980).** A closed-form equation for the hydraulic conductivity of unsaturated soils, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, Vol. 44, 892-898.
- Van Genuchten M.Th. et Wierenga P.J. (1976).** Mass transfer studies in sorbing porous media. I- Analytical solutions. *Soil Sci. Soc. Am. Proc.*, 38, 29-35.
- Van Genuchten M. Th., Garelick S.M. et Yeh W.W.G. (1990).** Application of parameter estimation techniques to solute transport studies. In D.G. DeCoursey (Ed.), *Proceedings International Symposium on Water Quality Modeling of Agricultural non-point sources*. June 19-23, Logan, UT, U.S. Dep. of Ag., Ag. Res. Serv., ARS-81, 731-754.
- Varado N. (2004).** Contribution au développement d'une modélisation hydrogéologique distribuée. Application au bassin versant de la Donga, au Bein. Thèse de doctorat à l'Institut National Polytechnique de Grenoble (INPG).

- Vauclin M. (1994).** Modélisation du transport de solutés dans la zone non saturée du sol. *Revue des sciences de l'eau*, 7 (1994) 81-102.
- Vauclin M. et Angulo-Jaramillo R. (1995).** Water and Solute Transport Processes in Unsaturated Soils : Some Hydrological and Geotechnical Aspects. 1st. Conf. On Unsaturated Soils, 1995. Paris.
- Veerkamp W. et Berge W. (1995).** The concepts of HESP. Reference Manual. Human Exposure to Soil Pollutants. Version 2.10b. SHELL Internationale Petroleum Maatschappij B.V., The Hague.
- Verbrugge J. C. (1978).** Emploi d'une méthode psychrométrique dans des essais triaxiaux sur un limon remanié non saturé, *Canad. Géotech. J.*, vol. 15, pp. 501-509.
- Vereecken H., Vanclooster M., Swerts M. et Diels J. (1991).** Simulating water and nitrogen behaviour in soils cropped with winter wheat. *Fertilizer Research*. 27: 233-243.
- Visser W.C. (1966).** Progress in the knowledge about the effect of soil moisture content on plant production. Inst. Land. Water Management, Wageningen, Netherland, Tech., Bull. 45.
- Vose D. (1996).** « Quantitative risk analysis - A guide to Monte-Carlo simulation modelling ». John Willey & Sons Ltd.
- Watts D.G. et Hanks R.J. (1978).** A soil-water-nitrogen model for irrigated corn on sandy soils. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 42 492-499.
- Wellings S.R. et Bell J.P. (1980).** Movement of water and nitrate in the unsaturated zone of the upper chalk near Winchester, Hants, England. *J. Hydrol.*, 48, p 119-136.
- Williams J. R., Prebble E., Williams W.T. et Hignett C.T. (1983).** The influence of texture, structure and clay mineralogy on the soil moisture characteristic. *Aust. J. Soil Res.*, 21: 15-31.
- Wills B. A. (1988).** Mineral Processing Technology. 4^{ième} édition ed. Oxford: Pergamon Press; 1988; p.855.
- Wolfe A.H. et Patz J.A. (2002).** Reactive nitrogen and human health: acute and long-term implications. *Ambio* 31(2), 120-125.
- Young R. N. et Warkentin B. P. (1975).** Soil properties and behaviour, Elsevier Sci. Pub., Amsterdam, 449p.
- Zilliox L. (1980).** Multiphase flow in porous media, Aquifer contamination and protection, UNESCO Studies and reports in hydrology, n°30, oct. 1980, pp. 163-175, R.E. Jackson Editor, Ottawa (CND).

SITES INTERNET

A titre indicatif, voici quelques sites Internet d'organisations françaises et étrangères, classées par ordre alphabétique, dont la consultation peut être utile dans le cadre de notre étude.

- American Industrial Hygiene Association (AIHA): <http://www.aiha.org/>
- Banque données ATSDR : www.cdc.gov
- Banque de données HSDB : toxnet.nlm.nih.gov/cgi-bin/sis/htmlgen?HSDB
- Banque données TERA : www.tera.org/iter
- Banques de données US- EPA : www.epa.gov/ngispgm3/iris
www.epa.gov/medecotx/index.html
- Basic Env. Tech.: http://faculty.ucc.edu/engineering/nathanson/relevant_web_sites.htm
- Bureau Européen des produits chimiques : ecb.ei.jrc.it/
- Canadian Environmental Assessment Agency: <http://www.ceaa.gc.ca/>
- Centre Commun de Recherche : www.jrc.org
- Centre de documentation (100 sites internationaux) :
http://www.equipement.gouv.fr/statistiques/centrdoc/cdat/centsites_i/autoroute.htm
- CIRC/IARC : 193.51.164.11/default.html
- CLU-IN Publications and Software: <http://clu-in.org/pub1.htm>
- Compilation of National Recommended Water Quality Criteria and EPA's Process for Deriving New and revised Criteria:
<http://www.epa.gov/ost/standards/wqcriteria.html>
- CSIRO Australia – Scientific and Industrial Research: <http://www.csiro.au/>
- Environmental Agencies of the World – NIPR: <http://www.worldbank.org/nipr/epas.htm>
- Enviro\$en\$e – US EPA: <http://es.epa.gov/>
- EPA – Databases and Software – Media Information:
<http://www.epa.gov/epahome/dmedia.htm>
- Euro Env Agency – Policy measures and instruments:
<http://themes.eea.eu.int/theme.php/improvement/policy>
- Federal Remediation Technologies Roundtable: <http://www.frtr.gov>
- Hazardous Waste Clean-Up Information (CLU-IN): <http://clu-in.org/>
- Impact des tracés routiers sur les nappes d'eaux souterraines :
<http://www.jan.it/geologie/home.html>
- INRA Courier de l'environnement: <http://granit.jouy.inra.fr/dpenv/pa.htm>
- Institut National de la Recherche et de la Sécurité
www.inrs.fr
- La pollution des eaux souterraines en Picardie (Aurélié DESBORDES) :
<http://www.u-picardie.fr/~beaucham/duce/desborde/desborde.htm>
- Le risque de transport de matières dangereuses :
<http://www.seine-saint-denis.pref.gouv.fr/pdf/DDRM/transport%20matieres%20dangereuses.pdf>
- Liens ministères Environnement : <http://www.environnement.gouv.fr/liens/liens.htm>
- Ministère de l'écologie et du développement durable - gouvernement français (les risques majeurs) :
<http://www.environnement.gouv.fr/dossiers/risques/risques-majeurs/default.htm>
- National Library for the Environment: <http://www.cnie.org/nle/>
- OMS : www.who.int/home/reports.html

- Pollutions accidentelles : données 2000 – fiche 7 (SPPPI TOULOUSE):
http://www.geotrouvetout.fr/spppi/pdf/fiches_observatoire/2001/fiche7.pdf
- Réseau des données sur l'eau du bassin Rhône-Méditerranée-Corse, SDAGE :
<http://rdb.eaurmc.fr/sdage/sdage.php>
- Scientific Software Group: <http://www.scisoftware.com>
- The OPUS-IA project (transport of Organic Pollutants in Unsaturated Soil):
<http://www.dgrwww.epfl.ch/PAS/opus.fr.html>
- TOF Quelques Textes Officiels Français: <http://www.adminet.com/jo/tof.html>
- Transport de matières dangereuses :
<http://www.caplaser.fr/sitesclients/risquesmajeurs31/Prefecture/tmd2.htm>
- United Nations Economic Commission for Europe (UNECE) – Infrastructure routière:
http://www.unece.org/trans/main/sc1/sc1doc_2002.html
- UK-EPA Groundwater and Contaminated Land Issues:
<http://www.environment-agency.gov.uk/gwcl/>
- US Department of energy Office of Environmental Management (EM):
<http://www.em.doe.gov/>
- US-EPA, accès au Federal Register : www.epa.gov
- US EPA, chemicals list: <http://www.epa.gov/opptintr/chemtest>
- USE EPA Terms of Environment: <http://www.epa.gov/OCEPAterms/>
- WHO Drinking Water Quality Guidelines:
http://www.who.int/water_sanitation_health/GDWQ/GWDWQindex.html

ANNEXES

ANNEXE I

- ❖ **Caractéristiques physico-chimiques des contaminants.**
- ❖ **Propriétés du milieu traversé.**

I- Introduction

Tout au long du trajet du polluant de la surface vers les nappes, des processus physiques et chimiques d'intensité variable selon la nature des milieux traversés et les caractéristiques du polluant contribueront à réduire les niveaux de concentration initiaux.

Dans cette annexe, nous définissons les paramètres physico-chimiques des polluants ainsi que celles du milieu traversé. Bien que placés en annexe, ces paramètres sont indispensables pour la compréhension du transport des polluants en milieux poreux. Les définitions de ces paramètres sont une synthèse obtenue de confrontations d'informations disponibles dans : Lefebvre, 2003 ; Alshihabi, 2002 ; BRGM 300, 2001 ; Jellali, 2000 ; Delage et Cui, 2000 ; Gosselin *et al.*, 1999 ; Kara, 1998 ; Pankow et Cherry, 1996.

II- Caractéristiques physico-chimiques des contaminants

II.1- Solubilité dans l'eau ou hydrosolubilité

La *solubilité* définit la concentration d'une substance se dissolvant dans l'eau lorsque l'eau et la substance sont en équilibre ; elle est fonction de la température (ligne directrice 105 de l'OCDE). Cette propriété indique la tendance à la mobilisation de la substance par lessivage lors d'épisodes pluvieux ou par ruissellement ou inondation. On notera qu'une solubilité faible peut être significative en terme de risque lorsqu'elle affecte un composé qui est toxique à faible dose. Une solubilité forte constitue un facteur aggravant des pollutions (dispersion accélérée dans l'eau, biodisponibilité fortement accrue). Par contre, les polluants très solubles sont en général plus facilement biodégradables. Selon la directive 67/548/CEE, une substance chimique est considérée comme insoluble si la solubilité est inférieure à 1mg/l.

II.2- Densité

La *densité* d'une substance est le quotient de sa masse volumique et de la masse volumique de l'eau pour une substance liquide ou de l'air pour une substance gazeuse. Elle affecte généralement peu son infiltration dans la tranche de sol située au-dessus de la nappe. Par contre, elle contrôle fortement son comportement dans la zone saturée. Si le liquide est immiscible (cas des hydrocarbures, par exemple), le contaminant s'accumulera de préférence en surface de la nappe si sa densité est inférieure à 1, et au plancher de celle-ci si elle est supérieure à 1.

La *densité de vapeur* des produits volatils est exprimée par rapport à l'air. Si elle est supérieure à 1, la fraction volatile s'accumulera au toit de la nappe. Si elle est inférieure à 1, cette fraction tendra à se disperser vers l'atmosphère via la zone non saturée.

II.3- Persistance

La persistance d'une substance chimique est caractérisée par sa durée de vie (DT (*Dissipation Time*)) dans les différents compartiments environnementaux et le type de dégradation qu'elle subit (type de réaction, conditions environnementales, produits de dégradation...).

Le DT₅₀ et le DT₉₀ correspondent au temps nécessaire pour dégrader 50% et 90% de la substance chimique (Directive 95/36/CE et 91/414/CEE). La dégradation peut être primaire (simple disparition de la substance) ou totale (métabolisation de la substance).

Selon la Directive 91/414/CEE, une substance est considérée :

- persistante si le DT_{50} est supérieur à 90 jours.
- moyennement persistante si le DT_{50} est compris entre 30 et 90 jours.
- non persistante si le DT_{50} est inférieure à 30 jours.

II.4- Coefficient de partage (n-octanol/eau) K_{ow}

Ce coefficient est défini comme le rapport de concentration à l'équilibre d'un composé entre une phase eau et une phase n-octanol. Dans ce cas,

$$K_{ow} = C_{octanol} / C_{eau} \quad (A.1)$$

Le coefficient de partage est donc le quotient de deux concentrations. Il est habituellement donné sous la forme de son logarithme à base de dix ($\log K_{ow}$) (ligne directrice 107 de l'OCDE). Un composé est dit non polaire ou apolaire si $\log K_{ow} > 4$, polaire si $\log K_{ow} < 1,5$ et moyennement polaire si $\log K_{ow}$ est compris entre ces deux valeurs.

La polarité d'un polluant va influencer sur la manière dont il se fixe dans les sols, et notamment sur la matière organique. Elle va influencer sur la manière dont il est mobilisé par l'eau de pluie ou dont il en est extrait lors des opérations de dépollution. Elle influence aussi sur sa biodisponibilité et sur son potentiel de bioaccumulation.

II.5- Coefficient de partage (carbone organique / eau) K_{oc}

Il est égal au rapport entre la quantité adsorbée d'un composé par unité de masse de carbone organique du sol ou du sédiment et la concentration de ce même composé en solution aqueuse à l'équilibre (Handbook of Chemical Property Estimation Methods, Lyman *et al.*, 1990).

Le K_{oc} peut être utilisé pour déterminer la répartition d'un composé entre l'eau et le solide. Plus le K_{oc} est élevé, plus la substance se liera préférentiellement à la phase solide du sol (ou des sédiments) par rapport à la phase aqueuse.

Le K_{oc} peut être déterminé :

- expérimentalement (ligne directrice 106 de l'OCDE) ;
- par calcul en utilisant les relations de type Structures Activités quantitatives (QSAR) qui permettent d'estimer le K_{oc} à partir du K_{ow} (Blondel, 2001).

Selon le comité de liaison Ministère chargé de l'environnement/Ministère de l'Agriculture (document du 01/08/1994), une substance est considérée :

- mobile si K_{oc} est inférieure à 100 ;
- moyennement mobile si le K_{oc} est compris entre 100 et 500 ;
- très peu mobile si le K_{oc} est supérieur à 500.

II.6- Constante de tension de vapeur et constante de Henry

La volatilité d'un composé organique est définie par sa constante de tension de vapeur à 20°C. La tension de vapeur est la pression partielle d'un composé dans la phase gazeuse, en équilibre avec le solide pur ou le liquide pur. Elle est fonction de la température et s'exprime en Pa. Il existe une relation entre la tension de vapeur et le point d'ébullition d'un composé organique : plus sa tension de vapeur est faible, plus son point d'ébullition est élevé.

La constante de Henry détermine la tendance d'un polluant à se volatiliser de l'eau de la nappe vers les gaz du sol.

La loi de Henry précise que la concentration d'un polluant en phase vapeur est directement proportionnelle à sa concentration en phase liquide. Chaque composé chimique présente une constante de Henry qui lui est propre. La loi de Henry est décrite par :

$$C_a = H \times C_l \quad (A.2)$$

Où H : Constante de Henry (atm.m³/mole),
C_a : Concentration dans l'air (atm),
C_l : Concentration dans l'eau (moles/m³).

Les constantes de Henry sont élevées pour les hydrocarbures légers et négligeables pour les hydrocarbures lourds et le PCP (Pentachlorophénol).

La volatilité d'un polluant influe sur la manière dont il s'infiltré dans les sols, dont il s'en libère par évaporation naturelle ou dont il peut en être éliminé lors des opérations de dépollution ; Cette propriété est importante pour le choix d'une technique de dépollution.

II.7- pKa

Le pKa ou constante d'ionisation acide-base définit la tendance à l'ionisation des composés dans les sols de pH compris entre 5 et 8. Plus cette valeur de pKa est élevée, plus faible est le caractère acide du composé et plus faible également sa tendance à être ionisé. Les composés acides ayant un pKa inférieur à 3-4 seront mobiles dans les sols tandis que les composés basiques ayant un pKa supérieur à 10 seront retenus.

Cette donnée est également utile pour définir les conditions d'extraction des polluants, notamment la définition du pH d'extraction.

II.8- Viscosité

Cette propriété physique résulte de la friction à l'intérieur d'un fluide en mouvement et l'entraîne à résister à l'écoulement. Elle s'exprime en poise (Kg*s/cm² ou Pa*s). Lors d'un déversement accidentel, un produit ayant une faible densité s'infiltrera plus facilement qu'un autre ayant la même densité mais une viscosité plus élevée.

La viscosité cinématique (ν) est établie comme étant le rapport de la viscosité dynamique (μ) sur la masse volumique (ρ):

$$\nu = \frac{\mu}{\rho} \quad (A.3)$$

II.9- Tension de surface entre phases (tension interfaciale)

La tension interfaciale (σ, N/m) est l'énergie (travail) requise pour créer une nouvelle unité de surface à l'interface entre deux fluides immiscibles. On distingue la tension interfaciale, qui est présente entre deux fluides immiscibles, de la tension de surface, qui se produit entre un liquide et sa vapeur.



Figure A.1 : Définition de la tension interfaciale.

Pour créer une unité d'aire dA , on exerce une force F sur une distance dx :

$$dW = \sigma \times dA \tag{A.4}$$

$$\sigma = \frac{\text{Travail}}{\text{Aire}} = \frac{F \cdot dx}{dA} \quad [=] \quad \left[\frac{N \cdot m}{m^2} \right] \quad [=] \quad \left[\frac{N}{m} \right] \quad [=] \quad \left[\frac{Kg}{s^2} \right] \tag{A.5}$$

Cette interface résulte du déséquilibre des forces d'attraction entre les molécules différentes au contact des deux fluides immiscibles (figure A.2). Lorsque l'un des deux fluides est complètement entouré par l'autre fluide, il formera une sphère puisque c'est la forme qui minimise la surface entre les deux fluides et ainsi minimise l'énergie de surface.

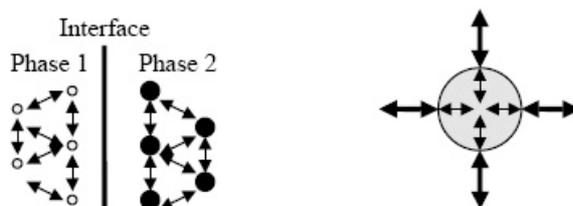


Figure A.2 : Causes moléculaires de la tension interfaciale.

Lorsqu'une interface entre deux fluides immiscibles est courbe, la pression est toujours plus élevée du côté concave par une valeur qui dépend de la tension interfaciale et de la courbure de l'interface. Ce phénomène résulte du fait que le déplacement de l'interface courbe implique une augmentation de la surface entre les deux fluides immiscibles et un travail doit être fait pour créer cette nouvelle surface. Ainsi, la tension interfaciale peut être mesurée par la pression qui doit être exercée dans un tube capillaire placé à l'interface de deux fluides immiscibles pour briser cette interface (injecter des bulles du fluide léger dans le fluide plus dense) (figure A.3).

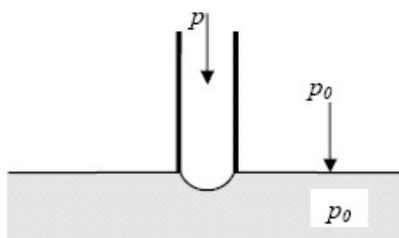


Figure A.3 : Mesure de la tension interfaciale par un tube capillaire.

A la figure A.3, on représente un tube capillaire placé à l'interface entre de l'eau et l'atmosphère. La pression au-dessus et au-dessous de l'interface est la même lorsque celle-ci est plane et est alors égale à la pression atmosphérique plus la pression de vapeur au-dessus de l'interface p_0 . Si on applique une pression p sur l'interface dans le tube capillaire, une bulle d'air se forme à la base du tube. Lorsque la bulle devient instable presque au point de se briser, sa

forme est hémisphérique avec un rayon R. La surface de la bulle A est alors $2\pi R^2$ et, si le rayon est augmenté à $R+dR$, l'augmentation de la surface sera de :

$$dA=4\pi R dR \quad (A.6)$$

et le travail dW requis pour créer cette surface dépend de la tension interfaciale :

$$dW= 4\pi R \sigma dR \quad (A.7)$$

Maintenant, on détermine le travail exercé par la différence de pression $p-p_0$. La force nette exercée sur un élément de surface dS de l'hémisphère est de $(p-p_0)dS$. Le travail $(F \times d)$ résulte de déplacement dR de l'interface fait par cette force, soit $(p-p_0)dS \times dR$. Le travail total sur l'ensemble de l'hémisphère est obtenu en substituant l'aire totale pour dS :

$$dW=(p-p_0) \times 2\pi R^2 dR \quad (A.8)$$

Le travail fait par la différence de pression est égal au travail fait par l'augmentation de la surface contre la tension interfaciale. Le rayon R de l'hémisphère est aussi égal au rayon du tube capillaire r, de sorte que l'on obtient la relation :

$$4\pi R \sigma dR=(p-p_0) \times 2\pi R^2 dR \quad (A.9)$$

$$(p-p_0)=\frac{2\sigma}{R}=\frac{2\sigma}{r} \quad (A.10)$$

Le tableau A.1 donne des valeurs typiques de tension interfaciale pour quelques systèmes. Dans la pratique, la tension interfaciale est déterminée par l'une des trois méthodes suivantes :

- 1) La goutte en rotation (*spinning drop*) : σ par la déformation d'une sphère de liquide immiscible en rotation.
- 2) La goutte sessile (*sessile drop*) : σ par la forme d'une goutte isolée en contact avec un solide.
- 3) La goutte pendante (*pending drop*) : σ par la forme d'une goutte attachée à une seringue.

Système de fluide	σ ($\times 10^{-3}$ N/m)
Air-eau	70
Air-huile	20-50
Air-mercure	500
Eau-huile	30
Verre-air	200-300
Fluide-minéral	100

Tableau A.1 : Valeurs typiques de tension interfaciales σ

Puisque chaque système tend vers une énergie minimale, une goutte d'eau aura tendance à déplacer l'air d'une surface de verre et à la mouiller puisque la tension interfaciale entre le verre et l'eau est moindre qu'entre le verre et l'air. De façon générale, les gaz (l'air ou la plupart des gaz) ne sont pas les fluides mouillants par rapport aux liquides (eau et huiles) sur les minéraux.

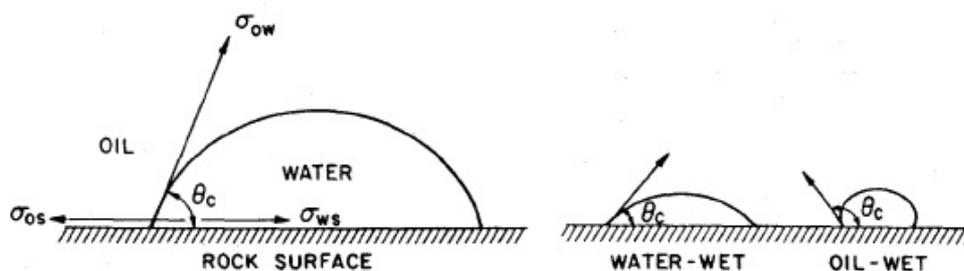


Figure A.4 : Angle de contact et tension interfaciale (Craig, 1971).

Dans un système huile (o) – eau (w) – solide (s), on a la relation suivante :

$$\sigma_{os} - \sigma_{ws} = \sigma_{ow} \times \cos\theta_c \quad (\text{A.11})$$

C'est l'équation de Young-Dupré qui exprime la relation entre les tensions de surface σ et la mouillabilité relative des fluides pour le solide représentée par l'angle de contact θ_c (figure A.4). La notion de mouillabilité est présentée plus en détail à la section suivante.

II.10- La mouillabilité

La mouillabilité est la tendance relative d'un fluide à s'étendre ou à adhérer à une surface solide en présence d'un autre fluide immiscible. La mesure de la mouillabilité est appréhendée par l'angle de contact à l'interface solide-fluide (figure A.5).

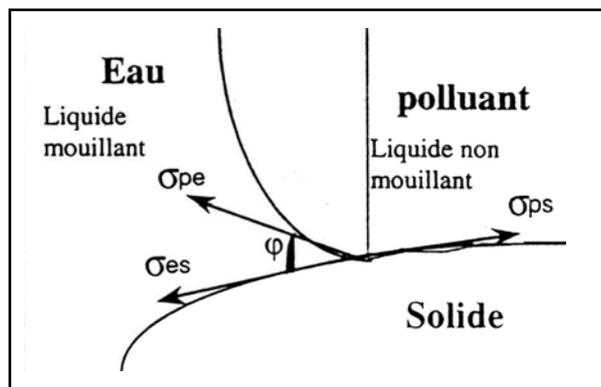


Figure A.5 : Contact eau –polluant non miscible au voisinage d'une paroi solide (Razakarisoa, 1990).

Pour deux fluides, tels que polluant et eau, en contact avec une surface solide, la loi de Young définit l'angle de contact à l'interface par :

$$\cos \varphi = \frac{(\sigma_{ps} - \sigma_{es})}{\sigma_{pe}} \quad (\text{A.12})$$

Où σ_{ps} , σ_{es} et σ_{pe} sont respectivement les tensions interfaciales polluant-solide, eau-solide et polluant-eau. Le fluide du côté où (φ) est inférieur à 90° est appelé fluide mouillant ; l'autre fluide est alors non mouillant. En général, l'eau mouille préférentiellement les surfaces solides par rapport aux solvants chlorés.

Les conditions de mouillabilité sont affectées par différents facteurs tels que la minéralogie du milieu poreux, la composition chimique du polluant et l'eau, la présence de matières organiques et la répartition des fluides dans le milieu poreux.

La majorité des DNAPLs ont une mauvaise mouillabilité en comparaison avec l'eau. En conséquence, dans un espace de pores donné, l'eau peut remplir un volume plus important et des pores plus petits que la plupart des liquides formant des DNAPLs. En revanche, des liquides en phase peuvent pénétrer dans un espace à pores suffisamment grands pour remplacer l'eau en présence et pour rester piégés dans cet espace, grâce à la tension de surface.

III- Propriétés du milieu traversé

III.1- Granulométrie

L'analyse granulométrique est définie comme étant la séparation d'un ensemble de particules en fonction de leur grosseur afin d'obtenir des ensembles de particules appelés fractions granulométriques. Ces fractions sont constituées de particules dont la grosseur couvre un intervalle relativement restreint et diminue d'une fraction à l'autre.

La grosseur d'une particule sphérique peut être définie par une seule dimension, le diamètre, et celle d'une particule cubique par la longueur d'un côté. Cependant, les particules constituant les sédiments, les sols et les boues sont généralement de formes irrégulières et leur grosseur ne peut être définie avec précision. C'est pourquoi l'expression "diamètre équivalent" est utilisée. Ce terme est défini comme le diamètre d'une sphère qui aurait le même comportement qu'une particule de forme irrégulière soumise à une opération spécifique telle que le tamisage ou la centrifugation. Il existe plusieurs méthodes d'analyse granulométrique. Le tableau A.2 en présente quelques-unes en fonction des diamètres de particules auxquelles elles s'appliquent.

Méthode	Intervalle d'applicabilité (μm)
Tamisage	100 000 à 10
Élutriation	40 à 5
Microscopie optique	50 à 0,25
Sédimentation (gravité)	40 à 1
Sédimentation (centrifugation)	5 à 0,05
Microscopie électronique	1 à 0,005

Tableau A.2 : Quelques méthodes d'analyse granulométrique (extrait de Wills, 1988).

On a sur ce schéma l'échelle la plus couramment utilisée. On commence par faire un séchage du sol, puis, on tamise à 2mm pour avoir le refus (parties plus grosses que 2mm) et la terre fine (inférieure à 2mm) qui servira aux analyses. Il faut toutefois penser à bien tenir compte du refus. Entre 50 μm et 2000 μm on a les sables (sable fins de 50 à 200 et sables grossiers de 200 à 2000) ; Les limons de 2 μm à 50 μm (limons fins de 2 à 20 puis grossiers de 20 à 50) ; les argiles qui sont de taille inférieure à 2 μm . Ici, on parle d'argiles au sens de la taille, pas au niveau minéralogique.

III.2- Porosité

Dans la littérature, il existe plusieurs. En règle générale, la notion de porosité correspond au volume des vides délimité par les constituants solides par rapport au volume total de l'échantillon. Nous retiendrons celles les plus utilisés en hydrodynamique des milieux poreux, la porosité totale (η) et la porosité cinématique (ϵ).

$$\eta = \frac{V_V}{V_T} \quad (\text{A.13})$$

$$\varepsilon = \frac{V_P}{V_T} \quad (\text{A.14})$$

Avec : V_V : volume des vides,
 V_P : volume de pores occupés par le fluide en mouvement,
 V_T : volume total de l'échantillon de milieu poreux.

Les valeurs de la porosité totale varient généralement entre 10 % (pour un milieu continu compact) et 60 % (argile plus ou moins expansée). Cette porosité présente peu d'intérêt car seuls les pores interconnectés sont susceptibles de jouer un rôle actif dans l'écoulement de fluide au sein du milieu poreux, d'où l'intérêt de définir et d'utiliser la porosité cinématique.

III.3- Surface spécifique

La surface spécifique d'un milieu poreux est le rapport de la surface totale des grains par rapport à l'unité de volume ou de masse de l'échantillon. Elle s'exprime respectivement en cm^2/cm^3 ou cm^2/g . C'est le facteur principal des réactions physico-chimiques d'interface eau-roche. La surface spécifique varie énormément d'un milieu à l'autre, tout en étant plus grande lorsque le milieu est riche en particules fines. D'une manière générale, elle est de l'ordre de la centaine de cm^2/cm^3 pour le sable, et de plusieurs millions de cm^2/cm^3 pour l'argile.

III.4- Perméabilité

Cette notion, très utile dans les lois d'écoulement caractérise la facilité avec laquelle l'eau s'écoule à travers le milieu poreux sous l'effet d'un gradient de pression. On définit deux notions de perméabilités :

- Perméabilité intrinsèque (k) : c'est une grandeur spécifique au milieu poreux.
- Coefficient de perméabilité (K) : appelé aussi coefficient de Darcy, il dépend non seulement des caractéristiques du milieu poreux mais aussi des propriétés physiques du fluide en circulation (masse volumique, viscosité...). Elle est reliée à la perméabilité intrinsèque par la formule suivante :

$$K = \frac{\rho \cdot g}{\mu} \cdot k \quad (\text{A.15})$$

Avec g : Accélération de la pesanteur,
 ρ : Masse volumique du fluide,
 μ : Viscosité dynamique du fluide.

Notons que la connaissance de la valeur de la perméabilité à différents lieux et à différentes cotes d'un réservoir permet d'en apprécier l'hétérogénéité.

III.5- Dispersivité

Elle est définie comme étant la capacité du réservoir à disperser les éléments transportés par le fluide et est représentative de l'échelle de mesure. Sa détermination nécessite la connaissance d'un paramètre appelé coefficient de dispersion qui peut être déterminé à partir de l'exploitation de la courbe de sortie d'un traceur. Dans la direction de l'écoulement moyen de l'écoulement, ce coefficient (D_L) est donnée par l'expression suivante :

$$D_L = \frac{u^2 \left(t_{0,84} - t_{0,16} \right)^2}{8 \times t_{0,5}} \quad (\text{A.16})$$

Où u est la vitesse de pores ; $t_{0,16}$, $t_{0,5}$ et $t_{0,84}$ sont les instants où respectivement 16 %, 50 % et 84% du traceur sort de la colonne.

Dans le cas de nappes alluviales, ce coefficient de dispersion longitudinal D_L permet d'accéder à la dispersivité par la relation :

$$D_L = \alpha_L \times u \quad (\text{A.17})$$

Où α_L est la dispersivité longitudinale.

De façon analogue, on introduit D_T et α_T , paramètres correspondants aux effets dispersifs transversaux (plan perpendiculaire à la direction de l'écoulement). Les coefficients de dispersion mesurés à l'échelle du laboratoire sont à considérer avec prudence lorsqu'on passe à l'échelle du terrain où généralement ils sont beaucoup plus importants dû aux effets d'hétérogénéités, de capillarité...

III.6- Succion et rétention capillaire

L'humidité joue un rôle particulièrement important dans le comportement des sols non saturés. En effet l'état de l'humidité dans un sol n'est pas un état statique mais au contraire il se modifie avec les changements saisonniers. Pour pouvoir prendre en compte ces modifications il est nécessaire de connaître les lois qui régissent les transferts de l'eau dans le sol. Si pour des sols saturés à granulation grossière on peut négliger l'effet des forces de rétention, pour des sols fins non saturés, l'effet de ces forces ne peut plus être négligé et les lois d'écoulements deviennent plus complexes.

III.6.1- Définitions- Phénomène de succion

La succion dans les sols a été définie en géotechnique en 1965, dans un contexte thermodynamique, comme une énergie potentielle comparable à la charge hydraulique dans les sols saturés. Ce potentiel est égal à « *la quantité de travail par unité de volume d'eau pure, nécessaire pour transporter de façon réversible, isotherme, à altitude constante et à la pression atmosphérique, une quantité infinitésimale d'eau depuis un état d'eau pure loin du sol, à celui d'eau interstitielle dans le sol non saturé* » (cité par Delage et Cui, 2000).

L'humidité relative est définie comme la pression partielle de la vapeur d'eau rapportée à la pression de la vapeur d'eau saturante. Elle est exprimée en pourcentage. La relation entre l'humidité ambiante et la succion est indépendante du sol. Elle est définie par une des relations fondamentales de la thermodynamique, la loi de Kelvin, dont l'expression est la suivante :

$$\Psi_t = \frac{RT}{V_w} \ln(H_r) \quad (\text{A.18})$$

Où :

- T : température absolue (K) ;
- V_w : volume d'une mole d'eau ($=1,8 \times 10^{-5} \text{ m}^3 \text{ mol}^{-1}$) ;
- H_r : humidité relative (%) ;
- R : constante des gaz parfaits ($=8,3143 \text{ J mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$) ;
- Ψ_t : succion totale.

Certains auteurs (Aitchison 1965 cité par Fredlund et Rahardjo, 1993 ; El-Ehwan et Huston, 1990 ; Edil et Sabri, 1984 ; Krahn et Fredlund, 1971) définissent la succion totale comme la somme de la succion matricielle Ψ_m et de la succion osmotique Ψ_π :

$$\Psi_t = \Psi_m + \Psi_\pi \quad (\text{A.19})$$

La succion matricielle est la capacité de rétention d'eau à l'intérieure de la matrice solide du sol. Elle fait intervenir l'effet de l'adsorptivité par les particules du sol et les forces capillaires. Ces dernières dépendent de la forme et de la taille des pores dans le sol. La succion matricielle est reliée à la pression de pore d'eau négative dans le sol par :

$$\Psi_m = P_G - P_E \quad (\text{A.20})$$

Où P_E : Pression d'eau (kPa);
 P_G : Pression d'air (kPa).

La succion osmotique est la capacité de rétention d'eau par les sels présents sous forme dissoute dans l'eau interstitielle. Elle est due à la différence de concentration en sel dans différents points de la matrice du sol. Dans le cas où la concentration de sel est faible cette composante peut être négligée et la succion totale sera donnée directement par la succion matricielle.

Krahn et Fredlund (1971) ont vérifié expérimentalement la relation (A.19) en mesurant la succion osmotique, matricielle et totale d'une argile très plastique. Ils trouvent que la différence entre la succion totale et la succion matricielle décroît avec l'augmentation de la teneur en eau initiale. Houston *et al.*, (1994) confirment aussi que la succion osmotique diminue quand le degré de saturation augmente.

III.6.2- Mécanismes de la relation teneur en eau-succion (courbe de rétention)

En zone non saturée la teneur en eau et la succion varient simultanément. La relation existante entre ces deux grandeurs exprime les variations d'intensité des forces de capillarité et d'adsorption en fonction de la teneur en eau.

La pression de l'eau dans le sol dépend de la taille des pores entre lesquels se forment des ménisques. Cette pression diminue lorsque la teneur en eau diminue. En effet la diminution de la teneur en eau provoque la réduction du rayon de courbure des ménisques, augmentant ainsi la tension interne de l'eau. Dans le cas où la résistance du ménisque est dépassée, celui-ci se rompt et les forces d'adsorption prennent le relais des forces capillaires.

La relation entre la succion et la teneur en eau $\Psi(\theta)$ constitue donc une caractéristique spécifique à un type de sol. Cette relation peut être déterminée expérimentalement par les méthodes de mesure et de contrôle de la succion présenté dans le paragraphe (III.6.4) de cette annexe. Elle est représentée par une courbe appelée « courbe de rétention » (figure A.6).

La courbe de rétention permet de quantifier, à chaque teneur en eau ou de degré de saturation, l'ampleur de l'attraction exercée par le sol sur l'eau. Cette attraction reste assez faible dans les sols sableux ou peu plastiques (quelques dizaines de kPa). Elle atteint quelques centaines de kPa dans les limons et peut monter à des valeurs supérieures dans les sols plus plastiques, au sein desquels les interactions eau-argile sont importantes (figure A.7). L'ampleur de la succion, qui dépend également de la microstructure, conditionne les mouvements d'eau dans les sols non saturés et influe fortement sur leurs propriétés mécaniques.

Si une faible succion est appliquée à l'eau dans un sol saturé, aucun écoulement ne se produit pendant que la succion croît jusqu'à ce que l'on dépasse une certaine valeur critique pour laquelle les pores les plus grands commencent à se vider. Cette succion critique est appelée le point d'entrée d'air. Cette valeur est généralement petite dans les sols à texture grossière et bien structurée. Cependant, puisque dans les sols à texture grossière les pores ont souvent une distribution de taille uniforme, ces sols présentent des points d'entrée d'air critiques plus

distincts et plus marqués que les sols à texture fine, où la distribution de la taille des pores est plus étalée.

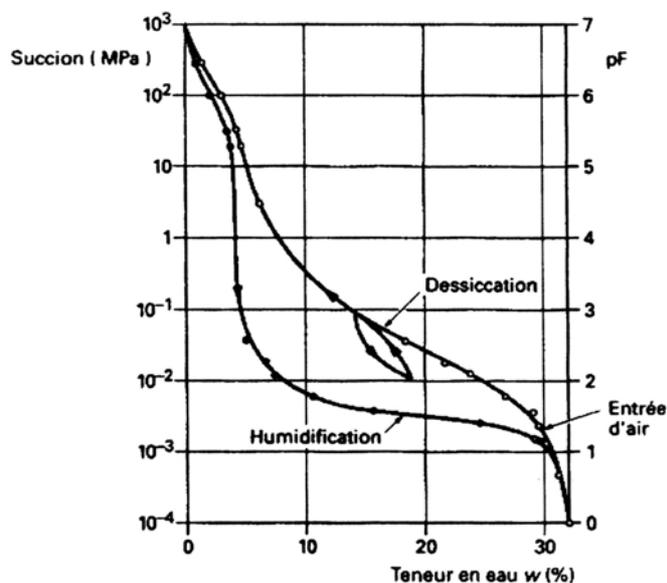


Figure A.6 : Courbe de rétention, phénomène d'hystérésis (Cronney, 1958)

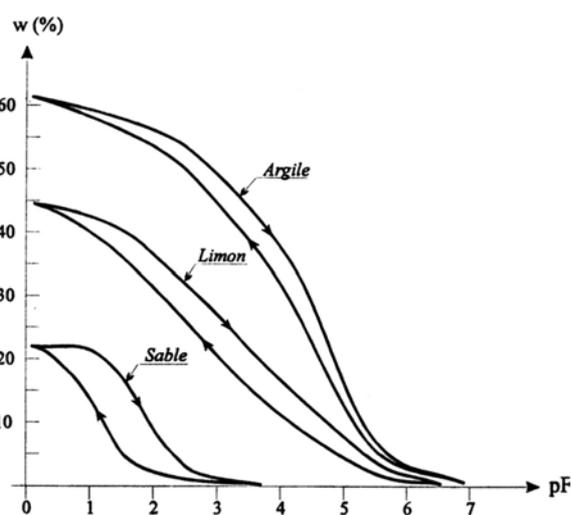


Figure A.7 : Courbe de rétention pour différents types de sols (Young et Warkentin, 1975)

Au fur et à mesure que la succion croît, la quantité d'eau drainée devient plus grande et un nombre supplémentaire de pores relativement grands se vident du fait qu'ils ne peuvent retenir l'eau contre la succion appliquée. L'augmentation progressive de la succion entraînera le drainage de pores de plus en plus petits jusqu'à des valeurs élevées de succion, seuls les pores très fins retiennent l'eau.

La courbe caractéristique de l'humidité du sol est fortement influencée par la texture du sol. Dans la gamme des succions élevées, la teneur en eau reste plus importante dans un sol à texture fine, telle qu'une argile, alors que, dans la gamme des faibles succions, la teneur en eau d'un sol compact diminue moins rapidement que celle d'un sol lâche.

La structure du sol affecte aussi la forme de la courbe caractéristique de l'humidité du sol, particulièrement dans l'échelle des faibles succions. L'effet de compaction d'un sol provoque une diminution de la porosité totale et tout spécialement du volume des grands interstices entre les grains. Ceci signifie que la teneur en eau à saturation est plus basse et que la diminution initiale de la teneur en eau pour les faibles succions est plus faible.

Par contre le volume des pores intermédiaires est probablement plus grand dans un sol tassé (car certains pores de grande dimension ont été comprimés à une dimension intermédiaire par la compaction), tandis que les micropores dans les grains mêmes ne changent pas. Les courbes de sols tassés peuvent donc être à peu près identiques à celles des sols non tassés aux succions élevées.

Etant donné que la succion varie dans une gamme très large, de 0 pour un sol saturé à 10^6 KPa pour un sol séché à l'étuve et afin d'éviter l'utilisation de nombres aussi encombrants, Schofield (1935) a proposé l'utilisation du symbole pF (potentiel of Free energy), qu'il a défini comme le logarithme décimal de la succion exprimée en centimètres de colonne d'eau.

III.6.3- Phénomène d'hystérésis

La relation entre la succion et la teneur en eau n'est pas unique. Cette relation peut être obtenue, soit par humidification, en mouillant graduellement un échantillon de sol initialement sec tout en mesurant les variations de la teneur en eau en fonction de la succion soit par drainage en séchant le sol graduellement.

Les deux courbes obtenues par drainage ou par humidification ne sont généralement pas identiques. La relation entre la succion et la teneur en eau $\Psi(\theta)$ dépend donc du sens dans lequel la teneur en eau et la succion évoluent. La teneur en eau d'un sol en équilibre à une succion donnée est ainsi plus faible lorsque le sol se trouve en phase d'humidification que lorsqu'il se trouve en phase de drainage (figure A.6).

Ce phénomène d'hystérésis est attribué à plusieurs facteurs (Musy et Soutter, 1991 ; Ed Diny, 1993). Parmi ceux-ci :

- La présence d'air piégé qui tend à réduire la teneur en eau du sol en chemin d'humidification (Hillel, 1988) ;
- Les phénomènes de gonflement et de retrait affectant la phase solide qui provoquent des variations différentielles de la structure du sol ;
- L'angle de contact solide-interface eau-air : En effet le rayon de courbure est plus grand pour un ménisque qui avance par rapport à celui d'un ménisque qui recule ;
- La non uniformité géométrique des pores qui aboutit à l'effet appelée « phénomène de l'encrier » (figure A.8) : Le diamètre d'un pore est en général plus faible aux extrémités qu'au milieu du pore. Lorsqu'on draine un sol, l'eau n'est évacuée que si la pression capillaire est supérieure à la pression correspondant au plus petit rayon (P_2). Lors d'une imbibition, l'eau rentre dès que la pression capillaire est inférieure à la pression correspondante au plus grand rayon ($P_1 < P_2$).

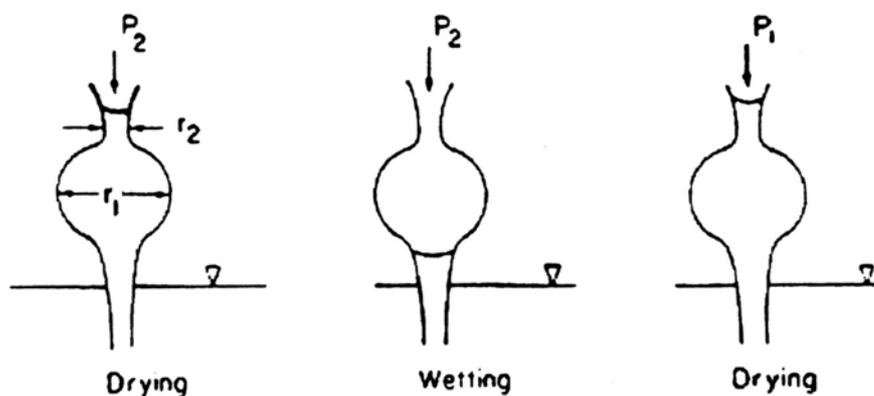


Figure A.8 : Illustration du phénomène de l'encrier (Yong et Warkentin, 1975).

L'hystérésis peut être également importante durant l'infiltration dans les sols ayant un profil de teneur en eau initiale non uniforme. D'autres facteurs tels que la structure et la texture du sol (Hillel, 1988) et son état initial (teneur en eau volumique sèche) (Amraoui, 1992 ; Ed Diny, 1993) influencent la courbe $\Psi(\theta)$.

En général, l'effet hystérésis est plus prononcé dans les sols à structure grossière et pour de faibles succions.

III.6.4- Techniques expérimentales de mesure et contrôle de la succion

La succion est une grandeur physique difficile à mesurer. Diverses approches sont nécessaires pour couvrir toute la gamme des succions rencontrées dans les sols, et qui peuvent atteindre plusieurs centaines de mégapascals (voir tableau A.4). Cette difficulté technique est probablement l'une des causes du manque de données expérimentales relatives au comportement des sols non saturés, tant en termes mécanique que de transfert d'eau et d'air. Croney *et al.* (1958) ont cependant fourni très tôt une description très complète de la plupart des techniques de contrôle et de mesure de la succion dans le sol. De nombreuses techniques reposent sur l'utilisation de pierres poreuses céramiques de très fine porosité, qui ne peuvent être désaturées que sous des succions beaucoup plus fortes que celles appliquées aux sols : ces pierres restent toujours saturées, mêmes lorsqu'elles sont soumises à des pressions d'air, et permettent d'assurer la continuité de l'eau entre le système de contrôle et de mesure et le sol.

III.6.4.1- Techniques de mesure de la succion

Pour des valeurs de succions inférieures à 100 KPa, on peut utiliser le *tensiomètre à eau*. Il est constitué d'un réservoir d'eau séparé par une pierre poreuse semi-perméable (plaque en céramique, laissant passer l'eau et pas l'air) sur laquelle repose l'échantillon de sol. L'eau du réservoir se met en équilibre avec la phase liquide du sol par transfert à travers la pierre poreuse. Un capteur de pression permet de mesurer la pression de l'eau à l'intérieur du réservoir (Ridely et Burland, 1993 ; Marinho et Chandler, 1995).

Une autre méthode dite *méthode psychométrique* peut être utilisée pour mesurer la succion. Le principe de base présenté dans la littérature (Verbrugge, 1978 ; Edil *et al.*, 1984) consiste à mesurer la succion totale du sol en mesurant l'humidité relative de la phase air du sol en équilibre avec la phase eau. La relation entre la succion totale et l'humidité relative est donnée par la loi de Kelvin (équation A.18).

Cette méthode est très délicate mais reste fiable pour les succions comprises entre 300 KPa et 8 MPa avec une plus grande imprécisions aux faibles succions du fait d'une plus forte dépendance des variations de température dans cet intervalle. Pour la même raison, la mesure de la succion totale *in situ* avec psychromètre n'est pas recommandée.

Une méthode très simple dite *méthode du papier filtre*, permet de mesurer soit la succion totale quand le papier filtre n'est pas en contact avec le sol, soit la succion matricielle quand le papier filtre est en parfait contact avec le sol. Il faut utiliser la courbe d'étalonnage appropriée pour chaque cas (Houston *et al.*, 1994). Pour mesurer la succion matricielle, cette méthode consiste à intercaler un papier filtre entre deux échantillons de sol. Le principe repose sur le fait qu'à l'équilibre hydrique le potentiel de l'eau du papier filtre sont les mêmes. Cette méthode permet de balayer une large gamme de succion allant de $pF=1$ à $pF=6$ (Fredlund et Rahardjo, 1993 ; Ed Diny, 1993).

III.6.4.2- Techniques de contrôle de la succion

Quatre techniques sont généralement utilisées pour imposer une succion. La plaque tensiométrique, la technique de translation d'axes, la technique osmotique et la technique de solution saline.

1) Contrôle par la technique tensiométrique

La méthode par plaque tensiométrique consiste à mettre l'eau d'un échantillon sous tension en le plaçant au contact d'une pierre poreuse céramique saturée d'eau, connectée à un récipient

d'altitude variable par le biais d'un tube en U. Un récipient placé plus bas que l'échantillon permet d'exercer une dépression égale à la hauteur d'eau. Ce système permet d'avoir une excellente précision aux très faibles succions, soit entre 0 et 10 kPa (1m d'eau).

Dans des conditions normales, l'eau ne peut être mise sous tension que jusqu'à la limite imposée par la cavitation, qui est de 80 kPa pour une eau naturelle, ce qui définit la gamme tensiométrique (0-80 kPa).

2) Contrôle par translation d'axe

La technique de translation d'axes (surpression d'air) a été mise en œuvre par Richards (1941). Le dispositif est représenté sur la figure A.9. Il s'agit d'une cellule étanche à l'air dont la base, sur laquelle repose l'échantillon, est constituée d'une pierre poreuse céramique de fine porosité immergée dans un récipient d'eau à la pression atmosphérique.

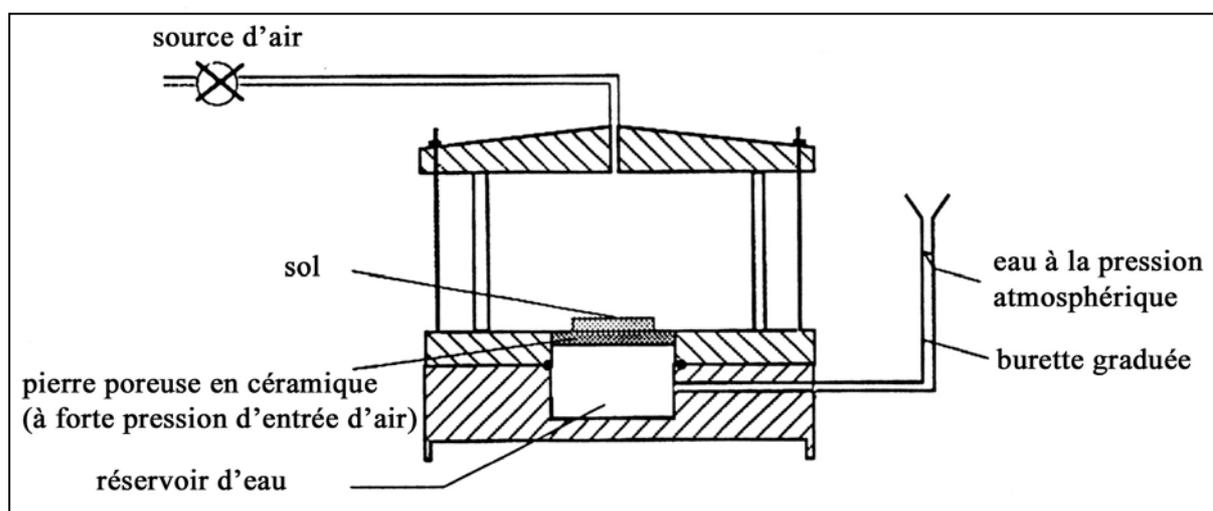


Figure A.9 : Schéma de l'appareil de Richard (Richards, 1941).

La méthode est basée sur la loi de Jurin-Laplace (équation A.21) qui permet de relier le potentiel capillaire (P_c) existant au niveau de l'interface air-eau des pores, au rayon d'un pore équivalent (figure A.10).

$$P_c = P_G - P_E = \frac{2 \times T_s \times \cos \alpha^*}{r^*} \quad (\text{A.21})$$

Où :

- T_s : Tension superficielle de l'eau (KN/m) ;
- α^* : Angle de raccordement du ménisque ;
- r^* : Rayon du tube capillaire.

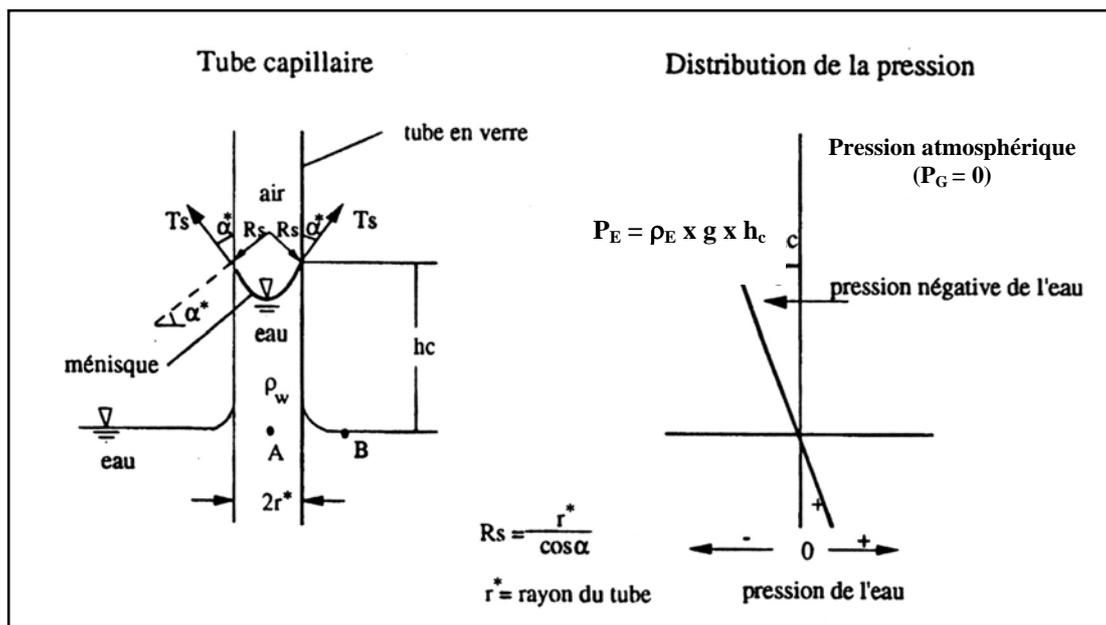


Figure A.10 : Remontée de l'eau dans un capillaire.

Cette relation montre qu'une céramique capable de contenir une pression maximale de 500 KPa devra avoir des rayons de pores inférieurs à $0,29 \mu\text{m}$. On peut également utiliser des membranes semi-perméables cellulosiques, posées sur une pierre poreuse normale. Ces membranes qui sont à la base de la technique osmotique de contrôle de succion, constituent une sorte de grillage avec une maille de l'ordre de 5 nm. Il est nécessaire que le contact entre l'échantillon de sol à tester et l'élément poreux soit de très bonne qualité, pour faciliter la continuité de la phase liquide entre échantillon et la pierre poreuse fine. Il en résulte que la pression d'eau est maintenue nulle au sein de l'échantillon ($P_E = 0$).

La pression d'air étant fixée à une valeur positive supérieure à la pression d'eau, on impose artificiellement une valeur de succion $\Psi = P_G - P_E$ positive. L'expérimentation consiste à placer l'échantillon sous une pression d'air donnée jusqu'à ce que l'équilibre soit atteint, ce qui se produit en quelques jours pour des échantillons centimétriques tels que celui de la figure A.9. Une fois l'équilibre atteint, on relâche la pression et on extrait rapidement l'échantillon de la cellule, afin de déterminer par pesée sa teneur en eau massique et volumique sous la succion imposée. Le principe de translation d'axes a été adapté par les géotechniciens sur des appareils de mécanique des sols (oedomètres, triaxiaux). L'ordre de grandeur des succions maximales imposées avec cette technique est de 1,5 MPa, ce qui impose la réalisation de cellules métalliques de confinement extrêmement fiables.

3) Contrôle par la technique osmotique

La technique osmotique utilise une solution aqueuse de molécules organiques de polyéthylène glycol (PEG) de grande taille, et une membrane semi-perméable laissant passer l'eau et non les molécules. L'eau est échangée entre le sol et la solution par osmose à travers la membrane jusqu'à ce que l'équilibre hydrique s'établisse. Comme l'eau peut traverser la membrane alors que les molécules des PEG en solution ne le peuvent pas du fait de leur grande taille, un échantillon mis au contact d'une membrane semi-perméable derrière laquelle circule une solution de PEG est soumis à une succion osmotique, d'autant plus forte que la concentration en PEG est élevée. L'intérêt majeur de cette technique est que la génération d'une

succion $s = P_G - P_E$ positive, ne se fait pas artificiellement par application d'une surpression d'air au sein de l'échantillon. La pression d'air reste égale la pression atmosphérique, et c'est réellement le terme u_w qui est négatif, comme dans la réalité.

Cette technique permet d'atteindre des succions de 12 MPa sans précautions particulières, à la différence de la technique de la translation d'axes, qui requiert à ces pressions d'importantes dispositions de sécurité.

4) Contrôle par phase vapeur (technique des solutions salines)

Cette technique utilise le principe d'adsorption de l'eau en phase vapeur. Des solutions salines de natures différentes permettent d'engendrer, dans une enceinte sous vide contenant un échantillon de sol, des humidités relatives correspondant à des pF donnés (tableau A.3). La relation entre l'humidité relative et la succion correspondantes est donnée par la loi de Kelvin (équation A.18).

Solution saline saturée	Humidité relative H_r (%)	Succion (Mpa)	pF
Eau pure	100	0	-
CuSO ₄ , 5H ₂ O	98	2,82	4,45
Na ₂ SO ₃ , 7H ₂ O	95	6,92	4,84
(NH ₄) ₂ , SO ₄	81	26,3	5,42
NaNO ₂	66	56,23	5,75
CaCl ₂	36,5	158,5	6,2

Tableau A.3 : Succion exercée par différentes solutions salines saturées (Tessier, 1975).

Le tableau A.4 résume les différentes méthodes utilisées pour la détermination de la succion et leur domaine d'application.

Méthodes	Intervalle de mesure		Références
	pF	KPa	
Contrôle de la succion			
Plaques tensiométriques	0-3	0-10 ²	Crony <i>et al.</i> (1952)
Plaque de pression	0-4,4	0-2,5x10 ³	Crony <i>et al.</i> (1958)
Centrifugation	3-4,5	10 ² -3,16x10 ³	Crony <i>et al.</i> (1952)
Dessiccateur à vide	4-6,2	10 ³ -1,6x10 ⁶	
Osmose	0-4,17	0-1,5x10 ³	Peck et Rabbidge (1966)
Balance de sorption	4-7	10 ³ -10 ⁶	Coleman <i>et al.</i> (1956)
Abaissement du point de congélation	3-4	10 ² -10 ³	Crony <i>et al.</i> (1952)
Mesure de la succion			
Psychrométrie	3-4,9	10 ² -8x10 ⁴	Zerhouni <i>et al.</i> (1995)
Tensiomètre à eau	0-2,9	0-8x10 ¹	Black <i>et al.</i> (1958)
Papier filtre	1-5	1-10 ⁴	Fawcett <i>et al.</i> (1967)
Tensiomètre osmotique	0-4,17	0-1,5x10 ³	
Translation d'axe	0-4,17	0-1,5x10 ³	Fredlund et Rahardjo (1993)

Tableau A.4 : Méthodes de mesure et d'imposition de la succion (Skandaji, 1996).

III.6.5- Equations d'ajustement des courbes de rétention

La relation teneur en eau – succion $\theta(\psi)$ est généralement déterminée expérimentalement. Pour simuler la courbe de rétention, des lois sous forme d'équations mathématiques sont ajustées sur les valeurs mesurées. Plusieurs formules ont été proposées pour décrire la courbe de

rétenion, la plupart d'entres-elles sont de nature empirique. Parmi celles-ci, les fonctions analytiques présentées dans le tableau A.5.

Ces formules sont souvent décrites en fonction de la teneur en eau effective Θ ou de la saturation effective S_e définies par :

$$\Theta = S_e = \frac{\theta - \theta_r}{\theta_s - \theta_r} \quad (A.22)$$

Où θ_s : Teneur en eau volumique à saturation ;

θ_r : Teneur en eau volumique résiduelle.

L'équation proposée par Gardner est valable préférentiellement pour de faibles valeurs de succion (Hillel, 1988). Le modèle de Brooks et Corey (1964) n'est défini que pour des succions supérieures à la valeur d'entrée d'air du sol et n'ajuste pas bien le domaine de fortes succions (Fredlund *et al.*, 1994). En plus ce modèle présente une discontinuité nette au voisinage de la saturation. Son utilisation reste donc limitée à certains sols sableux pour lesquels il y a une chute brutale de la succion au voisinage de la saturation. L'équation de Visser propose des constantes qui n'ont pas de signification physique et qui s'avèrent difficiles à déterminer (Brun, 1989). Le modèle de McKee et Bumb établi en 1984 ne fonctionne pas pour des faibles et des fortes succions alors que celui établi en 1987 modélise bien l'intervalle des faibles succions mais pose problèmes pour des fortes valeurs de succion puisque la courbe du modèle évolue d'une façon exponentielle (Amraoui, 1996).

Auteurs	Equations	Définition des paramètres
Gardner (1958)	$\Theta = \frac{1}{1 + q \times \psi^n}$	<ul style="list-style-type: none"> ➤ q : paramètre d'ajustement relié à la pression d'entrée d'air. ➤ n : paramètre d'ajustement relié à la pente au point d'inflexion de la courbe de rétenion du sol.
Gardner (1970)	$\psi = a \times \theta^{-b}$	<ul style="list-style-type: none"> ➤ a et b : constantes empiriques caractéristiques du sol.
Brooks et Corey (1964)	$\Theta = \left(\frac{\Psi_a}{\Psi} \right)^\lambda$	<ul style="list-style-type: none"> ➤ Ψ_a : pression d'entrée d'air. ➤ λ : indice de distribution de la taille des pores.
Brutsaert (1966)	$\psi(\theta) = \psi_t \left(\frac{1}{\theta} - 1 \right)^{b_t}$	<ul style="list-style-type: none"> ➤ ψ_t : succion de demi saturation. ➤ b_t : paramètre de calage.
Visser (1966)	$\psi = \frac{a(n-\theta)^b}{\theta}$	<ul style="list-style-type: none"> ➤ n : porosité du matériau. ➤ a et b : paramètres d'ajustement.
Van Genuchten (1980)	$S_e = \left[\frac{1}{1 + (\alpha \times \psi)^n} \right]^m$	<ul style="list-style-type: none"> ➤ α, n et m : paramètres d'ajustement.
Williams <i>et al.</i> (1983)	$\ln \psi = a + b \times \ln \theta$	<ul style="list-style-type: none"> ➤ a et b : paramètres d'ajustement.
McKee et Bumb (1984)	$\Theta = e^{-(\psi-a)/b}$	<ul style="list-style-type: none"> ➤ a et b : paramètres d'ajustement.
McKee et Bumb (1987)	$\Theta = \frac{1}{1 + e^{(\psi-a)/b}}$	<ul style="list-style-type: none"> ➤ a et b : paramètres d'ajustement.
Fredlund et Xing (1994)	$\frac{\theta(\psi)}{\theta_s} = C(\psi) \left[\frac{1}{\ln(e + (\psi/a)^n)} \right]^m$	<ul style="list-style-type: none"> ➤ a, n et m : paramètres d'ajustements. ➤ $C(\psi) = 1 - \frac{\ln(1 + \psi/C_r)}{\ln(1 + 10^6/C_r)}$; où C_r est une constante reliée à la succion matricielle correspondant à la teneur en eau résiduelle.

Tableau A.5 : Equations d'ajustement pour des courbes de rétenion.

Dans la littérature, on trouve par exemple Carsel et Parrish (1988) qui ont déterminé les paramètres du modèle de Van Genuchten appliqué avec la restriction $m=1-(1/n)$, pour une grande variété de sols qui ont été classés sur la base de la dimension des grains et de la composition (tableau A.6).

Type de sol	θ_r	θ_s	α_D (1/cm)	n	$m=1-(1/n)$	K (m/s)
Sable	0,045	0,430	0,145	2,68	0,627	$8,25 \times 10^{-5}$
Sable marneux	0,057	0,410	0,124	2,27	0,561	$4,05 \times 10^{-5}$
Marne sableuse	0,065	0,410	0,075	1,89	0,471	$1,23 \times 10^{-5}$
Marne	0,078	0,430	0,036	1,56	0,359	$2,89 \times 10^{-6}$
Limon	0,034	0,460	0,016	1,369	0,270	$6,94 \times 10^{-7}$
Marne limoneuse	0,067	0,450	0,020	1,41	0,291	$1,25 \times 10^{-6}$
Marne argilo-sableuse	0,100	0,390	0,059	1,47	0,324	$3,64 \times 10^{-6}$
Marne argileuse	0,000	0,410	0,019	1,31	0,237	$7,22 \times 10^{-7}$
Marne argilo-limoneuse	0,089	0,430	0,010	1,23	0,187	$1,94 \times 10^{-7}$
Argile sableuse	0,100	0,380	0,027	1,23	0,187	$3,33 \times 10^{-7}$
Argile limoneuse	0,070	0,360	0,005	1,09	0,083	$5,50 \times 10^{-8}$
Argile	0,068	0,380	0,008	1,09	0,083	$5,50 \times 10^{-7}$

Tableau A.6 : Valeurs moyennes des paramètres de Van Genuchten et Mualem pour différents types de sols sélectionnés selon leurs gammes de texture données par Carsel et Parrish (1988).

ANNEXE 2

- ❖ **Présentation du code NAPL-Simulator.**
- ❖ **Formulation mathématique et résolution numérique.**
- ❖ **Modèle de perméabilités polyphasiques.**

I- Présentation du code NAPL-Simulator

La modélisation numérique est réalisée grâce au code de calcul NAPL-Simulator, développé par l'U.S. Environmental Protection Agency (Guarnaccia *et al.*, 1997). Ce code permet de simuler la migration d'un seul polluant non-miscible en 1D, 2D ou 3D. Le sol y est considéré indéformable, hétérogène et isotrope. Les phases fluides sont également considérées comme incompressibles.

Le modèle NAPL-Simulator prend en compte trois processus physiques :

- L'écoulement polyphasique (infiltration),
- Les transferts de masse inter-phasiques (dissolution, volatilisation et adsorption),
- Le transport de masse (convection, dispersion mécanique et diffusion moléculaire).

Ces trois processus de migration, décrits dans le chapitre I de cette thèse, sont reliés de façon non linéaire puisque la vitesse des phases et le transfert de masse sont fonction du degré de saturation, et que les propriétés des phases fluides sont fonction de leur composition chimique.

La technique de résolution utilisée dans le programme NAPL-Simulator est basée sur la méthode des éléments finis avec un schéma implicite en temps. Le domaine est discrétisé en un nombre fini de mailles (rectangulaires) avec des nœuds situés à l'intersection de frontières d'élément. Tous les paramètres variables en espace sont représentés par une combinaison linéaire des fonctions de base où les valeurs nodales peuvent être interpolées dans les éléments adjacents d'une façon continue. Ces paramètres incluent les variables dépendantes, les fonctions des variables dépendantes, les propriétés du sol et d'autres constantes physiques qui sont permises de changer dans l'espace.

II- Formulation mathématique et résolution numérique

Le modèle mathématique se compose de deux composants principaux : les équations d'équilibre de masse gouvernant la variabilité spatiale et temporelle des variables primaires, et les équations constitutives qui définissent la relation entre les variables primaires et secondaires (Les variables primaires sont ceux qui sont avancées dans le temps et l'espace en résolvant les équations de conservation de masse. Les variables secondaires sont ces variables qui sont fonctions des variables primaires).

Les équations d'équilibre décrivent la conservation de la masse de chaque phase (fluide et solide) et de chaque constituant dans une phase particulière (espèce) tant qu'elles se déplacent et mélangent dans le milieu poreux. Une équation d'équilibre de masse peut être générée pour chaque phase et constituant. Chaque équation se compose de termes qui définissent les divers composants du transport de masse à l'échelle macroscopique : accumulation, advection, dispersion, sources et puits, et transfert de masse entre les phases. Chaque terme est ensuite définie par un ensemble de paramètres qui quantifie la physique du processus du transport pour un système physique particulier.

Afin de résoudre les équations résultantes d'équilibre elles doivent être augmentées par un ensemble de *relations constitutives* qui relient les variables primaires et secondaires. Dans la discussion qui suit, les relations constitutives sont séparées dans quatre catégories :

- 1) Ceux qui définissent les propriétés des fluides : densité, compressibilité et viscosité ;
- 2) Ceux qui définissent le flux du fluide ou l'advection ;
- 3) Ceux qui définissent le transport non advectif des espèces, à savoir dispersion, et la diffusion ;
- 4) Ceux qui définissent les échanges de masses inter-phasiques.

Dans la discussion suivante, l'échelle de l'unité de mesures représentant une quantité mesurable particulière est écrite entre crochet. Par exemple, les unités pour la viscosité d'un liquide sont $[M/(T L)]$, où M représente la *masse*, T représente le *temps* et L représente la *longueur*.

II.1- Equations de conservation de masse

Les équations de conservation de masse gouvernant la variabilité spatiale et temporelle s'écrivent d'après Pinder et Abriola (1986) :

$$\frac{\partial(\varepsilon S_{\alpha} \rho_l^{\alpha})}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon S_{\alpha} \rho_l^{\alpha} \mathbf{v}^{\alpha}) - \nabla \cdot \left[\varepsilon S_{\alpha} \rho^{\alpha} \mathbf{D}^{\alpha} \cdot \nabla \left(\frac{\rho_l^{\alpha}}{\rho^{\alpha}} \right) \right] + \varepsilon S_{\alpha} k_l^{\alpha} \rho_l^{\alpha} \mathbf{v}^{\alpha} = \rho_l^{\alpha} Q^{\alpha} + \hat{\rho}_l^{\alpha} \quad (\text{A.23})$$

Où les 5 paires (l, α) sont identifiées par:

- (e, E) eau dans la phase aqueuse,
- (p, E) polluant dissout dans la phase aqueuse,
- (p, P) polluant dans la phase polluant,
- (p, G) polluant volatilisé dans la phase gazeuse,
- (g, G) air dans la phase gazeuse.

Avec ε : la porosité du milieu poreux,

S_{α} : la saturation de la phase α ,

ρ_l^{α} : la concentration de l'espèce l dans la phase α $[M/L^3]$,

\mathbf{v}^{α} : la vitesse de la phase α , un vecteur $[L/T]$,

\mathbf{D}^{α} : le tenseur symétrique d'ordre 2 représentant le coefficient de dispersion de la phase α $[L^2/T]$,

Q^{α} : une source ponctuelle (+) ou un puits (-) relatif à la phase α $[1/T]$,

k_l^{α} : le coefficient de dégradation de l'espèce l dans la phase α $[1/T]$,

$\hat{\rho}_l^{\alpha}$: une source de masse ou un puits de l'espèce l dans la phase α $[M/L^3]$ (terme provenant du transfert de masse inter-phasique).

Les termes de transfert de masse sont donnés par :

$$\left. \begin{aligned} \hat{\rho}_e^E &= 0 \\ \hat{\rho}_p^E &= T_p^E - T_{p/E}^G - T_{p/E}^S \\ \hat{\rho}_p^P &= -(T_p^E + T_p^G) \\ \hat{\rho}_p^G &= T_p^G + T_{p/E}^G \\ \hat{\rho}_g^G &= 0 \end{aligned} \right\} \quad (\text{A.24})$$

Où :

- T_p^E représente le transfert de masse du polluant de la phase non-aqueuse vers la phase aqueuse (dissolution) ;
- $T_{p/E}^G$ représente le transfert de masse du polluant dissout de la phase aqueuse vers la phase gazeuse (volatilisation) ;
- T_p^G représente le transfert de masse du polluant de la phase non-aqueuse vers la phase gazeuse (volatilisation) ;
- $T_{p/E}^S$ représente le transfert de masse du polluant dissout de la phase aqueuse vers la surface solide des pores (adsorption).

Une sixième équation de continuité pour décrire la conservation de la masse des espèces adsorbées doit être écrite :

$$\frac{\partial([\varepsilon] \rho^S w_p^S)}{\partial t} + [\varepsilon] \rho^S k_p^S w_p^S = T_{p/E}^S \quad (\text{A.25})$$

Avec ρ^S la masse volumique du sol [M/L^3] et w_p^S la fraction en masse du polluant adsorbé.

Afin de s'assurer globalement de la conservation de masse, les contraintes suivantes sont employées :

- 1) La somme des saturations doit être égale à l'unité :

$$S_E + S_p + S_G = 1.0 \quad (\text{A.26})$$

- 2) La masse volumique de la phase α est la somme des concentrations des espèces qui la constituent :

$$\rho^\alpha = \sum_{l=e,p,G} \rho_l^\alpha, \quad \alpha = E, P, G \quad (\text{A.27})$$

- 3) La somme des flux massiques de toutes les espèces vers une phase donnée est égale à la variation de la masse de cette phase :

$$\hat{\rho}^\alpha = \sum_{l=e,p,G} \hat{\rho}_l^\alpha, \quad \alpha = E, P, G \quad (\text{A.28})$$

- 4) La variation totale en masse de toutes les phases est nulle :

$$\sum_{\alpha=E,P,G} \hat{\rho}^\alpha = 0 \quad (\text{A.29})$$

- 5) La masse totale dégradée est égale à la masse reproduite :

$$\sum_{l=e,p,g} k_l^\alpha \rho_l^\alpha = 0, \quad \alpha = E, P, G \quad (\text{A.30})$$

De ce qui précède, cinq équations de conservation de masse sont nécessaires à la description de notre problème physique. Les trois premières définissent la distribution spatiale et temporelle, l'écoulement et les propriétés des trois phases fluide (E, P, G). A partir de l'équation (A.23) et en faisant la somme sur les espèces constituant une phase donnée, elles s'écrivent :

- Pour la phase aqueuse :

$$\frac{\partial(\varepsilon S_E \rho^E)}{\partial t} + \nabla \cdot [\varepsilon S_E \rho^E \mathbf{v}^E] = \rho^E Q^E + T_p^E - T_{p/E}^G - T_{p/E}^S \quad (\text{A.31})$$

- Pour la phase non-aqueuse :

$$\frac{\partial(\varepsilon S_p \rho^p)}{\partial t} + \nabla \bullet [\varepsilon S_p \rho^p \mathbf{v}^p] = \rho^p Q^p - T_p^E - T_p^G \quad (\text{A.32})$$

- Pour la phase gazeuse :

$$\frac{\partial(\varepsilon S_G \rho^G)}{\partial t} + \nabla \bullet [\varepsilon S_G \rho^G \mathbf{v}^G] = \rho^G Q^G + T_p^G + T_{p/E}^G \quad (\text{A.33})$$

Les deux autres équations décrivent la distribution du polluant dissout ou volatilisé transporté dans les phases aqueuse et gazeuse respectivement. Elles peuvent être obtenues à partir de l'équation (A.20) pour les paires (p, E) et (p, G) .

II.2- Variables primaires (ou dépendantes)

Cinq variables primaires sont exigées pour résoudre les équations de conservation de masse énumérées dans la section précédente. Les cinq variables primaires utilisées dans le simulateur sont :

$$P_E, S_E, S_{TE}, \rho_p^E, \rho_p^G \quad (\text{A.34})$$

Où : P_E est la pression dans la phase eau, et d'après l'équation (A.26) il a été défini une nouvelle mesure de saturation, nommé la saturation totale de la phase liquide :

$$S_{TE} = S_E + S_p = 1 - S_G \quad (\text{A.35})$$

Les variables dans l'équation (A.34) sont définies continues dans l'espace et dans le temps. En plus, elles ont un but de savoir la configuration de la phase existante (c'est à dire une, deux, ou trois phases d'écoulement). Les contraintes suivantes sur la relation entre la pression et les variables de saturation permettent à cette attribut d'être implémenté :

- 1) La propriété de la mouillabilité des fluides est définie par ordre décroissante dans l'ordre eau-polluant-gaz.
- 2) La propriété de la pression capillaire entre les phases non miscibles est définie en fonction de la saturation de la phase, appelée modèle de saturation-pression (S-P), où $P_{c\alpha\beta} = P^\alpha - P^\beta$ est la pression capillaire entre la phase non mouillante (phase α) et la phase mouillante (phase β). En plus, quand les trois phases sont présentes, la phase du polluant rend les interactions eau-gaz négligeables, et le comportement de trois phases peut être glané de deux.

$$\left. \begin{aligned} P_{cPE} &= P_{cPE}(S_E) = P_p - P_E \\ P_{cGP} &= P_{cGP}(S_{TE}) = P_G - P_p \end{aligned} \right\} \quad (\text{A.36})$$

- 3) Les fonctions $P_{cPE}(S_E)$ et $P_{cGP}(S_{TE})$ sont définies tels que :
 - a) Ils sont continus dans le temps et l'espace indépendamment de la configuration de la phase.
 - b) Pour le cas des deux phases eau-gaz, P_{cGE} est déterminé à partir de :

$$P_{cGE} = P_{cPE} + P_{cGP} \quad (\text{A.37})$$

- c) P_{cGE} , P_{cPE} et P_{cGP} sont reliés par la formule suivante :

$$\frac{P_{cPE}}{\sigma_{PE}} = \frac{P_{cGP}}{\sigma_{GP}} = \frac{P_{cGE}}{\sigma_{GE}} \quad (A.38)$$

Où : σ_{GE} , σ_{PE} et σ_{GP} sont les tensions interfaciales entre les phases gaz et eau, polluant et eau, et gaz et polluant, respectivement. Pour que les équations (A.37) et (A.38) soient compatibles, les tensions interfaciales sont obligatoirement reliées par :

$$\sigma_{GE} - \sigma_{PE} - \sigma_{GP} = 0 \quad (A.39)$$

- 4) Les pressions de la phase de polluant et du gaz sont des fonctions non-linéaires de P_E , S_E et S_{TE} comme indiqué à partir des définitions suivantes :

$$\left. \begin{aligned} P^P &= P^E + P_{cPE}(S_E) \\ P^G &= P^E + P_{cPE}(S_E) + P_{cGP}(S_{TE}) \end{aligned} \right\} \quad (A.40)$$

Les modèles constitutifs qui définissent les relations entre les variables primaires et secondaires sont dérivés des variables primaires dans l'équation (A.34) et les contraintes imposées dans la relation entre la pression de phase fluide et la saturation.

II.3- Propriétés des fluides

Les propriétés des fluides intervenant dans ce modèle sont : la masse volumique, la viscosité, et la tension interfaciale entre deux phases non-miscibles $\sigma_{\alpha\beta}$ [M/T^2]. Sous conditions isothermes ces propriétés sont, en général, fonction de la composition chimique de la phase et de la pression appliquée. Moyennant l'hypothèse de faible variation de pression dans la zone au voisinage de la surface du sol, l'influence de la pression sur ces propriétés peut être négligée (Mendoza et Frind, 1990 ; Brusseau, 1991 et Sleep et Sykes, 1989).

II.3.1- Masse volumique

La masse volumique de la phase α (ρ^α) dépend de la composition chimique de la façon suivante :

$$\left. \begin{aligned} \rho^P &= \rho^{P_{pure}} = cte \\ \rho^E &= \rho^{E_{pure}} + \rho_p^E \left[1 - \frac{\rho^{E_{pure}}}{\rho^{P_{pure}}} \right] \\ \rho^G &= \rho^{G_{pure}} + \rho_p^G \left[1 - \frac{\rho^{G_{pure}}}{\rho^{P_{pure}}} \right] \end{aligned} \right\} \quad (A.41)$$

Avec $\rho^{\alpha_{pure}}$ est la masse volumique de la phase α pure.

II.3.2- Viscosité

Les viscosités des phases fluides (μ^α) varient avec la composition de la façon suivante :

$$\left. \begin{aligned} \mu^P &= cte \\ \log \mu^E &= \left(\frac{\rho_p^E}{\rho^{P_{pure}}} \right) \log \mu^{P_{pure}} + \left(1 - \frac{\rho_p^E}{\rho^{P_{pure}}} \right) \log \mu^{E_{pure}} \\ \log \mu^G &= \left(\frac{\rho_p^G}{\rho^{P_{pure}}} \right) \log \mu^{P_{pure}} + \left(1 - \frac{\rho_p^G}{\rho^{P_{pure}}} \right) \log \mu^{G_{pure}} \end{aligned} \right\} \quad (A.42)$$

Avec $\mu^{\alpha_{pure}}$ la viscosité de la phase α pure.

II.3.3- Tension interfaciale

Les tensions interfaciales sont supposées indépendantes de la composition chimique. La combinaison de la tension interfaciale et l'angle de contact défini la mouillabilité d'un fluide.

II.4- Phase d'advection

Le flux de fluide est défini par le paramètre v^α dans l'équation (A.23) et (A.31) à (A.33). En pratique, les équations macroscopiques, i.e. une forme généralisée la loi de Darcy, sont usuellement utilisées pour décrire les écoulements polyphasiques (Dullien, 1992), en régime permanent elle s'écrit :

$$\mathbf{v}^\alpha = - \frac{k k_{r\alpha}}{\varepsilon S_\alpha \mu^\alpha} (\nabla P^\alpha - \gamma^\alpha \nabla z) \quad \alpha = E, P, G \quad (A.43)$$

Où v^α est le vecteur vitesse de la phase α [L/T], P^α est la pression de la phase α [$M/(LT^2)$], $\gamma^\alpha = \rho^\alpha \times g$ est le poids spécifique de la phase [M/T^2], g est le vecteur de la pesanteur [L/T^2], k est la perméabilité intrinsèque [L^2], $k_{r\alpha}$ est la perméabilité relative (facteur allant de 0 à 1), et ε est la porosité du milieu. La perméabilité relative à la phase α met en évidence la dépendance entre perméabilité et quantité de la phase α existant dans le domaine étudié (cette quantité est fréquemment exprimée par le degré de saturation S_α).

En faisant l'hypothèse d'une mouillabilité décroissante dans l'ordre eau-polluant-gaz, nous écrivons alors :

$$\left. \begin{aligned} k_{rE} &= k_{rE}(S_E) \\ k_{rP} &= k_{rP}(S_E, S_{Tm}) \\ k_{rG} &= k_{rG}(S_{Tm}) \end{aligned} \right\} \quad (A.44)$$

Où S_E est la saturation en phase aqueuse et S_{Tm} est la saturation totale en phase mouillante (phase aqueuse et non-aqueuse).

Lors de l'infiltration du polluant dans le domaine poreux, certaines zones de ce dernier vont initialement assister à une accumulation d'une phase donnée, au cours du temps cette phase sera déplacée par une autre. Il en ressort que la direction du déplacement peut être inversée de nombreuses fois de suite. Selon la direction du déplacement vont varier les quantités piégées (immobiles) des phases fluides et la distribution, dans l'espace, de ces phases. Ceci conduit à des perméabilités relatives et à des courbes de pression capillaire (fonctions reliant la pression

capillaire et le degré de saturation) différentes conformément à l’histoire de saturation (phénomène d’hystérésis) (Miller *et al.* (1998) ; Oostrom et Lenhard (1998)).

En effet, un sous-modèle perméabilité relative–saturation–pression capillaire est incorporé dans la présente version du modèle afin d’extrapoler les courbes de pression capillaire biphasiques pour la prédiction des perméabilités relatives polyphasiques et afin de tenir compte du piégeage des phases, fractions immobiles et phénomènes d’hystérésis. Nous donnerons, par la suite (paragraphe III), un exposé détaillé de ce sous-modèle.

II.5- Coefficient de dispersion

Le flux dispersif du polluant dissout ou volatilisé dans l’eau et l’air est défini par le troisième terme dans l’équation (A.23). Dans le cas où la masse volumique d’une phase donnée dépend de sa composition chimique comme donnée par l’équation (A.41), le terme de dispersion est simplifié par :

$$\rho_\alpha D_\alpha \bullet \nabla \left(\frac{\rho_l^\alpha}{\rho_\alpha} \right) \approx \left(\frac{\rho_{\alpha pure}}{\rho_\alpha} \right) D_\alpha \bullet \nabla \rho_l^\alpha \quad (A.45)$$

Ceci revient à supposer que la masse volumique de la phase α est égale à celle de la phase pure, cette hypothèse est justifiée du fait de faible influence de la concentration en polluant sur la masse volumique de la phase α . Dans le cas contraire, le flux dispersif devient une fonction non-linéaire de la masse volumique.

Le coefficient de dispersion D^α est un tenseur d’ordre deux pouvant être exprimé par (Bear, 1988 et Scheidegger, 1972) :

$$\left. \begin{aligned} D_{xx}^\alpha &= a_T^\alpha |v^\alpha| + (a_L^\alpha - a_T^\alpha) (v_x^\alpha)^2 / |v^\alpha| + \tau^\alpha D_m^\alpha \\ D_{yy}^\alpha &= a_T^\alpha |v^\alpha| + (a_L^\alpha - a_T^\alpha) (v_y^\alpha)^2 / |v^\alpha| + \tau^\alpha D_m^\alpha \\ D_{zz}^\alpha &= a_T^\alpha |v^\alpha| + (a_L^\alpha - a_T^\alpha) (v_z^\alpha)^2 / |v^\alpha| + \tau^\alpha D_m^\alpha \\ D_{xy}^\alpha &= D_{yx}^\alpha = (a_L^\alpha - a_T^\alpha) v_x^\alpha v_y^\alpha / |v^\alpha| \\ D_{yz}^\alpha &= D_{zy}^\alpha = (a_L^\alpha - a_T^\alpha) v_y^\alpha v_z^\alpha / |v^\alpha| \\ D_{xz}^\alpha &= D_{zx}^\alpha = (a_L^\alpha - a_T^\alpha) v_x^\alpha v_z^\alpha / |v^\alpha| \end{aligned} \right\} \quad (A.46)$$

où $\alpha = E$ et G , a_L^α est la dispersivité longitudinale [L], a_T^α est la dispersivité transversale [L], v_x^α , v_y^α , et v_z^α sont les coordonnées du vecteur de la vitesse interstitielle, $|v^\alpha|$ est la vitesse moyenne de la phase, D_m^α est le coefficient de diffusion moléculaire dans la phase α , et τ^α est le facteur de tortuosité prenant en compte la porosité de diffusion, dans ce modèle il est donné par :

$$\tau^\alpha = \varepsilon^{1/3} (S_\alpha)^{7/3} \quad (A.47)$$

II.6- Dégradation naturelle

De nombreux fluides subsistant dans le sol sont sujets à une dégradation biologique ou chimique. Selon le modèle proposé, tous les processus de dégradation éventuels sont représentés par une loi de la forme suivante :

$$k_p^E = k_p^G = \ln(2) / t_{1/2} \quad (A.48)$$

Avec l'hypothèse d'une même demi-vie ($t_{1/2}$) du polluant lorsqu'il est dissout dans l'eau ou volatilisé dans la phase gazeuse.

II.7- Transfert de masse inter-phasique

De manière générale, quatre types de processus du transfert de masse sont importants pour la modélisation de la migration et du devenir des polluants de type hydrocarbure dans l'environnement naturel :

- 1) Dissolution du polluant pure dans l'eau,
- 2) Volatilisation du polluant pure dans l'air,
- 3) Volatilisation du polluant à partir de la phase dissoute dans l'eau,
- 4) Adsorption du polluant dissous sur les particules du sol.

II.7.1- Dissolution du polluant pure dans l'eau

La dissolution du polluant présentée par le terme T_p^E dans l'équation (A.23) est donnée par une loi cinétique du premier ordre :

$$T_p^E = C_p^E (\bar{\rho}_p^E - \rho_p^E) \quad (\text{A.49})$$

Où $C_p^E [1/T]$ est un coefficient régulant le taux auquel l'équilibre est atteint, et $\bar{\rho}_p^E [M/L^3]$ est la limite de solubilité du polluant dans l'eau, c'est une valeur mesurable supposée constante. Les travaux expérimentaux de Imhoff *et al.* (1992) ont montré que le coefficient C_p^E peut être exprimé sous la forme :

$$C_p^E = \beta^{EP} (\varepsilon S_p)^{\beta_1} |v^E|^{\beta_2} \quad (\text{A.50})$$

Avec $\beta_1 \approx 0,5$ et $\beta_2 \approx 1$, et le paramètre $\beta^{EP} [1/T]$ est à déterminer expérimentalement.

II.7.2- Evaporation du polluant pure à l'air

La volatilisation du polluant présentée par le terme T_p^G dans l'équation (A.23) est donnée par une loi cinétique du premier ordre semblable à la précédente :

$$T_p^G = C_p^G (\bar{\rho}_p^G - \rho_p^G) \quad (\text{A.51})$$

Où $C_p^G [1/T]$ est un coefficient régulant le taux auquel l'équilibre est atteint, et $\bar{\rho}_p^G [M/L^3]$ est la limite de volatilisation du polluant dans l'air, c'est une valeur mesurable supposée constante. Le coefficient C_p^G est supposé de la forme :

$$C_p^G = \beta^{GP} (\varepsilon S_p)^{\beta_1} \quad (\text{A.52})$$

Avec $\beta_1 \approx 0,5$ et le paramètre $\beta^{GP} [1/T]$ est à déterminer expérimentalement.

II.7.3- Volatilisation du polluant à partir de la phase dissoute dans l'eau

La volatilisation du polluant dissout $T_{p/E}^G$ est gouvernée par une loi cinétique de la forme :

$$T_{p/E}^G = C_{p/E}^G (H\rho_p^E - \rho_p^G) \quad (A.53)$$

Où $H = \rho_p^G / \rho_p^E$ est le coefficient sans dimension de Henry défini à l'équilibre. $C_{p/E}^G$ [1/T] est le taux de transfert de masse supposé de la forme :

$$C_{p/E}^G = \beta^{GE} (\varepsilon S_E)^{\beta_1} \quad (A.54)$$

Avec $\beta_1 \approx 0,5$ et le paramètre β^{GP} [1/T] est à déterminer par l'expérience.

II.7.4- Adsorption du polluant dissous sur les particules du sol

L'adsorption du polluant dissout sur la surface solide des pores $T_{p/E}^S$ défini par l'équation (A.25) est donnée sous la forme:

$$w_p^S = K_d \times \rho_p^E \quad (A.55)$$

Où K_d est le coefficient de distribution [L^3/M] défini comme une fonction de la teneur en carbone organique (f_{oc}) du sol : $K_d = f_{oc} \times K_{oc}$ avec K_{oc} le coefficient de partition du carbone organique. En combinant les deux équations (A.24) et (A.55) on obtient :

$$T_{p/E}^S = \rho^b \times K_d \times \left(\frac{\partial \rho_p^E}{\partial t} + k_p^s \times \rho_p^E \right) \quad (A.56)$$

Avec $\rho^b = [1-\varepsilon] \times \rho^s$ est la densité apparente du sol.

III- Modèle de perméabilités polyphasiques

Quand on examine les phénomènes importants qui se rapportent aux écoulements polyphasiques, on ne peut manquer de se rendre compte de la complexité du problème posé par ces écoulements, et par le grand nombre de cas susceptibles d'être rencontrés (Rose, 1987).

La prise en compte de l'influence des paramètres pertinents rend, du moins, très difficile l'intégration des équations de mouvement nécessaires à la description de l'écoulement. En effet, une spécification précise de ces paramètres n'est pas forcément accessible, citons entre autres, la distribution spatiale des fluides, les fractions piégées, etc.

Cette difficulté est souvent contournée en faisant appel à l'approche macroscopique, i.e., les perméabilités relatives. Or, celles-ci pourraient être fonction de multiples caractéristiques du système :

$$k_{ri} = k_{ri}(S_i, \varepsilon, \text{rapport de viscosité, nombre capillaire, histoire de saturation, espace poreux, ...})$$

La dépendance vis-à-vis de l'histoire de saturation peut être évaluée en déterminant les courbes de perméabilité relative (courbes de drainage et d'imbibition). Si l'on détermine la perméabilité relative en fonction du degré de saturation, il ne faut pas perdre de vue que les autres paramètres propres à un système donné restent à préciser.

En lien direct avec le comportement des fluides en écoulement simultané sont la structure géométrique de l'espace poreux et les courbes de pression capillaire. En réalité, ces propriétés du

milieu poreux constituent la base de nombreuses modélisations de la perméabilité relative. Si le choix d'un modèle hypothétique de l'espace poreux permet d'en déduire les courbes de pression capillaire, les irrégularités du milieu poreux et sa grande diversité vont engendrer des écarts importants entre courbes prédites et mesurées. D'après Auriault (1987), ces courbes sont à déterminer par l'expérience.

Etant donné que les données expérimentales caractérisant les écoulements polyphasiques sont très peu nombreuses et très difficiles à obtenir, le modèle proposé ci-dessous est basé sur l'extrapolation des données d'un système biphasique pour caractériser l'écoulement polyphasique.

Extension des données biphasiques

Un système biphasique est constitué d'un milieu poreux (ici, supposé indéformable) et de deux fluides non-miscibles : la phase mouillante (la phase ayant propension à adhérer et à s'étaler sur la surface solide) et la phase non-mouillante.

Dans un milieu poreux saturé de deux fluides non-miscibles, la pression capillaire (le saut de pression à l'interface de ces fluides dû aux effets capillaires) est donnée par la loi de capillarité de Laplace (Dullien (1992) et Bear (1988)) :

$$P_{ij} = 2\sigma_{ij}/R_{ij} \quad (A.57)$$

Où σ_{ij} est la tension interfaciale entre les phases i et j et R_{ij} est le rayon moyen de courbure.

A l'échelle macroscopique, la distribution de la taille des pores d'un milieu poreux rigide peut être obtenue à partir de l'équation (A.55) et des courbes de pression capillaires $S(P)=S_j(P_{ij})$. Ainsi, la fonction reliant le degré de saturation et la taille des pores $S(R)=S_j(R_{ij})$ est déterminée si σ_{ij} est connu. Considérons, à ce stade, les trois systèmes biphasiques suivants : air-eau (G, E), polluant-eau (P, E), et air-polluant (G, P) et remarquons que :

$$\left. \begin{aligned} S_E(2\sigma_{GE}/P_{GE}) &= S(R) \\ S_E(2\sigma_{PE}/P_{PE}) &= S(R) \\ S_E(2\sigma_{GP}/P_{GP}) &= S(R) \end{aligned} \right\} \quad (A.58)$$

Cette dernière équation suggère que, pour un milieu poreux donné, les courbes de pression capillaire peuvent être disposées de manière à obtenir une courbe mise à échelle unique (Lenhard et Parker, 1987).

Le modèle NAPL-Simulator adopte la procédure de mise à échelle décrite par Parker *et al.* (1987) qui consiste à effectuer la transformation suivante :

$$\left. \begin{aligned} \bar{S}_E(\beta_{GE}h_{GE}) &= S^*(R^*) \\ \bar{S}_E(\beta_{PE}h_{PE}) &= S^*(R^*) \\ \bar{S}_P(\beta_{GP}h_{GP}) &= S^*(R^*) \end{aligned} \right\} \quad (A.59)$$

Avec h_{ij} la charge capillaire, β_{ij} est un facteur de mise à échelle propre à la paire de fluides ij , $\bar{S}_j = (S_j - S_{irr}) / (1 - S_{irr})$ est la saturation effective en phase mouillante et S_{irr} est la saturation irréductible ou résiduelle. $S^*(R^*)$ est une fonction mise à échelle unique.

A une saturation donnée l'équation (A.59) se réduit à :

$$\beta_{GE} h_{GE} = \beta_{PE} h_{PE} = \beta_{GP} h_{GP} \quad (A.60)$$

A partir de l'équation (A.58), si nous écrivons la pression en unité de charge, nous avons :

$$h_{GE} / \sigma_{GE} = h_{PE} / \sigma_{PE} = h_{GP} / \sigma_{GP} \quad (A.61)$$

Si l'on choisit le système air-eau comme la paire de référence ($\beta_{GE} = 1$) nous obtenons :

$$\left. \begin{aligned} \beta_{PE} &= \sigma_{GE} / \sigma_{PE} \\ \beta_{GP} &= \sigma_{GE} / \sigma_{GP} \end{aligned} \right\} \quad (A.62)$$

Ainsi, la connaissance d'une courbe de pression capillaire relative à une paire de fluides donnée peut nous procurer la connaissance des courbes de pression capillaire relatives à une paire de fluides quelconque (équations A.60 et A.62).

Le modèle NAPL-Simulator emploie une version légèrement modifiée du modèle de Van Genuchten (1980) pour la présentation des courbes expérimentale et déduite de pression capillaire :

$$\bar{S}_j^{ij} = [1 + (a\beta_{ij}h_{ij})^n]^{-m}, i \neq j \quad (A.63)$$

Où \bar{S}_j^{ij} est la saturation effective de la phase mouillante j dans le système solide et fluides ij . a , n , et m sont des paramètres de calage où $m = 1 - 1/n$.

Dans le système polyphasique sujet de notre étude, trois phases distinctes coexistent dans le sol : l'eau comme phase préférentiellement mouillante, l'hydrocarbure comme phase de mouillabilité moyenne, et l'air comme phase non-mouillante. De ce fait, il est généralement admis que les interfaces air-eau sont rendues négligeables par le polluant s'interposant entre air et eau (Guarnaccia *et al.*, 1997 ; Katyal *et al.*, 1991 ; Lenhard et Parker, 1987 ; Parker *et al.*, 1987). Il s'ensuit que l'interface polluant-eau sera gouvernée par la pression capillaire P_{PE} et que l'interface entre liquide (polluant + eau) et air sera gouvernée par la pression capillaire P_{GP} . Ces deux résultats hypothèses peuvent s'écrire sous la forme :

$$\left. \begin{aligned} S_E^{GPE} &= S_E^{PE}(h_{PE}) \\ S_{Tm}^{GPE} &= S_P^{GP}(h_{GP}) \end{aligned} \right\} \quad (A.64)$$

où $S_{Tm}^{GPE} = S_E^{GPE} + S_P^{GPE}$ est la saturation totale en phase mouillante (par rapport à l'air). Les exposants indiquent l'ensemble des fluides et les indices indiquent la phase considérée.

La combinaison des équations (A.63) et (A.64) donne :

$$\left. \begin{aligned} \bar{S}_E^{GPE} &= [1 + (a\beta_{PE}h_{PE})^n]^{-m} \\ \bar{S}_{Tm}^{GPE} &= [1 + (a\beta_{GP}h_{GP})^n]^{-m} \end{aligned} \right\} \quad (A.65)$$

et puisque nous avons $\bar{S}_G^{GPE} = 1 - S_{Tm}^{GPE} = 1 - (S_E^{GPE} + S_P^{GPE})$, les relations pression capillaire-saturation du système polyphasique sont complètement définies.

Les saturations ainsi calculées sont par la suite corrigées pour la prise en compte du phénomène d'hystérésis. Suivant le NAPL-simulator, deux raisons sont à l'origine de ce phénomène. La première est le piégeage des phases fluides. Lorsqu'une phase fluide est déplacée de l'espace poreux, une fraction volumique sera rendue immobile par déconnexion, dans le cas d'un fluide non-mouillant, ou alors par les forces capillaires dans le cas d'un fluide mouillant, celui-ci sera retenu et adhérent à la surface des pores. La deuxième provient de l'hystérésis de l'angle de contact (angle de mouillage) et des effets capillaires. De fait que le drainage d'un fluide mouillant est contrôlé par les embouchures des pores tandis que son imbibition est contrôlée par les pores eux-mêmes, la pression capillaire gouvernant le drainage sera plus importante que celle caractéristique de l'imbibition. De plus, l'angle de contact est moins important en imbibition qu'en drainage (Dullien, 1992 et Bear, 1988).

Le phénomène d'hystérésis est pris en compte via une approche empirique respectant les règles suivantes :

- Le déplacement d'une phase α de l'espace poreux augmente le volume piégé de cette phase.
- Le déplacement d'une phase α vers l'espace poreux diminue le volume piégé de cette phase.
- Lorsque le déplacement d'une phase donnée est incomplet (i.e. avant d'atteindre la saturation résiduelle), pour définir la saturation effective, NAPL-Simulator utilise une saturation résiduelle inférieure à la saturation résiduelle maximum mesurée.

Cette approche fait également appel aux saturations résiduelles en eau, en gaz, en polluant comme phase mouillante (durant un essai biphasique où le gaz est déplacé), et en polluant comme phase non-mouillante (durant un essai où l'eau déplace le polluant). Ces dernières vont être des paramètres à déterminer par l'expérience. Les hystérésis des perméabilités relatives, selon ce modèle, sont uniquement résultats du piégeage des fluides.

Les perméabilités relatives régissant l'écoulement polyphasique sont obtenues via le couplage entre les équations (A.56) (relations de saturation-pression capillaire) et le modèle de Mualem (1976 et 1986), elles s'écrivent :

$$\left. \begin{aligned} k_{rE}(\bar{S}_E) &= (\bar{S}_E)^\xi \left\{ 1 - [1 - (\bar{S}_E)^{1/m}]^m \right\}^2 \\ k_{rG}(\bar{S}_G) &= (\bar{S}_G)^\psi \left\{ 1 - [1 - (\bar{S}_G)^{1/m}]^m \right\}^{2m} \\ k_{rP}(\bar{S}_P) &= (\bar{S}_P)^\zeta \left\{ [1 - (1 - \bar{S}_{Tn})^{1/m}]^m - [1 - (\bar{S}_{Tm})^{1/m}]^m \right\}^2 \end{aligned} \right\} \quad (A.66)$$

Où \bar{S}_α est la saturation effective en phase α (les exposants sont volontairement omis pour allègement de notation), \bar{S}_{Tn} , et \bar{S}_{Tm} sont les saturations totales effectives en phase non-mouillante (polluant et air) et phase mouillante (eau et polluant) respectivement. ξ , ζ et ψ sont des paramètres exprimant la connexité des chemins parcourus par les différentes phases fluides. Pour 45 sols différents, Mualem (1976 et 1986) a obtenu la meilleure concordance entre modèle et mesure pour $\xi = 0,5$ (d'où, implicitement $\xi = \zeta = \psi = 0,5$).

ANNEXE 3

**Représentation graphique de la base
de données.**

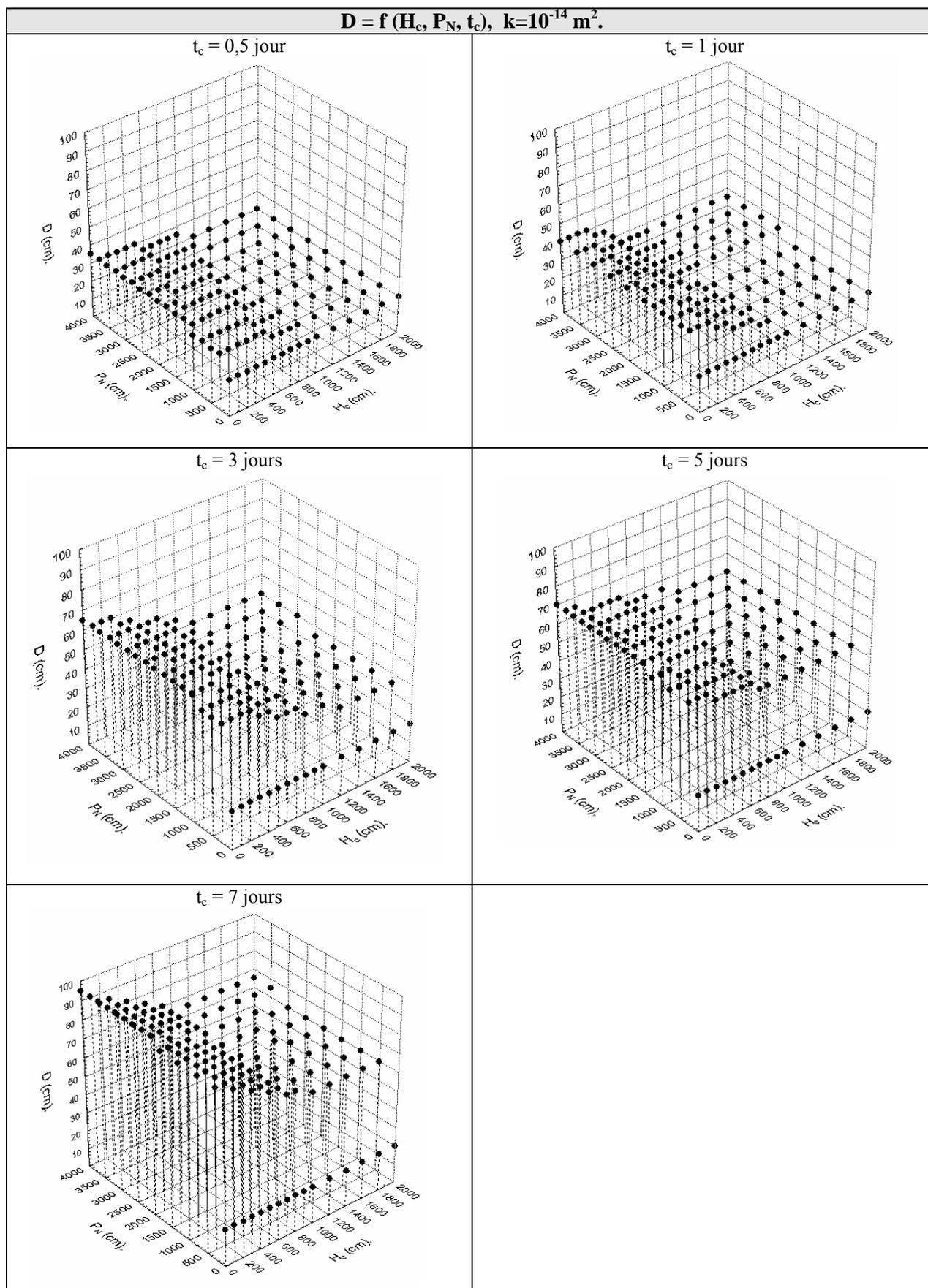


Figure A.11 : Représentation graphique d'un extrait de la base de données : évolution de D pour $k=10^{-14} \text{ m}^2$.

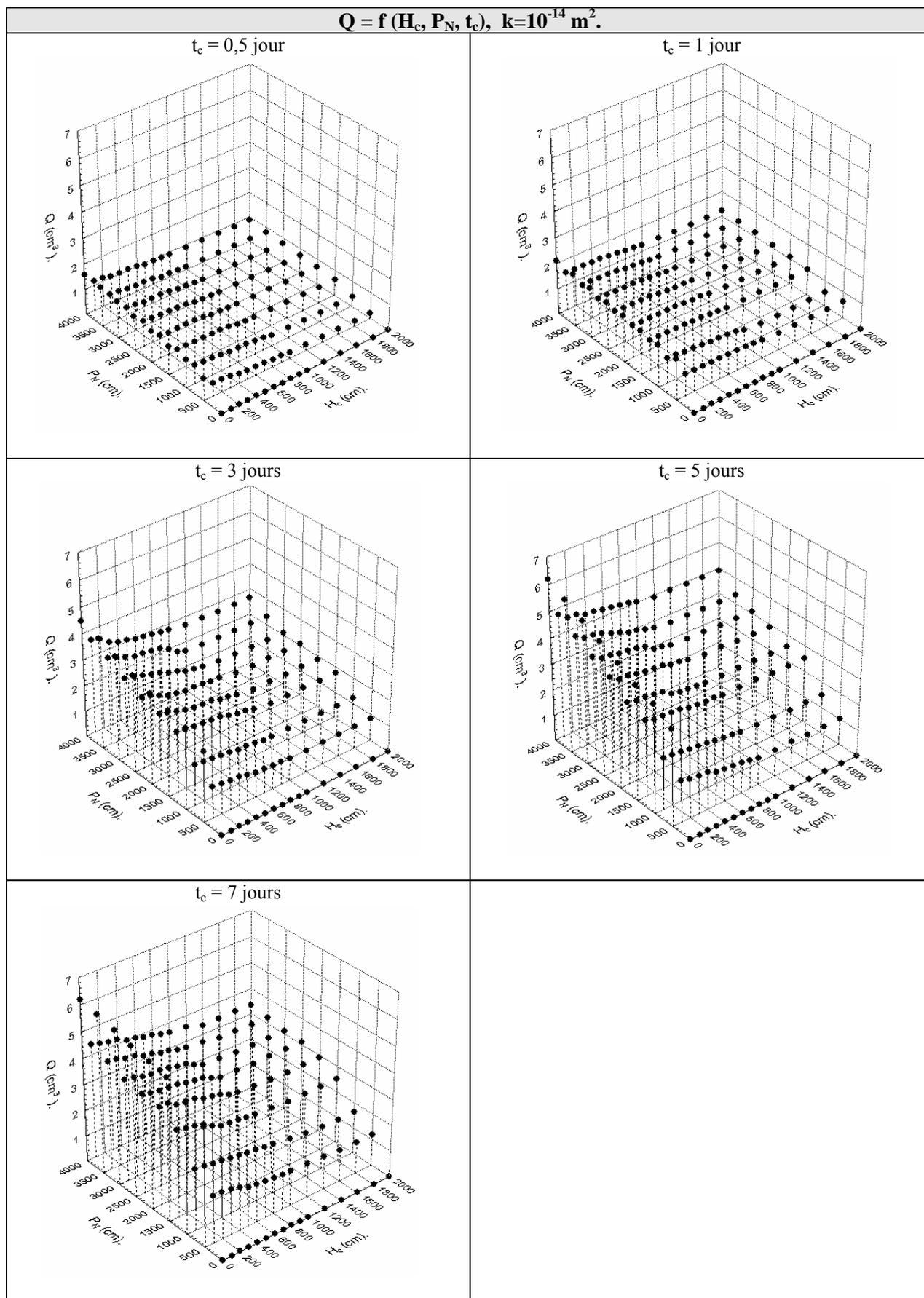


Figure A.12 : Représentation graphique d'un extrait de la base de données : évolution de Q pour $k=10^{-14} \text{ m}^2$.

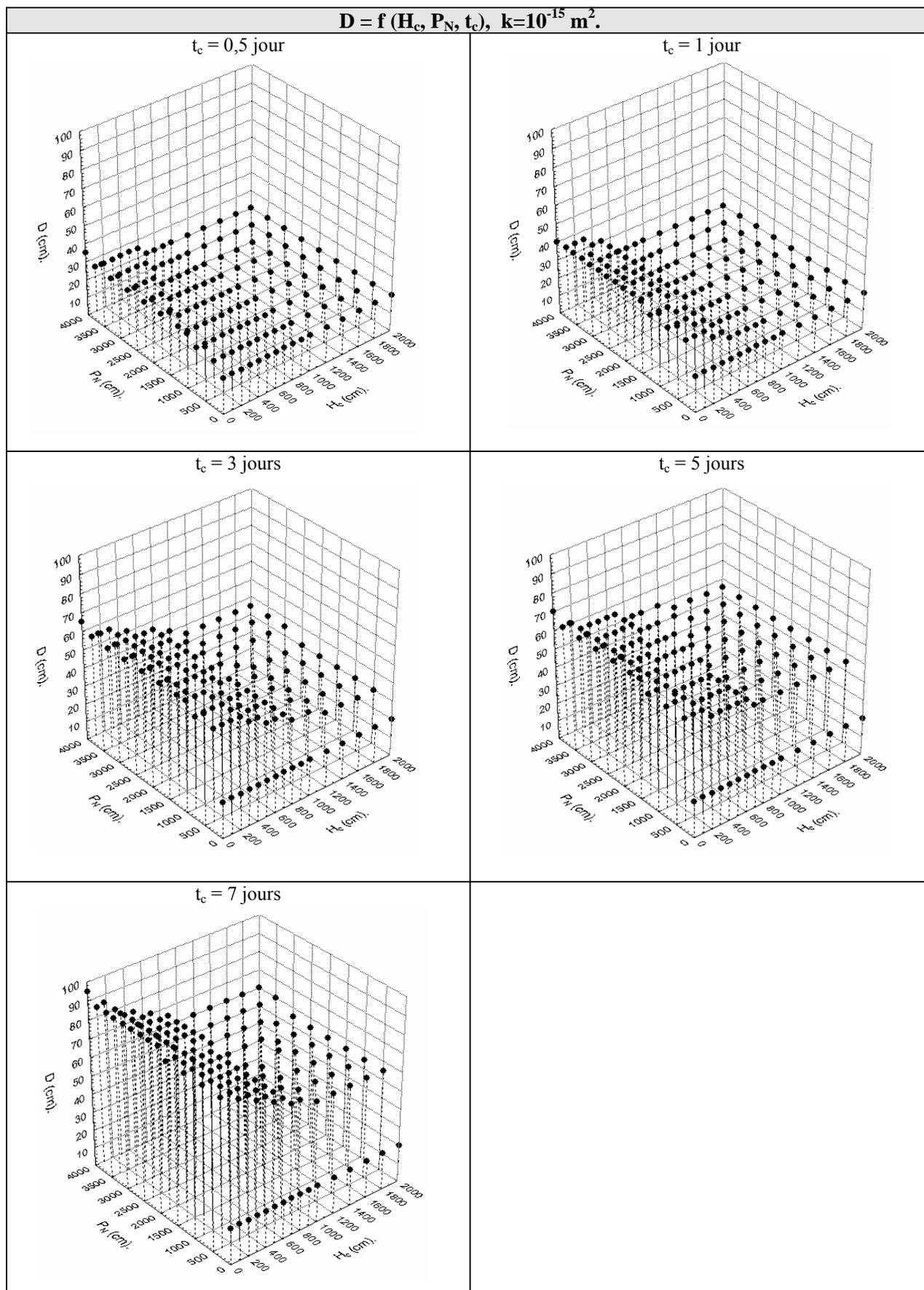


Figure A.13 : Représentation graphique d'un extrait de la base de données : évolution de D pour $k=10^{-15} \text{ m}^2$.

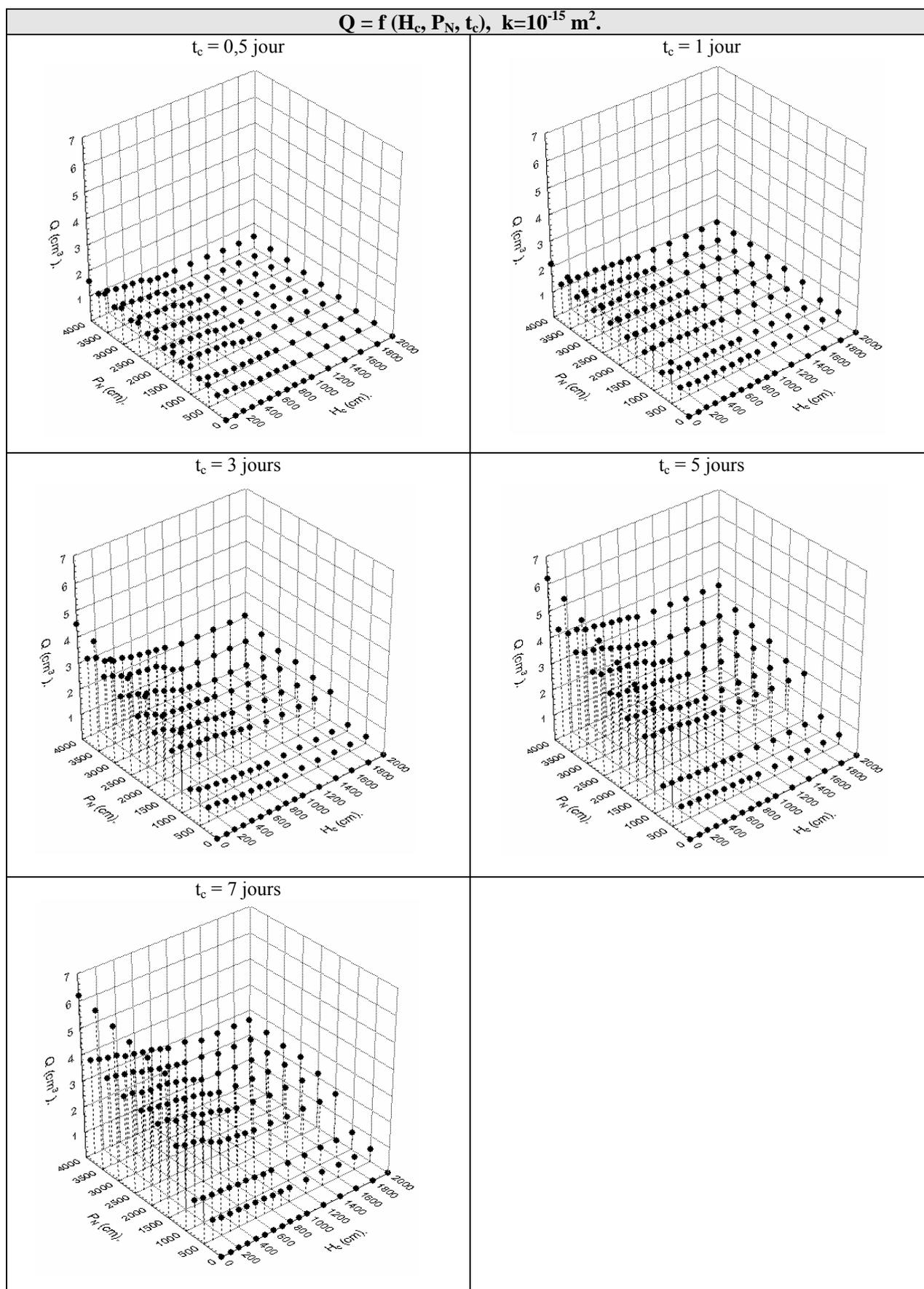


Figure A.14 : Représentation graphique d'un extrait de la base de données : évolution de Q pour $k=10^{-15} \text{ m}^2$.

ANNEXE 4

**Profil de pénétration de la pollution dans
l'axe du projet routier.**

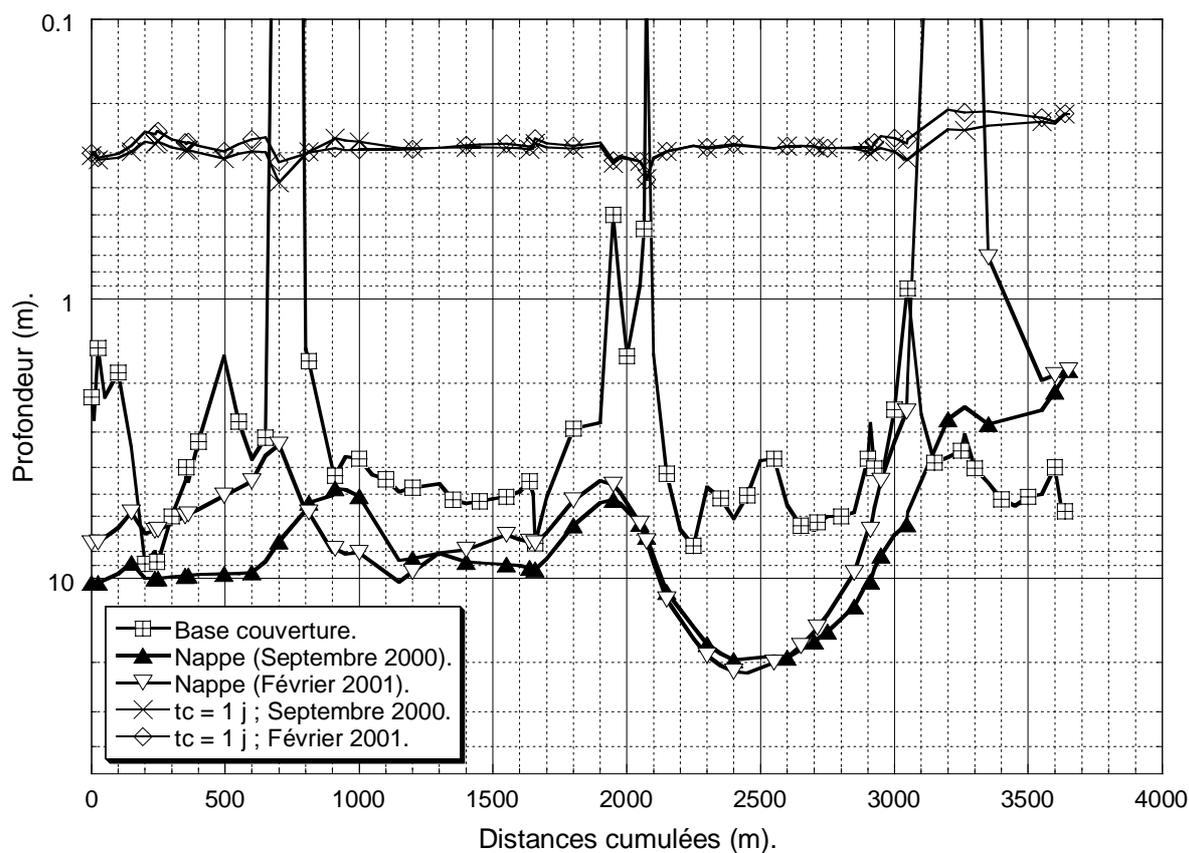


Figure A.15 : Simulation de la profondeur de contamination dans l'axe de la route, pour $t_c = 1$ jour et une position de la nappe correspondant en septembre 2000 et février 2001.

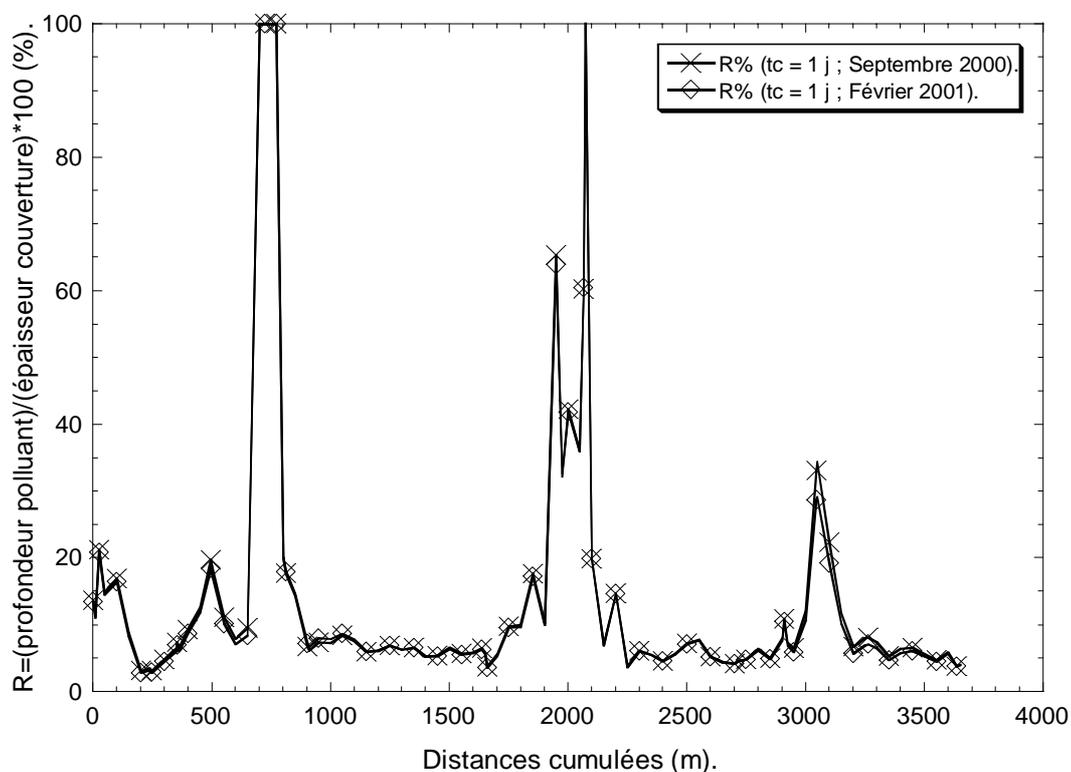


Figure A.16 : Simulation du facteur de risque R dans l'axe de la route, pour $t_c = 1$ jour et une position de la nappe correspondant en septembre 2000 et février 2001.

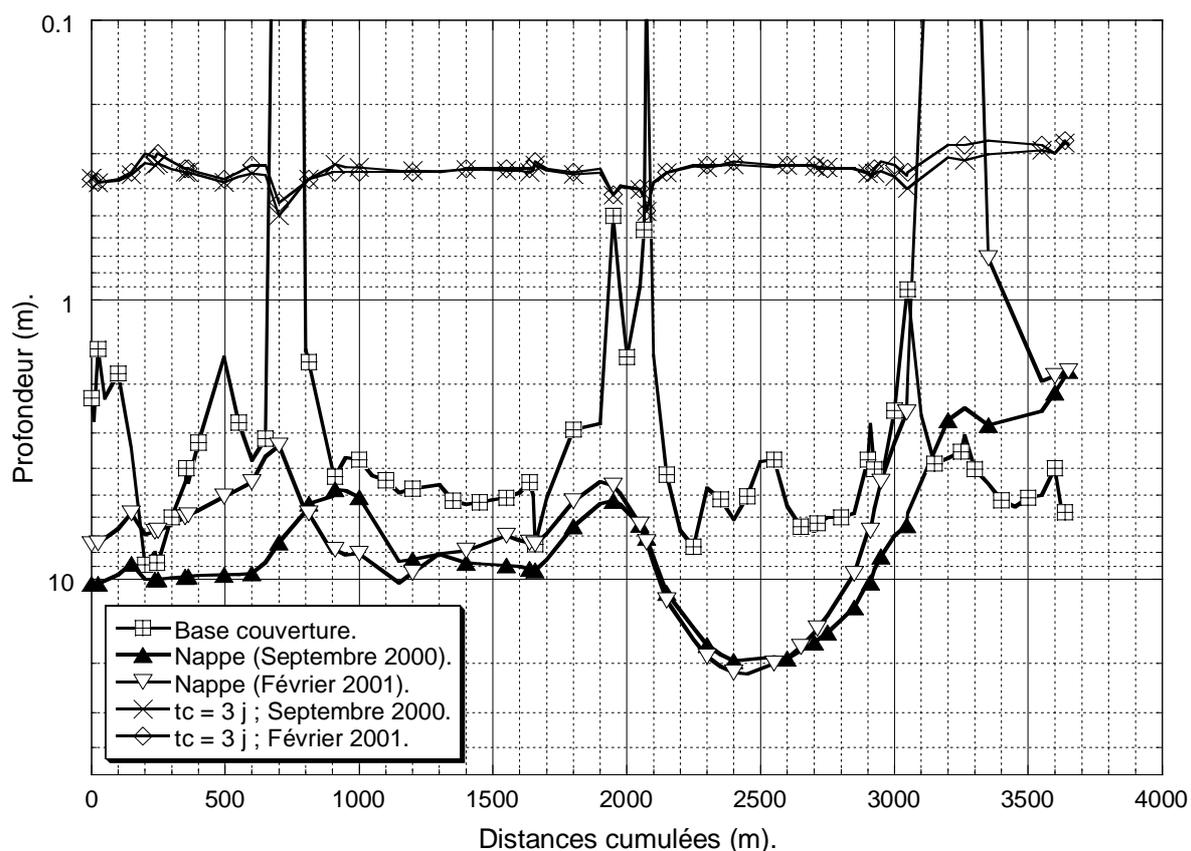


Figure A.17 : Simulation de la profondeur de contamination dans l'axe de la route, pour $t_c = 3$ jours et une position de la nappe correspondant en septembre 2000 et février 2001.

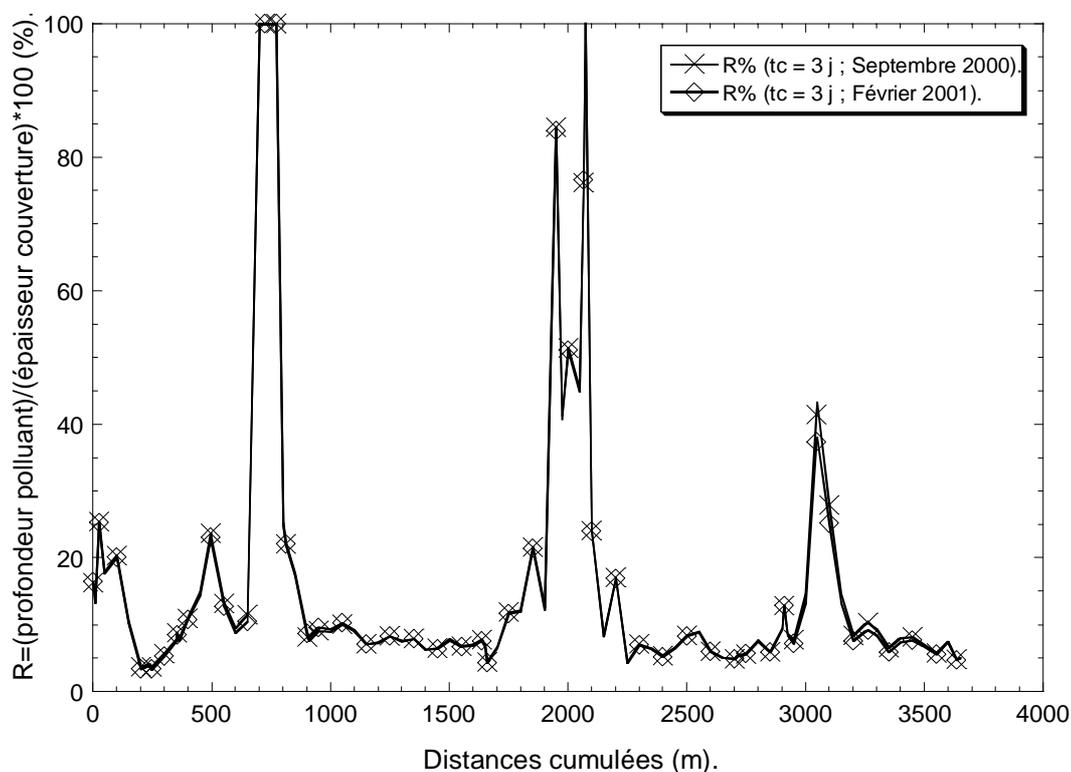


Figure A.18 : Simulation du facteur de risque R dans l'axe de la route, pour $t_c = 3$ jours et une position de la nappe correspondant en septembre 2000 et février 2001.

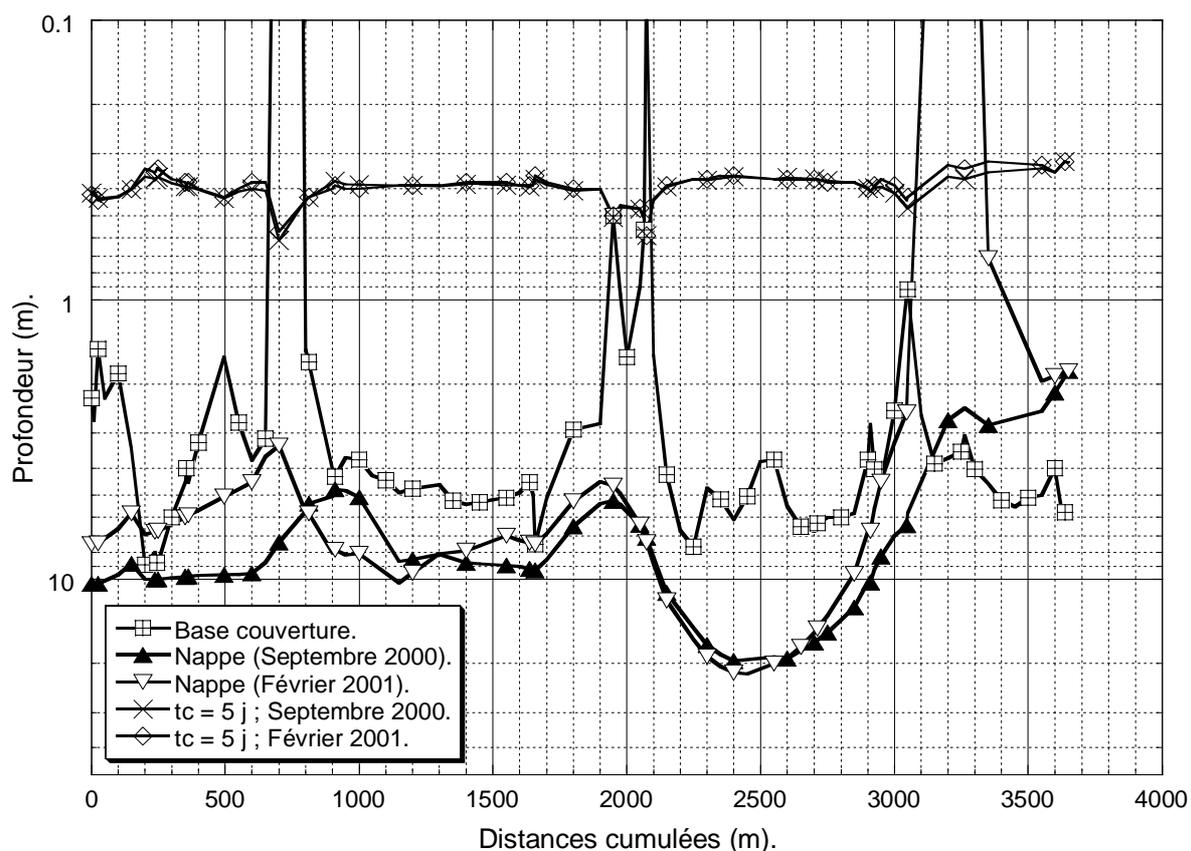


Figure A.19 : Simulation de la profondeur de contamination dans l'axe de la route, pour $t_c = 5$ jours et une position de la nappe correspondant en septembre 2000 et février 2001.

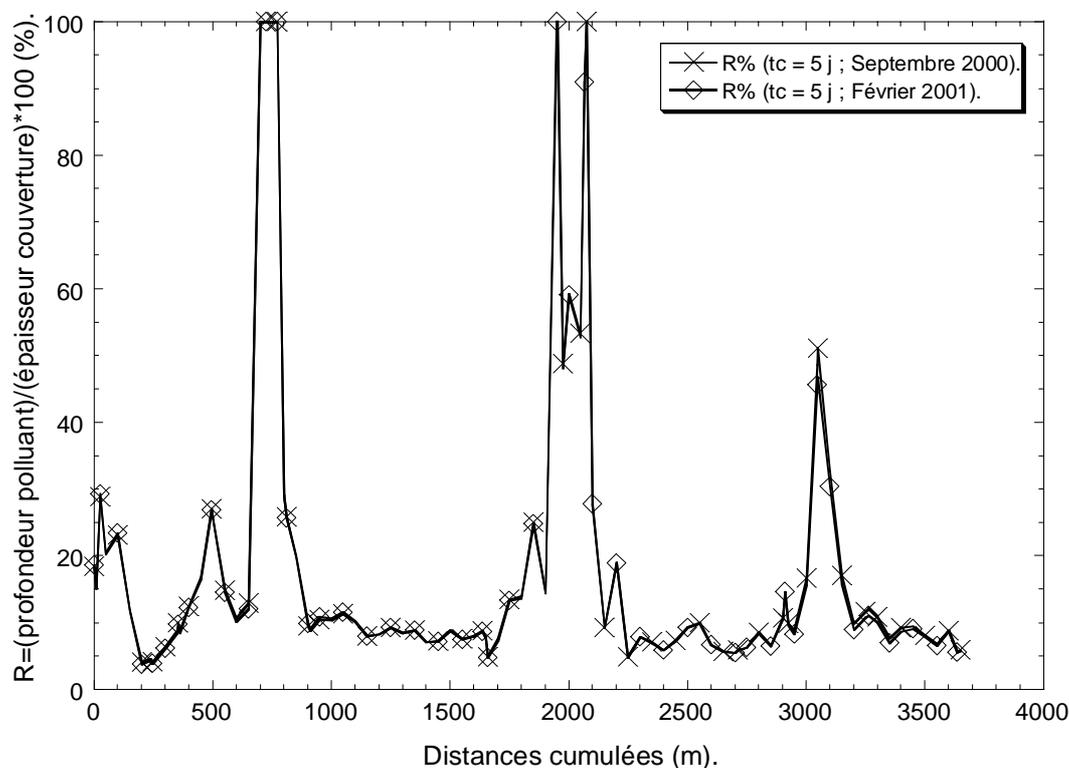


Figure A.20 : Simulation du facteur de risque R dans l'axe de la route, pour $t_c = 5$ jours et une position de la nappe correspondant en septembre 2000 et février 2001.

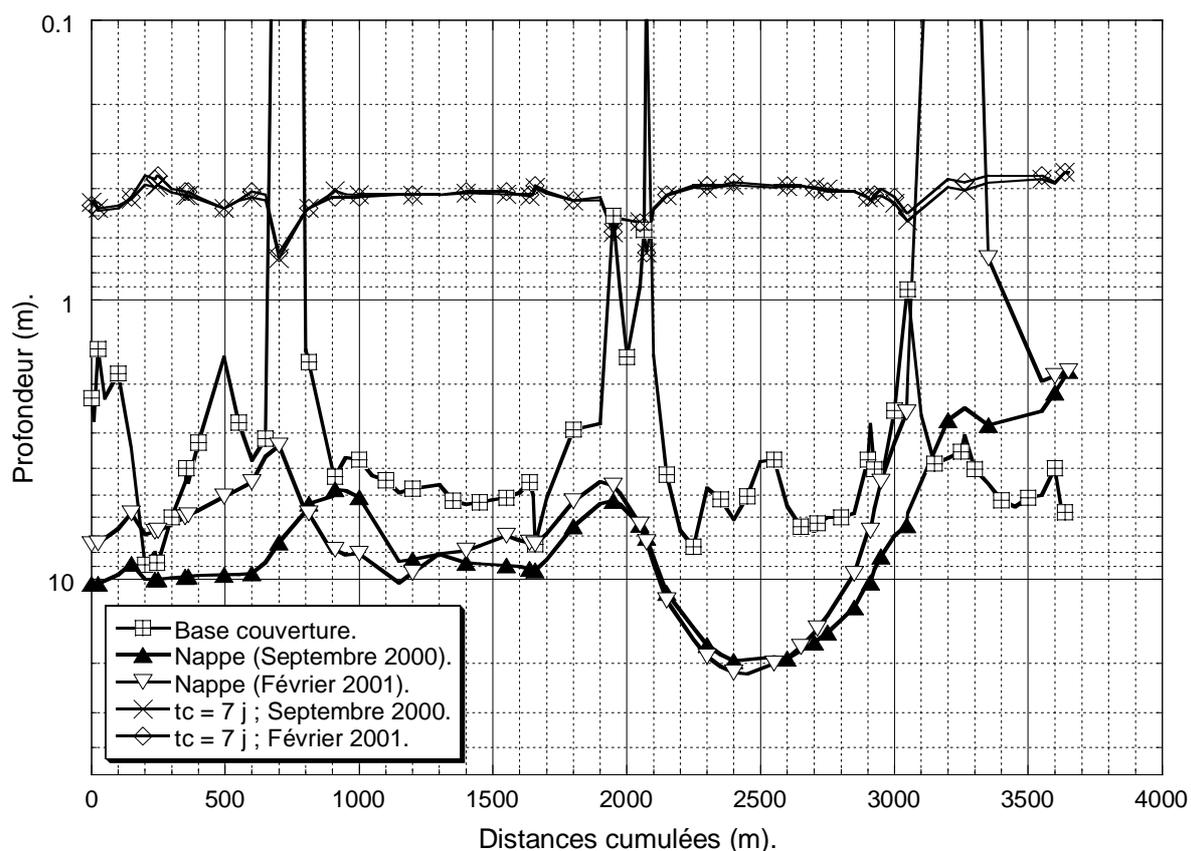


Figure A.21 : Simulation de la profondeur de contamination dans l'axe de la route, pour $t_c = 7$ jours et une position de la nappe correspondant en septembre 2000 et février 2001.

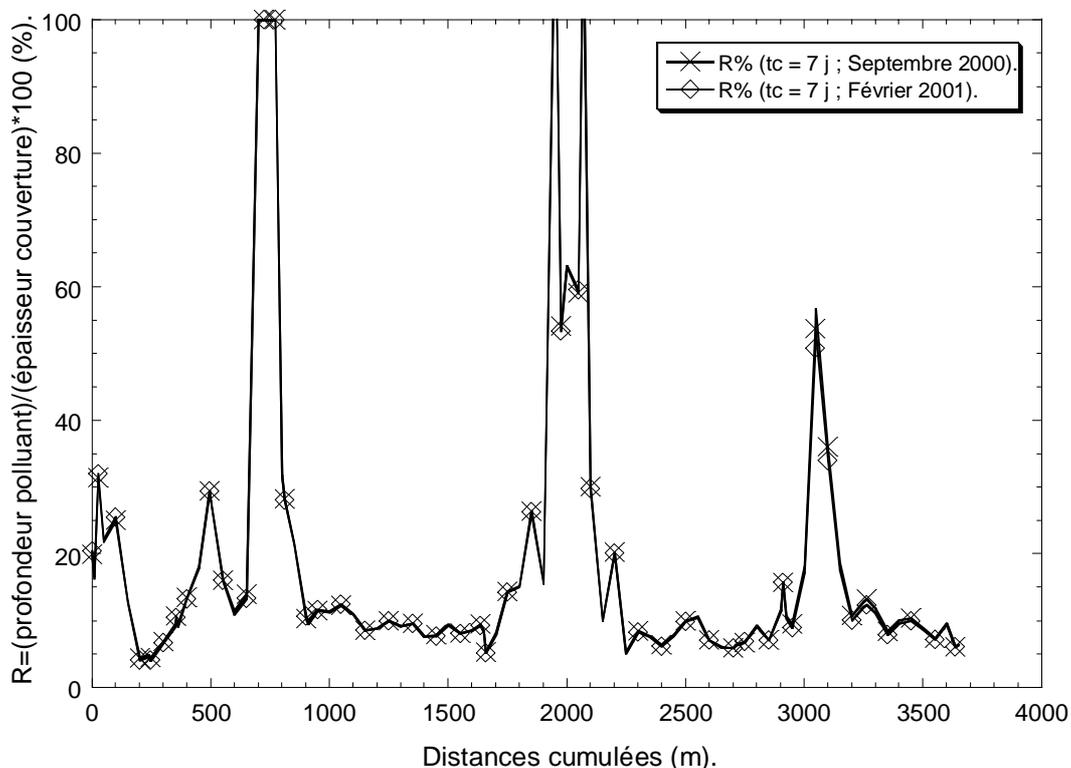


Figure A.22 : Simulation du facteur de risque R dans l'axe de la route, pour $t_c = 7$ jours et une position de la nappe correspondant en septembre 2000 et février 2001.

ANNEXE 5

Scénarios de pollution

- ❖ **Front de pénétration de la pollution dans la zone 1.**
- ❖ **Front de pénétration de la pollution dans la zone 2.**

I- Front de pénétration de la pollution dans la zone 1

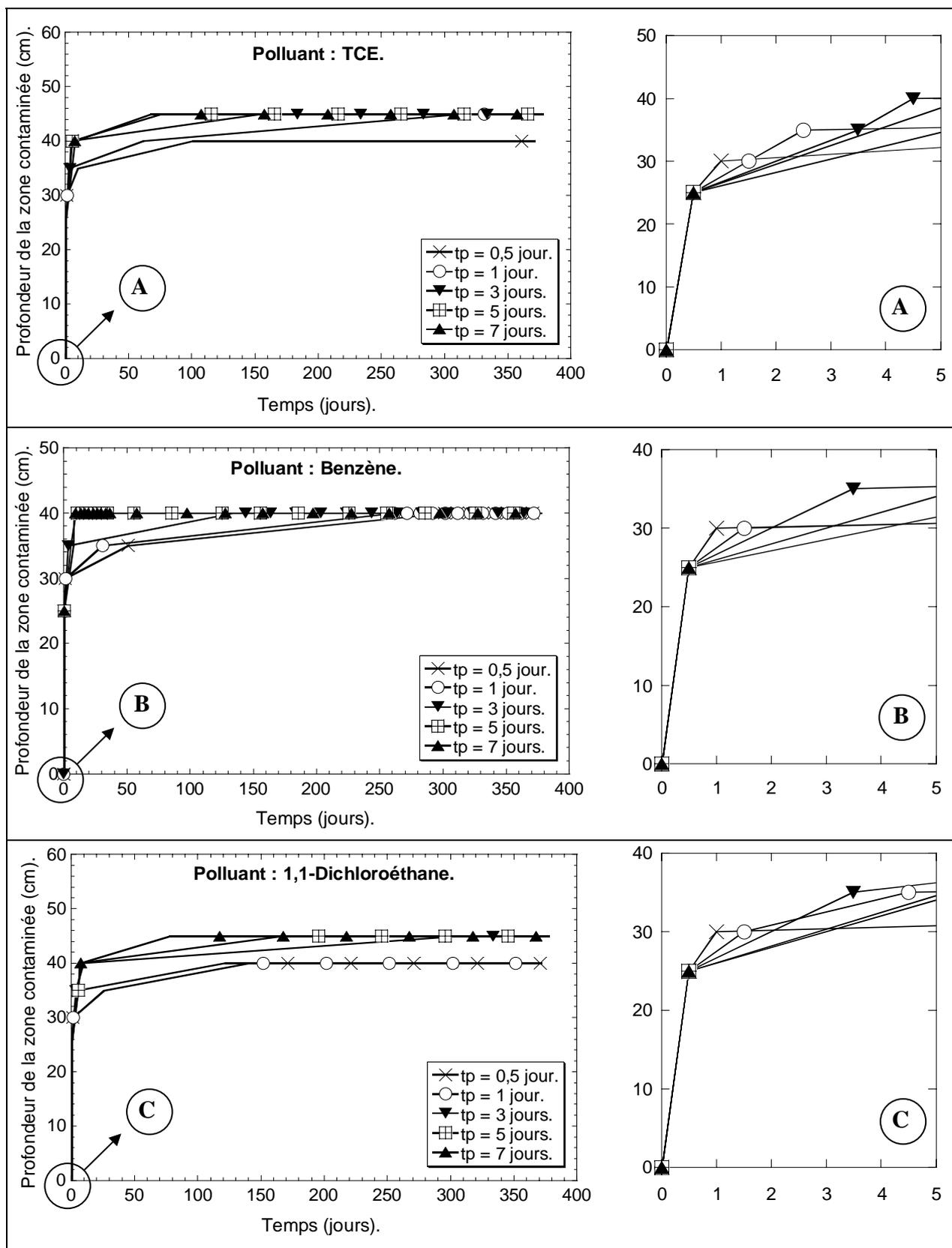


Figure A.23 : Front de pénétration des 3 polluants pour $t_c = 0,5$ jour, une nappe à 4 m et différentes durées t_p de lessivage par temps de pluie.

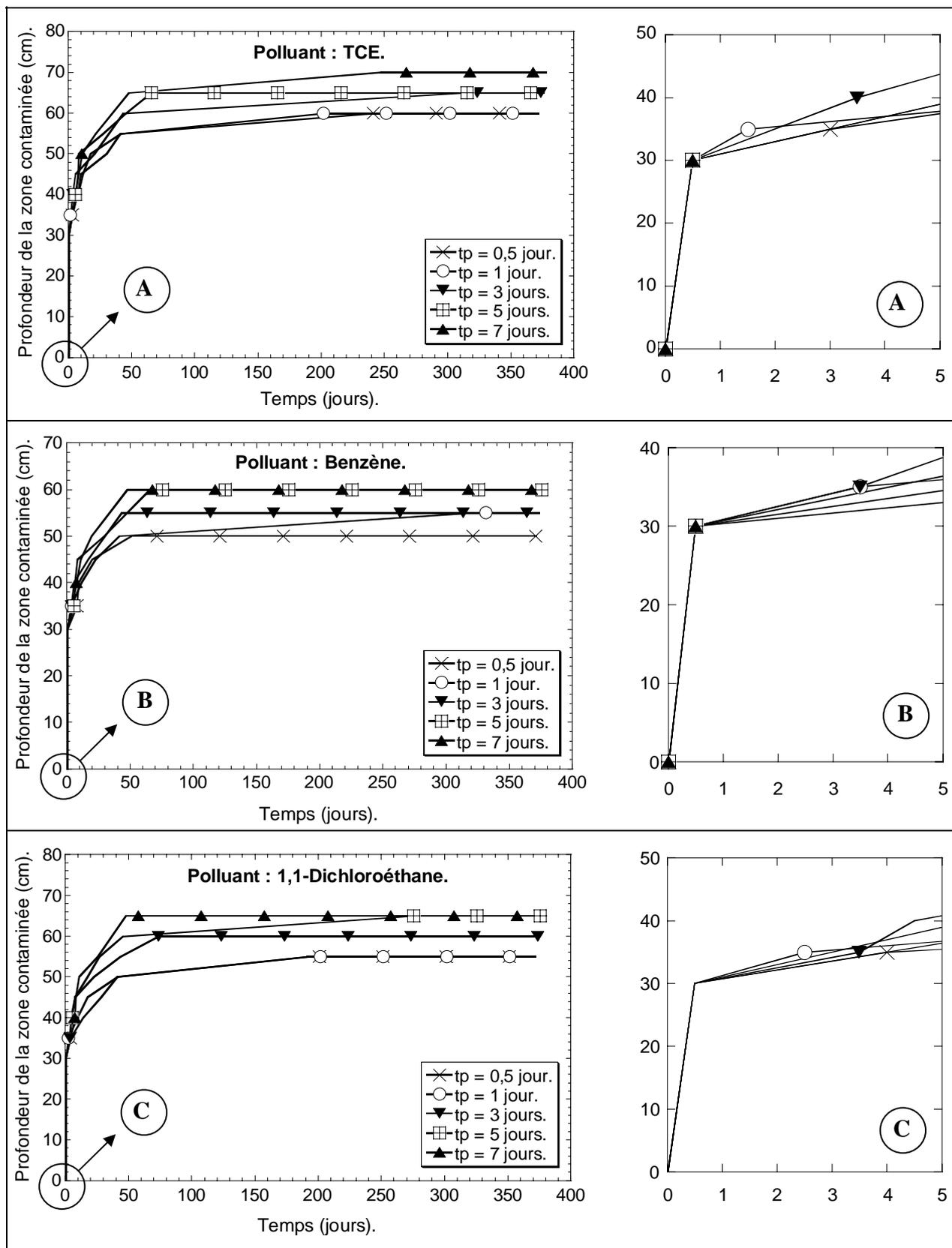


Figure A.24 : Front de pénétration des 3 polluants pour $t_c = 0,5$ jour, une nappe à 10 m et différentes durées t_p de lessivage par temps de pluie.

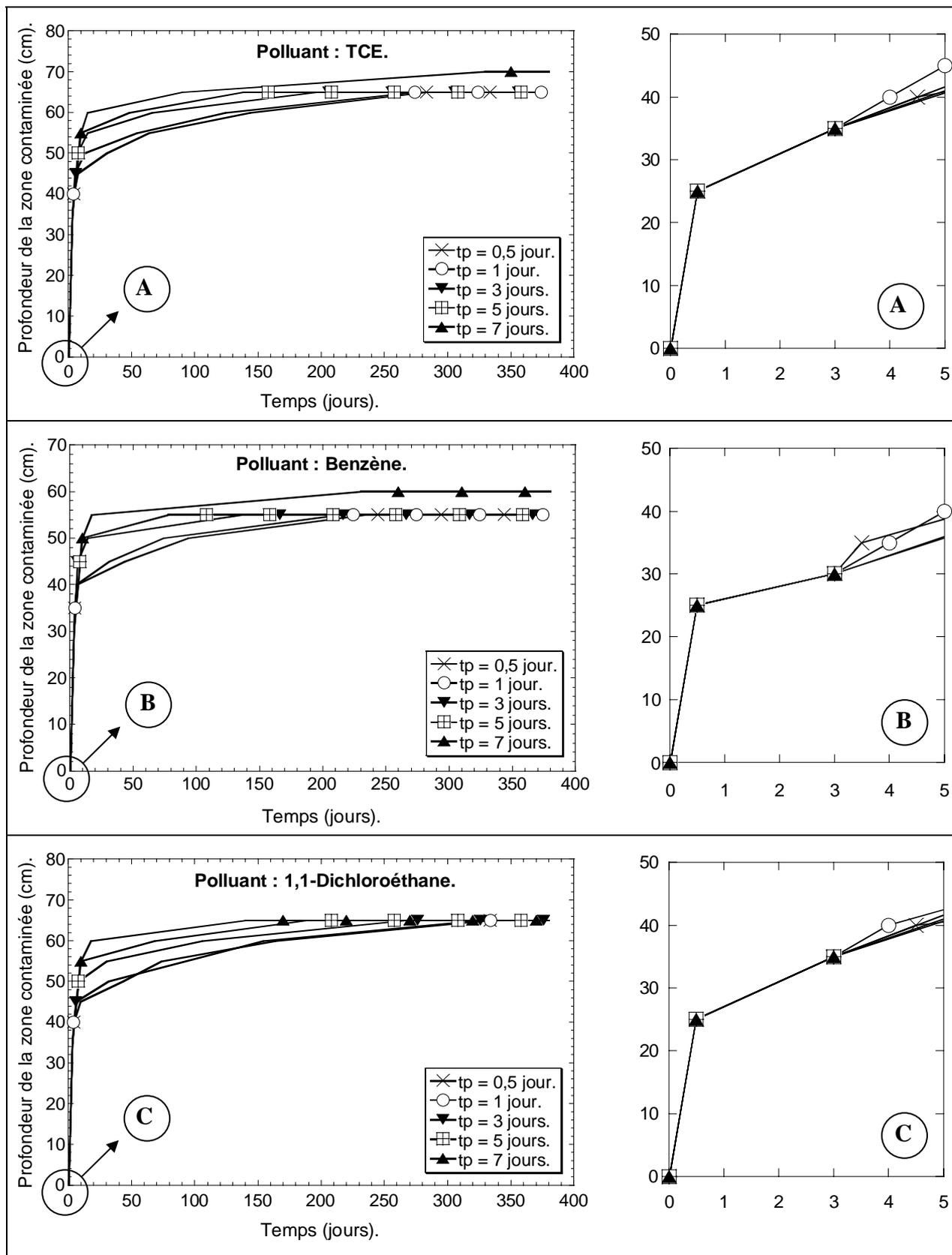


Figure A.25 : Front de pénétration des 3 polluants pour $t_c = 3$ jours, une nappe à 4 m et différentes durées t_p de lessivage par temps de pluie.

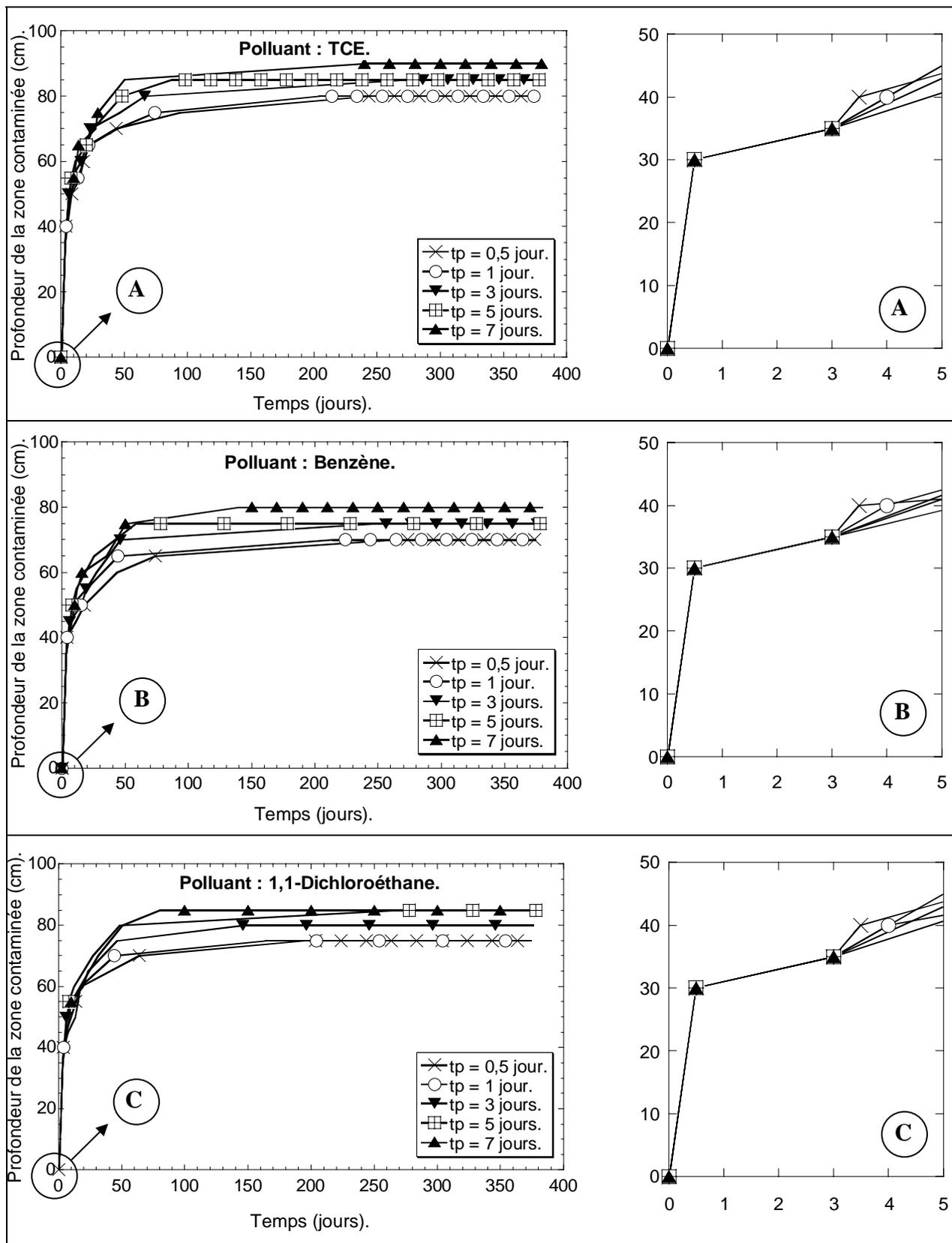


Figure A.26 : Front de pénétration des 3 polluants pour $t_c = 3$ jours, une nappe à 10 m et différentes durées t_p de lessivage par temps de pluie.

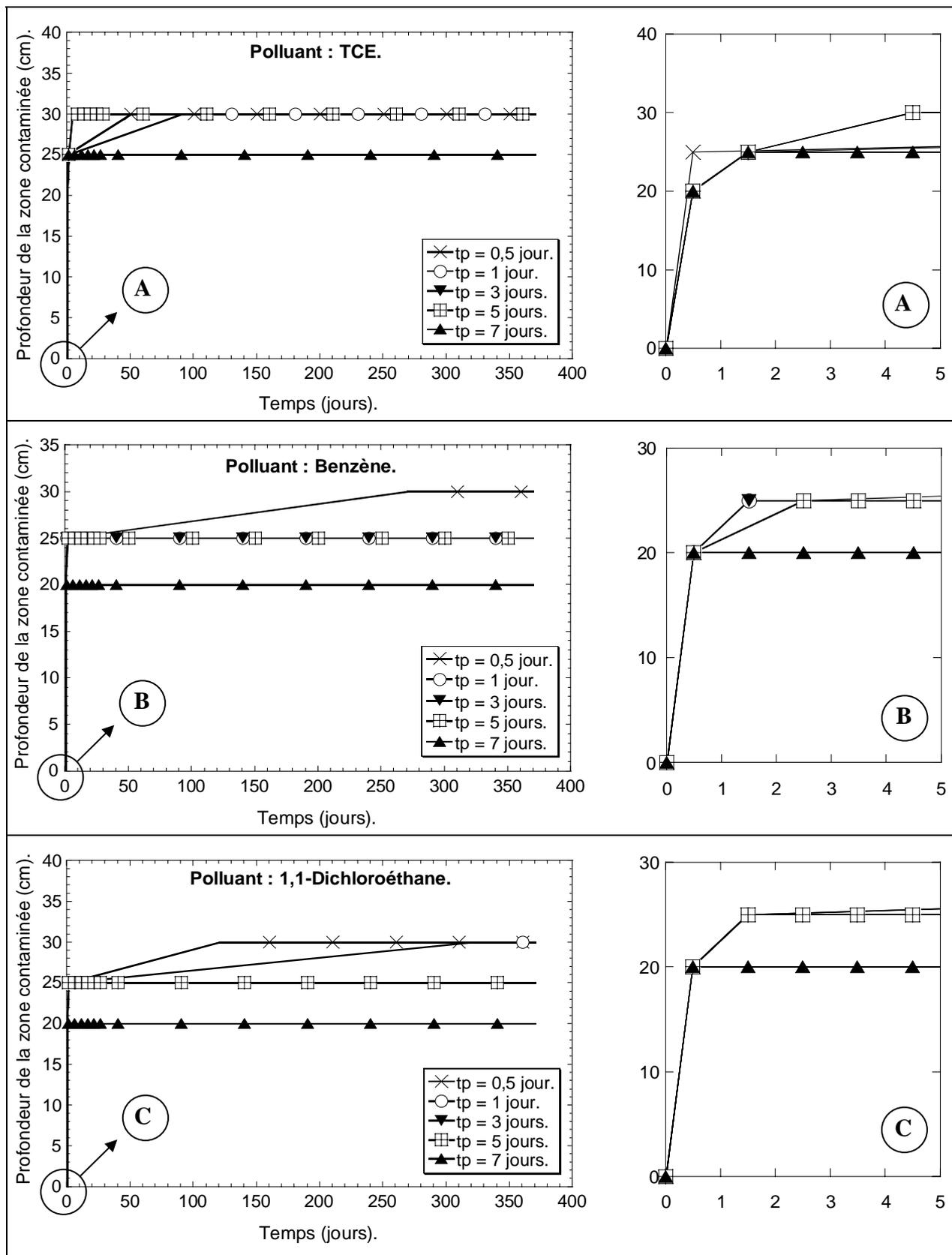


Figure A.27 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 0,5$ jour, une nappe à 4 m et différentes durées t_p de pluie avant le déversement.

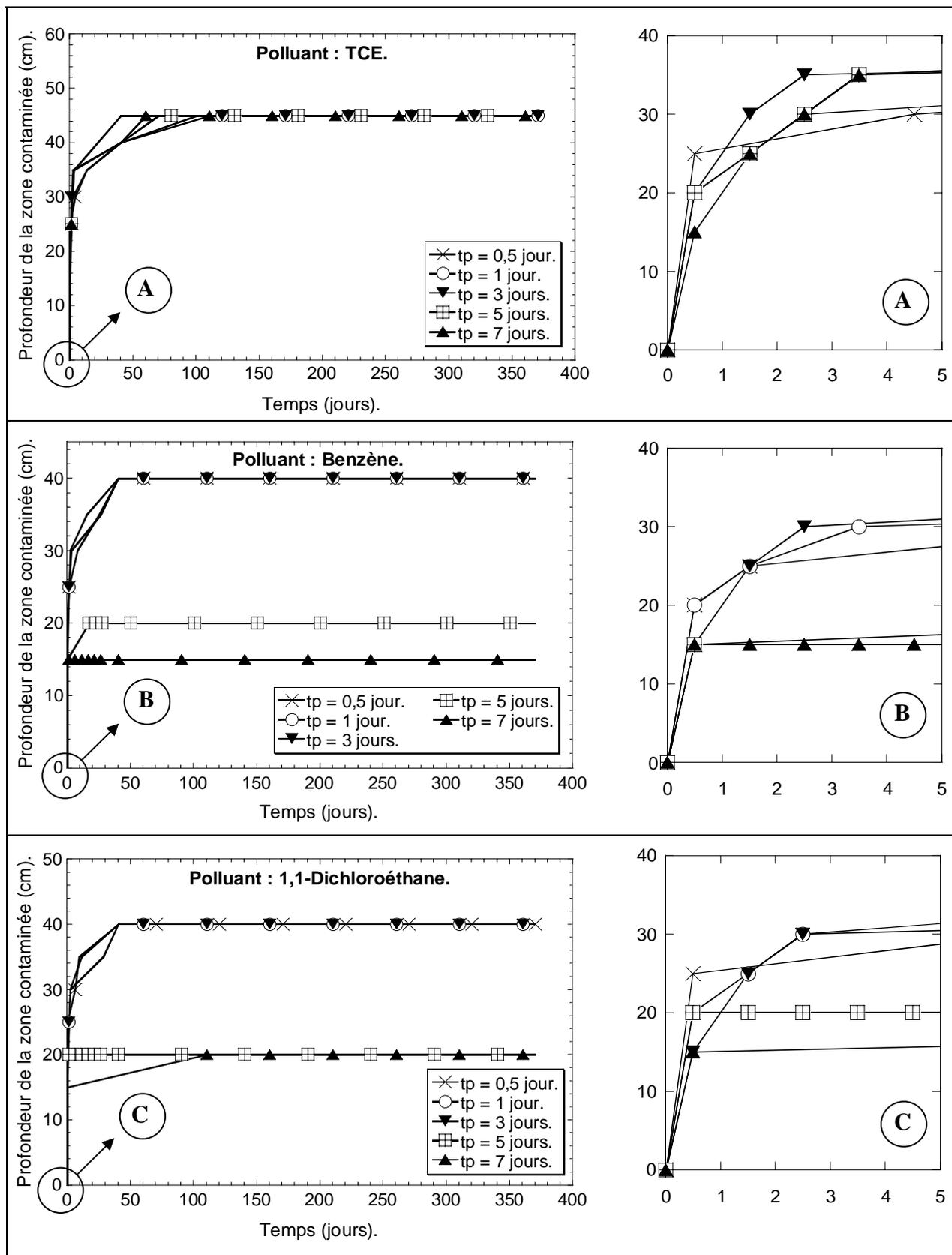


Figure A.28 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 0,5$ jour, une nappe à 10 m et différentes durées t_p de pluie avant le déversement.

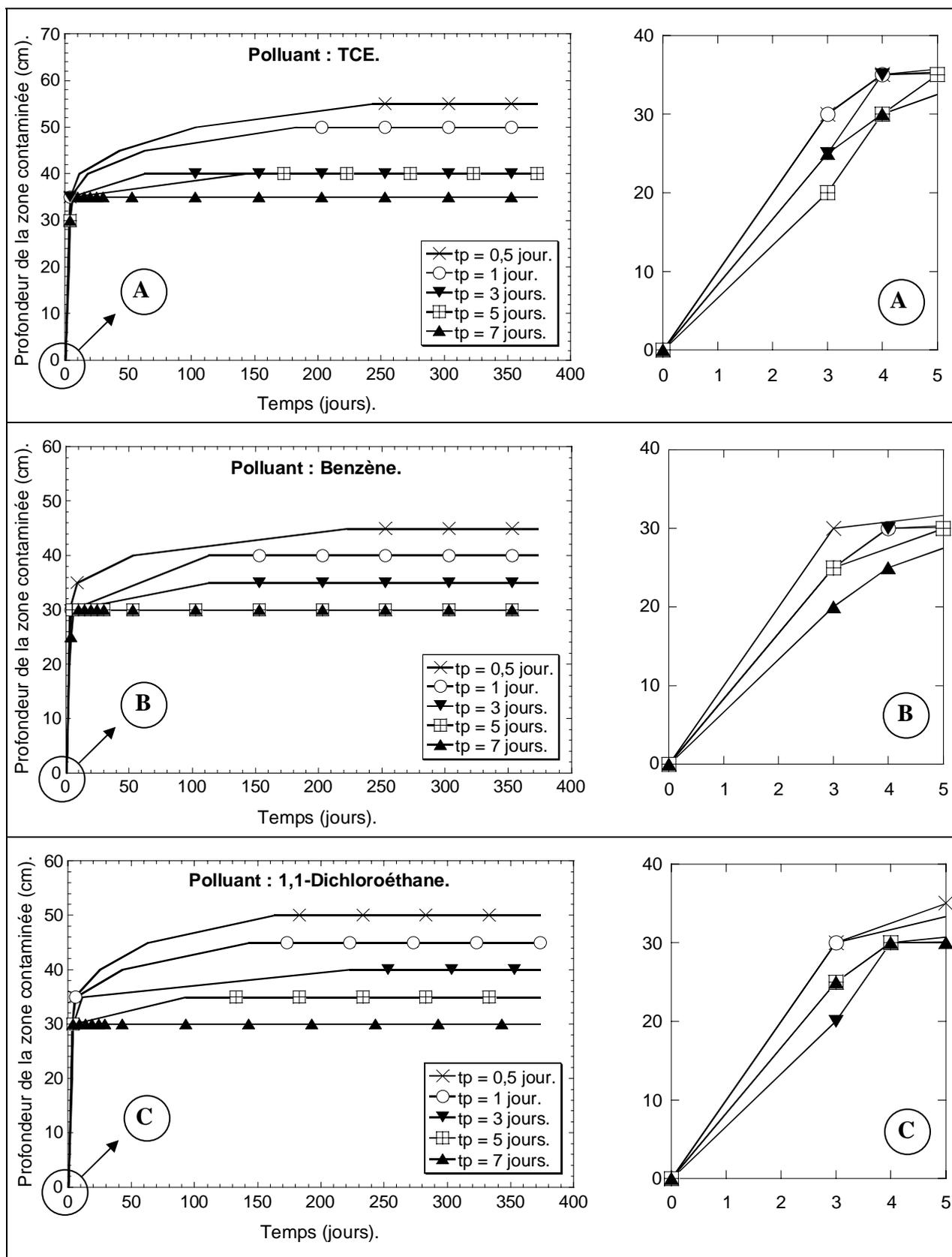


Figure A.29 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 3$ jours, une nappe à 4 m et différentes durées t_p de pluie avant le déversement.

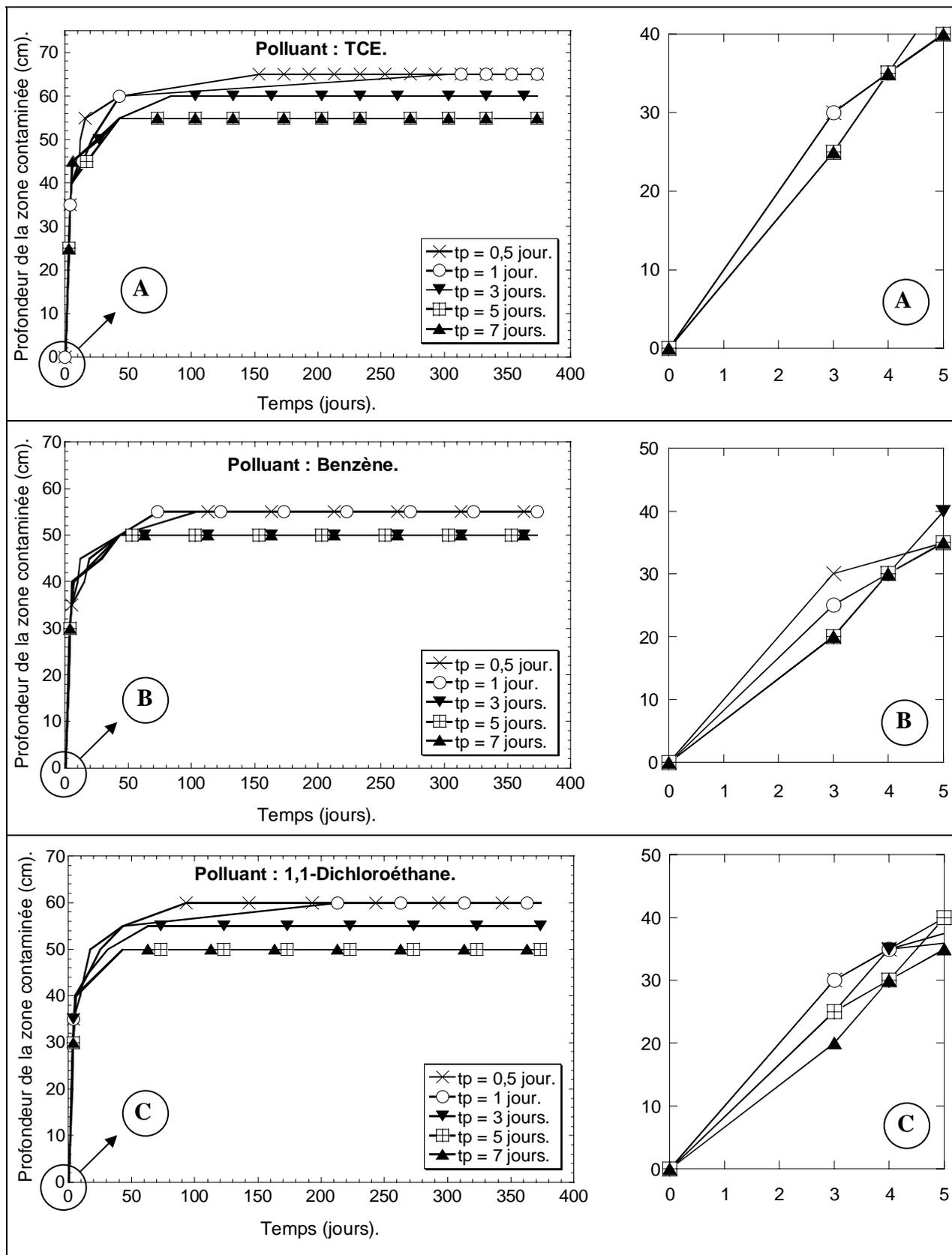


Figure A.30 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 3$ jours, une nappe à 10 m et différentes durées t_p de pluie avant le déversement.

II- Front de pénétration de la pollution dans la zone 2

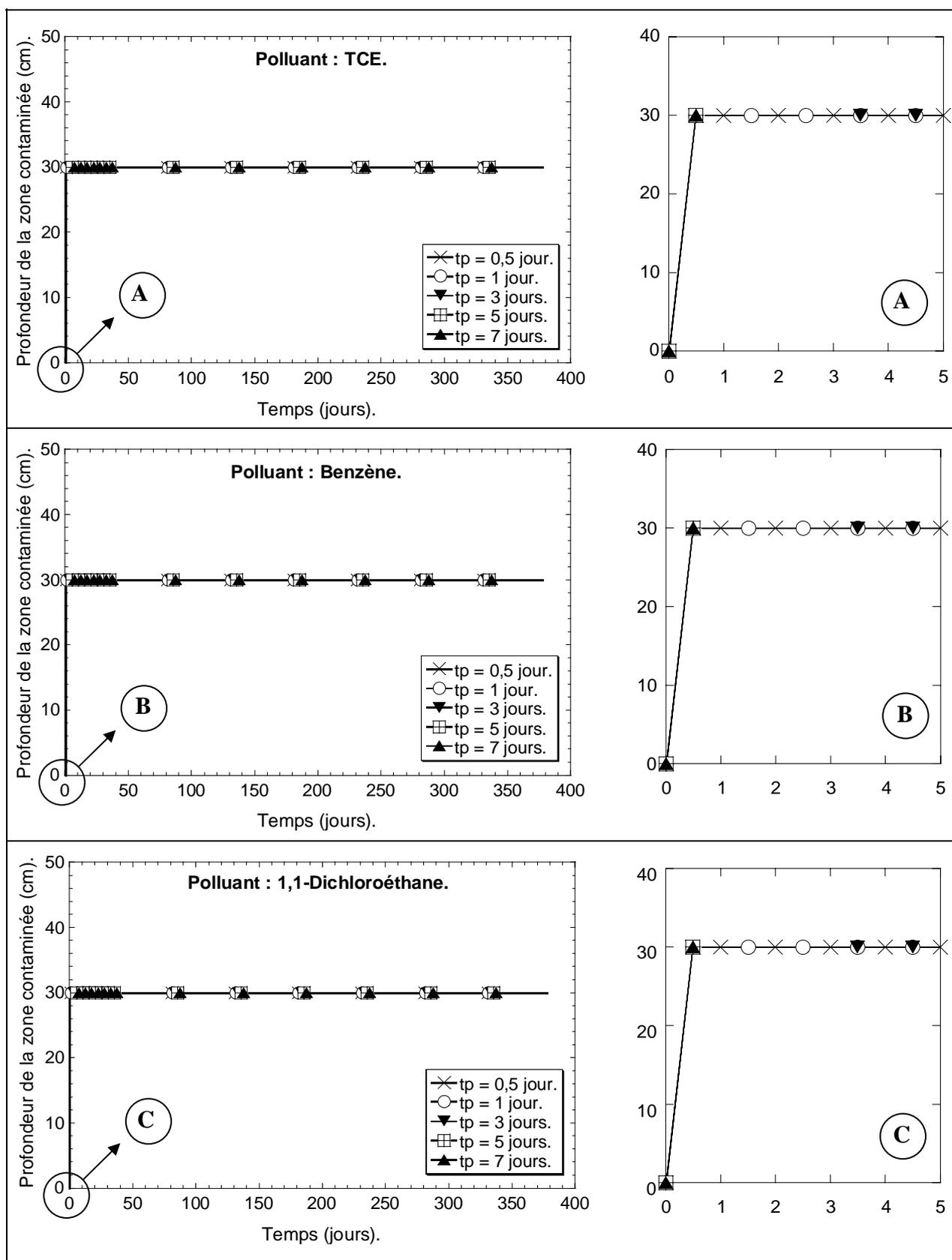


Figure A.31 : Front de pénétration des 3 polluants pour $t_c = 0,5$ jour, une nappe à 0,5 m et différentes durées t_p de lessivage par temps de pluie.

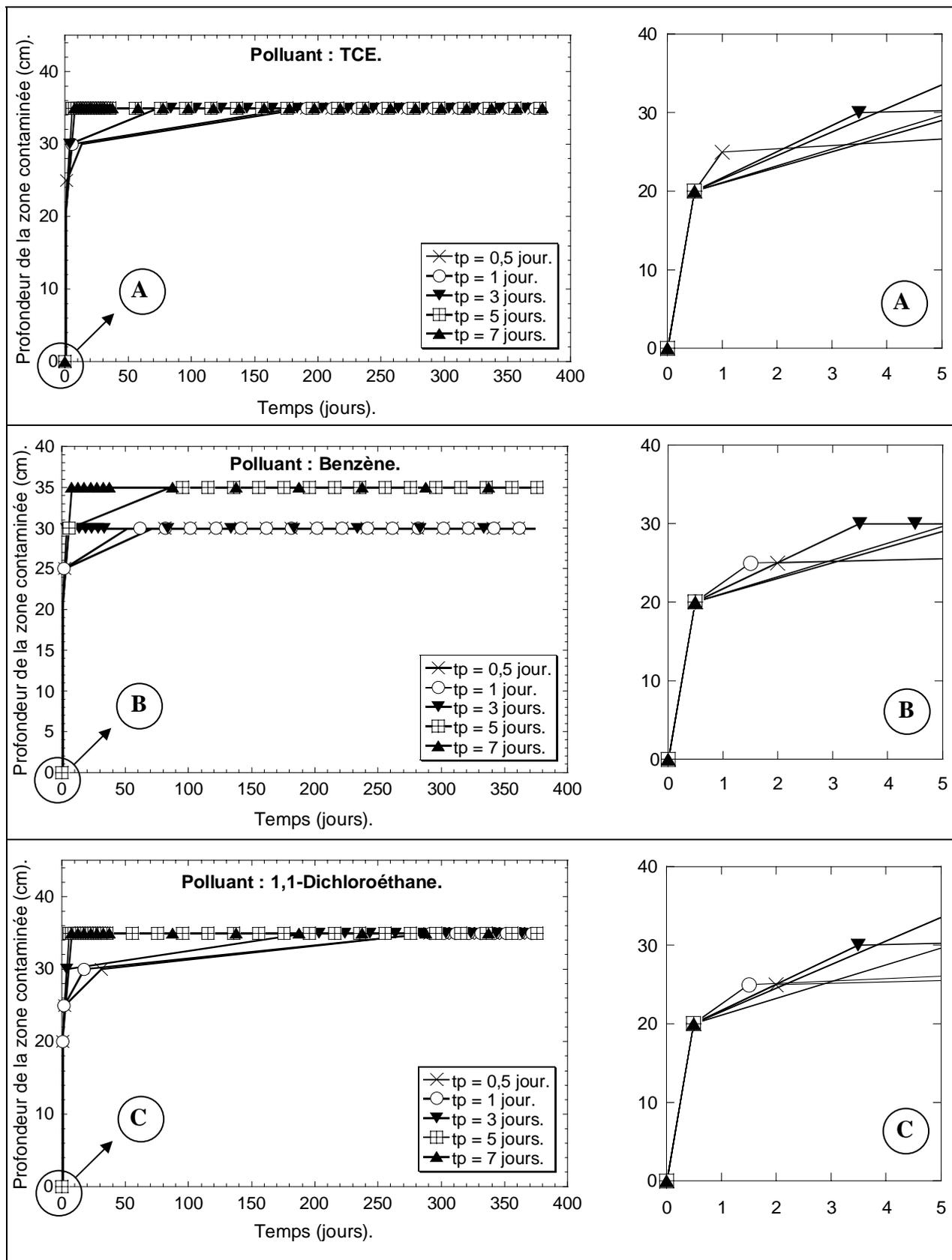


Figure A.32 : Front de pénétration des 3 polluants pour $t_c = 0,5$ jour, une nappe à 3 m et différentes durées t_p de lessivage par temps de pluie.

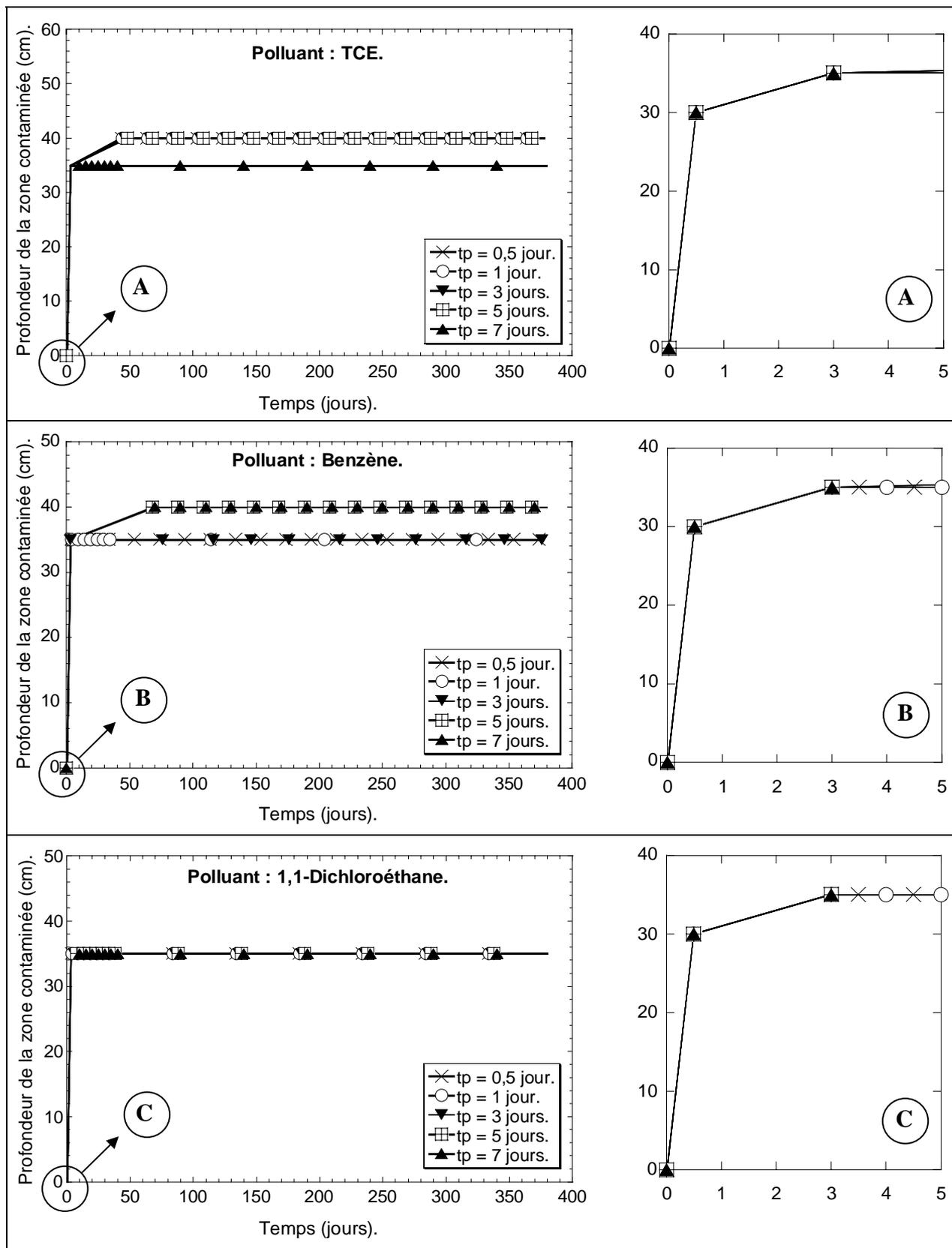


Figure A.33 : Front de pénétration des 3 polluants pour $t_c = 3$ jours, une nappe à 0,5 m et différentes durées t_p de lessivage par temps de pluie.

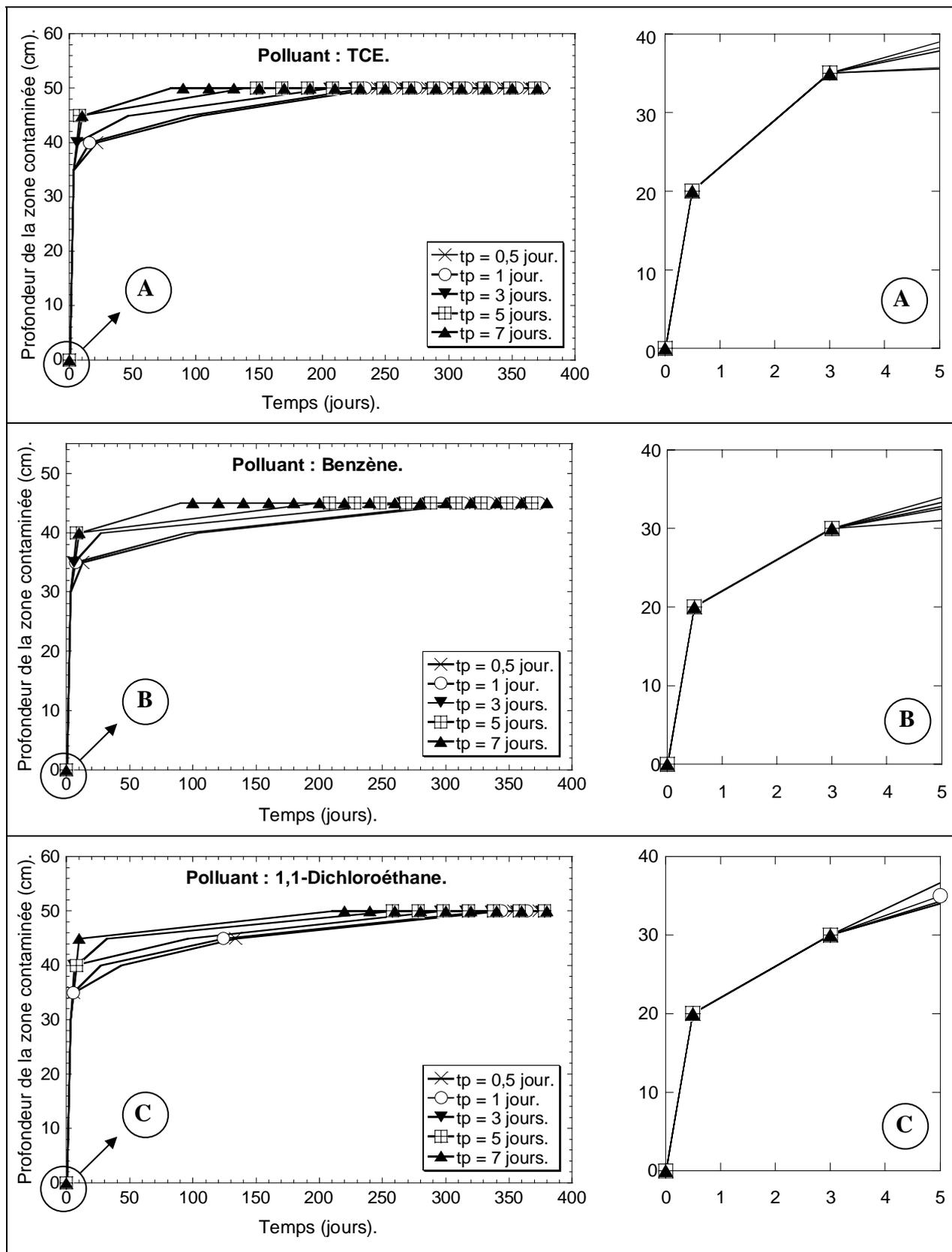


Figure A.34 : Front de pénétration des 3 polluants pour $t_c = 3$ jours, une nappe à 3 m et différentes durées t_p de lessivage par temps de pluie.

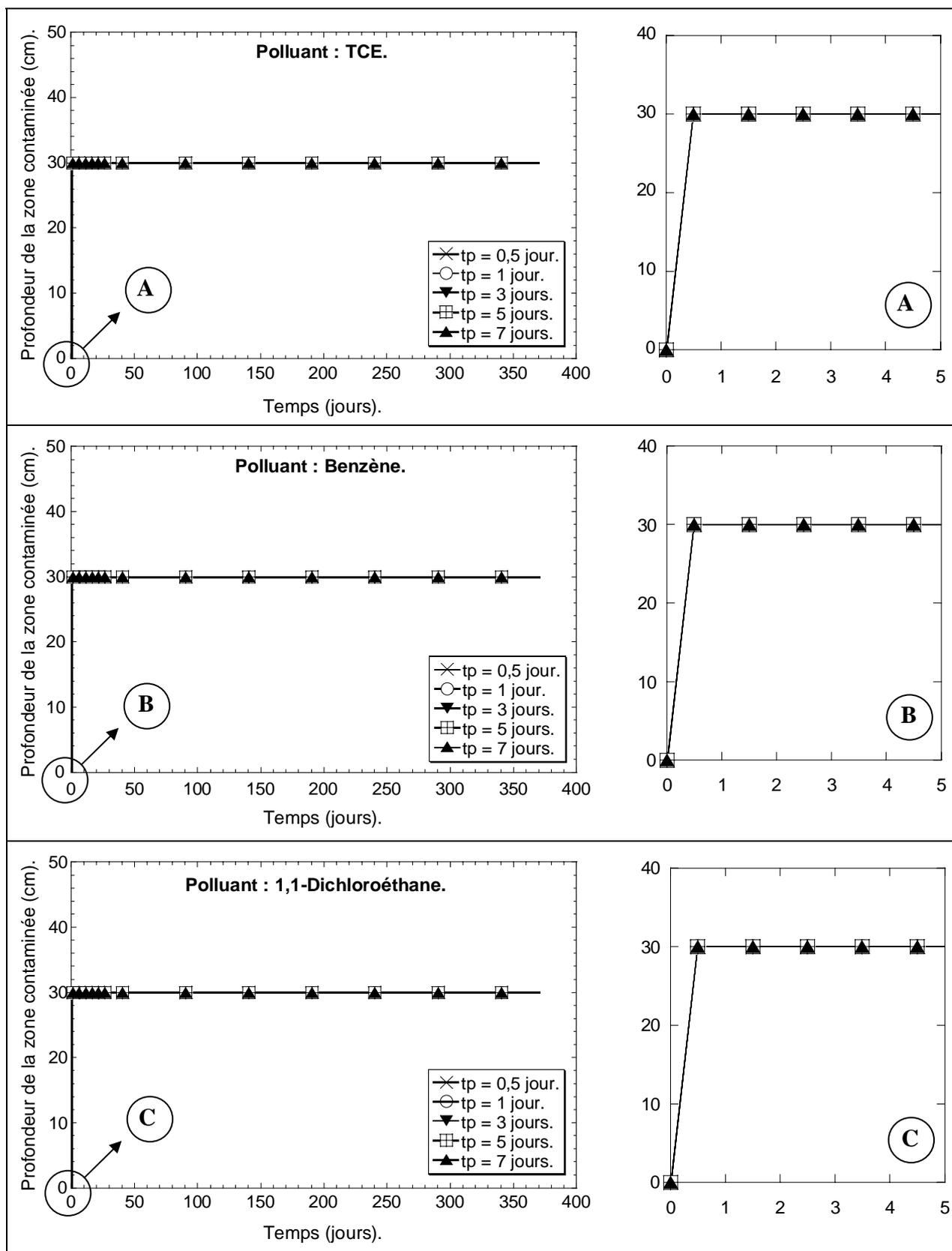


Figure A.35 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 0,5$ jour, une nappe à 0,5 m et différentes durées t_p de pluie avant le déversement.

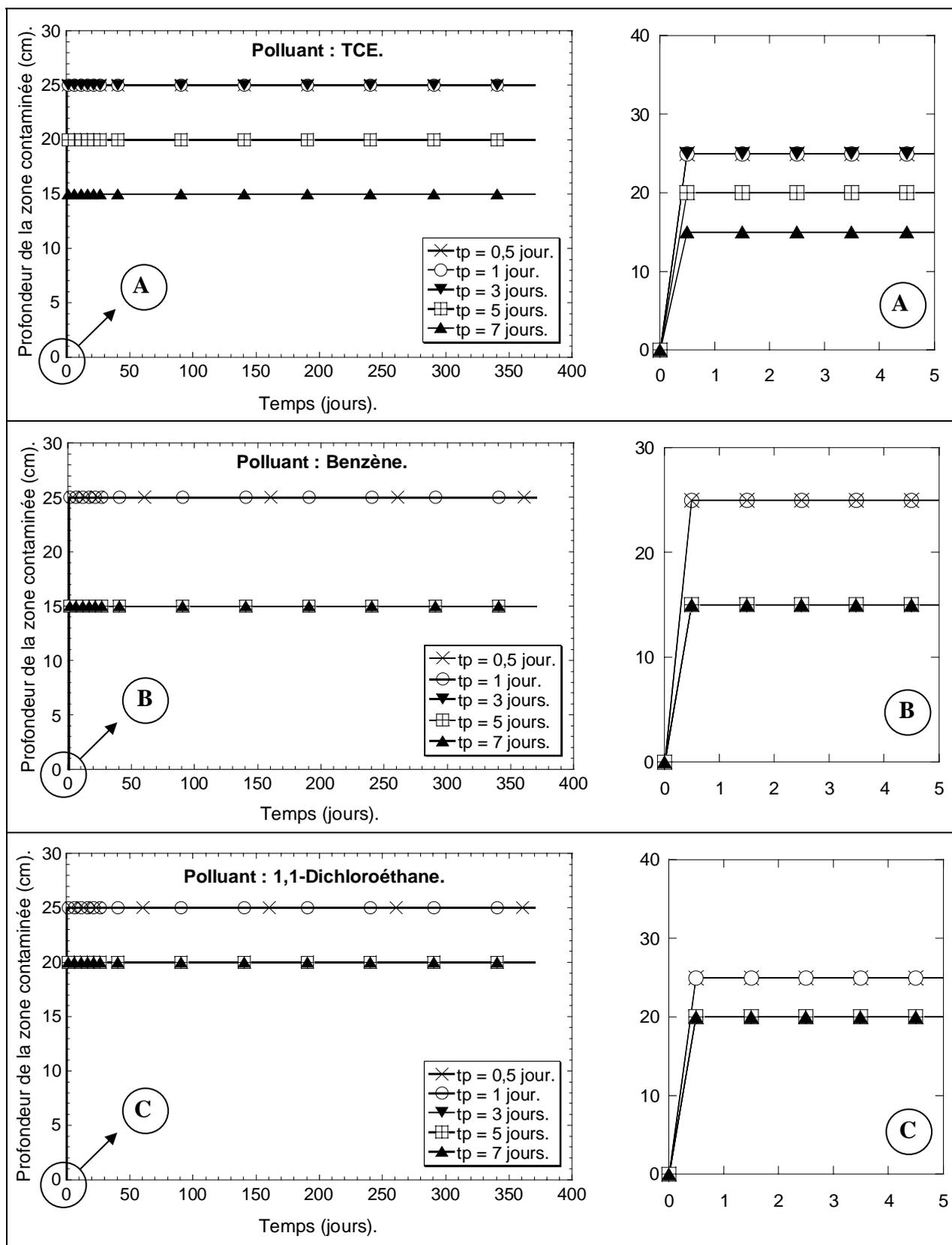


Figure A.36 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 0,5$ jour, une nappe à 3 m et différentes durées t_p de pluie avant le déversement

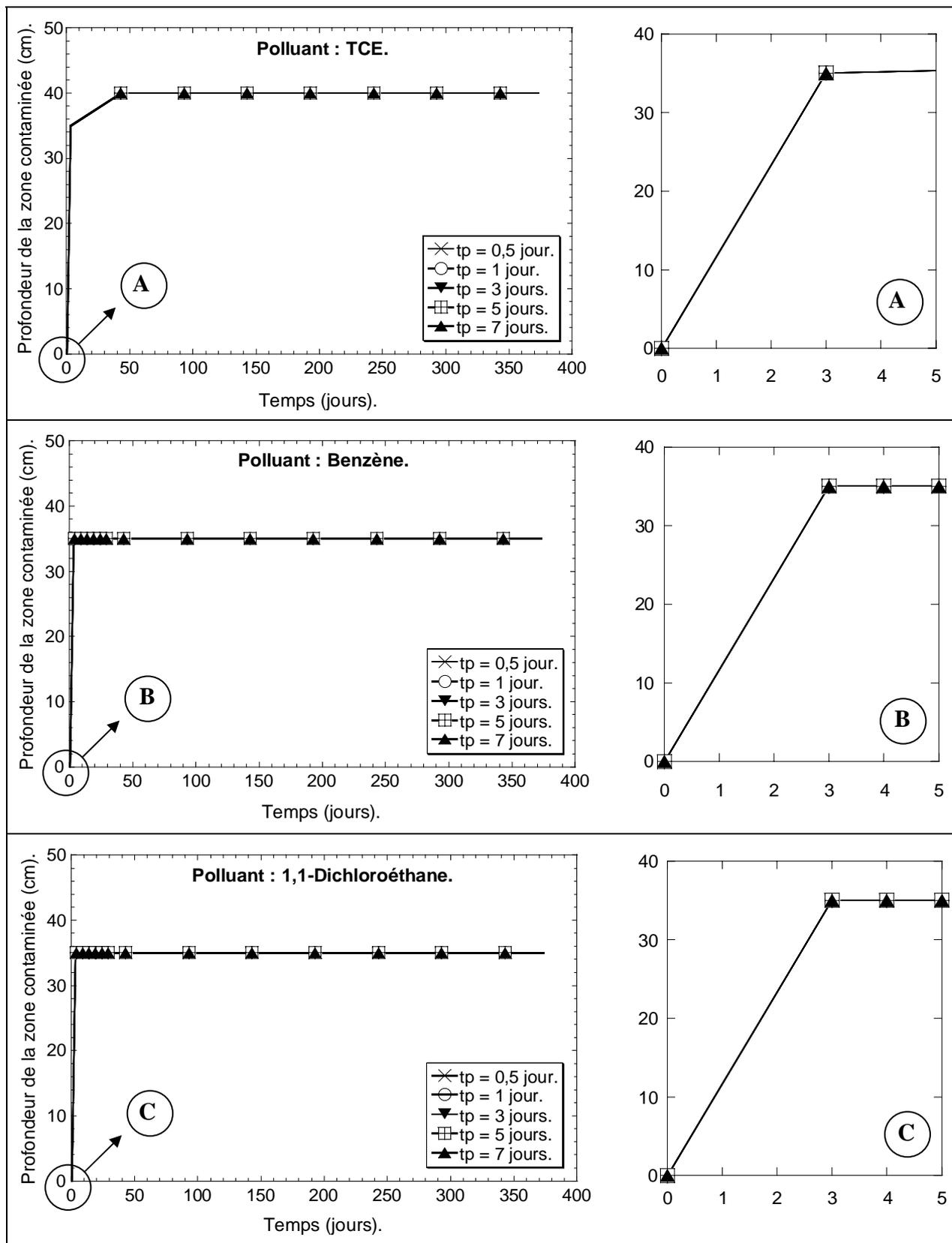


Figure A.37 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 3$ jours, une nappe à 0,5 m et différentes durées t_p de pluie avant le déversement.

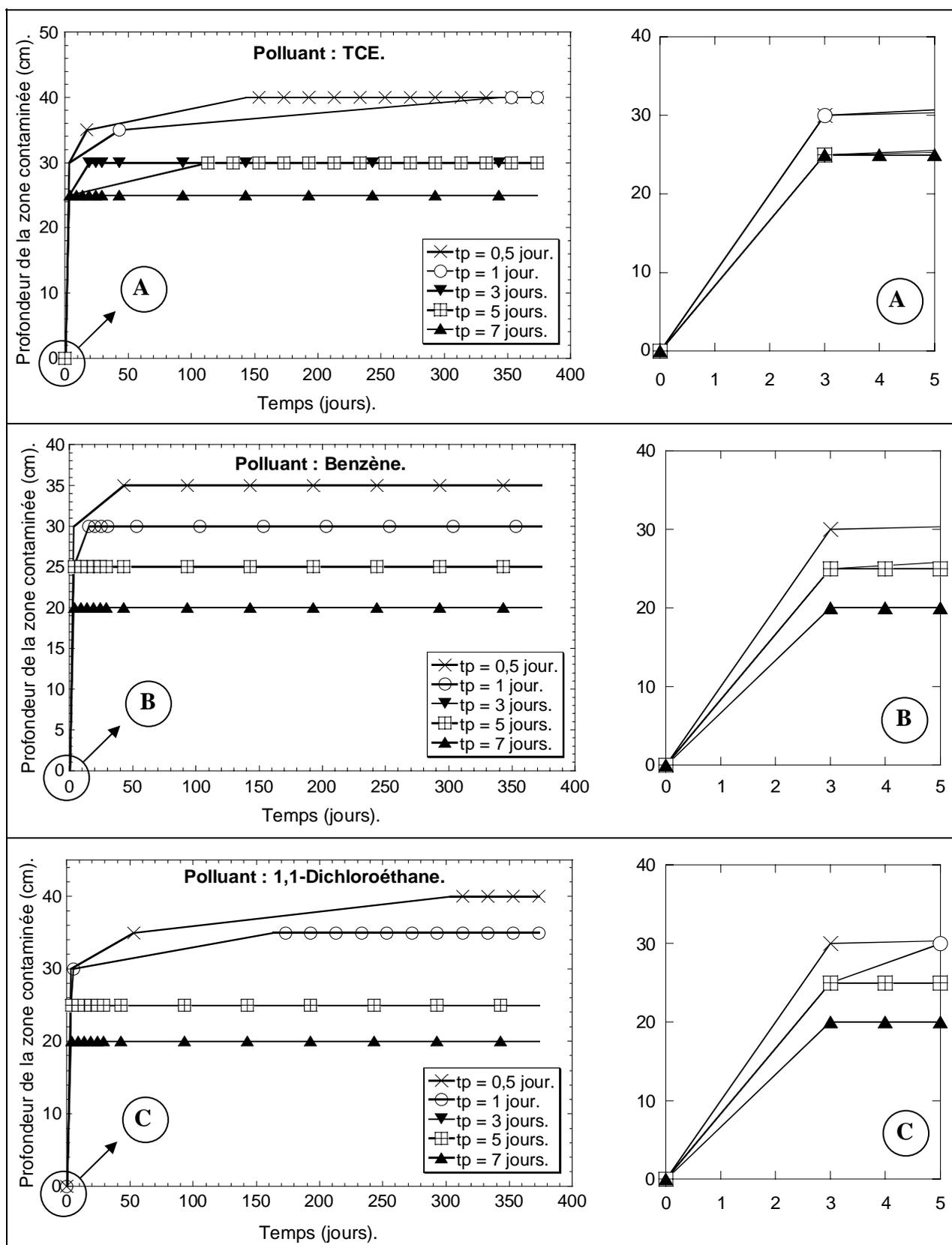


Figure A.38 : Front de pénétration des 3 polluants en fonction du temps pour $t_c = 3$ jours, une nappe à 3 m et différentes durées t_p de pluie avant le déversement

ANNEXE 6

Cycle de l'azote

Dans cette annexe, on présente les différentes formes de l'azote, le cycle de l'azote ainsi que les processus intervenant dans le cycle des nitrates.

I- Différents formes de l'azote

L'azote existe sous trois formes principales :

- Gazeuse, il constitue 78% de l'atmosphère ;
- Minérale, il peut être en liaison avec l'hydrogène pour former l'ammoniac, ou avec l'oxygène et donner les nitrites et nitrates (il s'agit respectivement d'azote ammoniacal, nitreux ou nitrique) ;
- Organique, il entre dans la constitution des protéines présentes dans tous les tissus vivants. L'azote est surtout employé à la synthèse des produits de base (ammoniac, acide nitrique, etc.) dans l'industrie d'engrais, des explosifs et des colorants.

II- Cycle de l'azote

Les apports azotés dans le sol sont principalement issus de l'épandage d'engrais minéraux. La fertilisation par les engrais minéraux est fonction du type de culture, du rendement souhaité et, dans une moindre mesure, de la localisation géographique.

L'utilisation de ces engrais peut également être fractionnée pour suivre le plus efficacement la croissance des plantes et ainsi optimiser les rendements. Cette pratique a l'avantage de minimiser les pertes en azote minéral par immobilisation ou par lessivage. Trois formes d'engrais sont utilisées : l'azote nitrique, l'azote ammoniacal et l'urée.

L'urée est très rapidement transformée en ammoniacale. L'azote ammoniacal en revanche doit être au préalable transformé en azote nitrique pour être absorbé par les plantes. L'azote nitrique a une action moins brutale et est progressivement absorbé par les plantes. Nous comprenons donc ici que l'utilisation massive d'engrais ne sera pas forcément source de rendement élevé. En effet, une quantité trop importante d'engrais nitrique par exemple provoquera inmanquablement des pertes car les plantes n'auront pas le pouvoir de tout absorber rapidement. L'azote que l'on trouve dans le sol peut être sous deux formes différentes : azote inorganique (azote ammoniacal, nitreux et nitrique) et azote organique (azote organique labile et azote organique stable).

En ce qui concerne ces deux formes d'azote organique, il est établi que l'azote labile est rapidement très vulnérable à l'activité enzymatique et que les matières organiques stables peuvent persister très longtemps dans le sol. La figure (A.39) nous donne une représentation du cycle de l'azote, sur lequel nous pouvons voir que les phases principales sont la minéralisation (transformation de l'azote organique en azote ammoniacal par ammonisation et nitrification), la transformation de l'azote minéral en azote organique (immobilisation) et la dénitrification. La plupart des transformations de l'azote dans le sol sont dues aux micro-organismes présents dans le sol. Les processus de minéralisation et d'immobilisation sont fortement influencés par les conditions environnementales (Stanford *et al.*, 1973). La température et l'humidité du sol seront en l'occurrence les principaux facteurs influants sur les cinétiques de transformations.

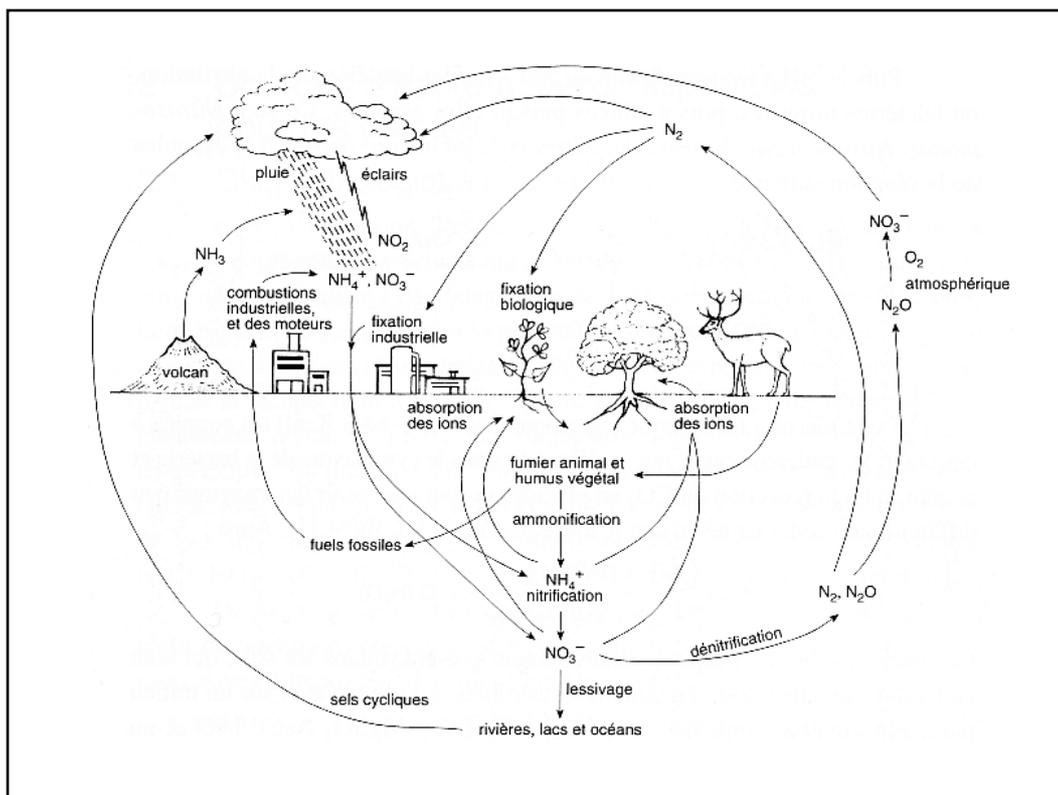


Figure A.39 : Schéma du cycle écologique de l'azote (Laval-Martin et Mazliak, 1995).

III- Présentation des processus intervenant dans le cycle des nitrates

Nous présentons ici les principaux processus du cycle de l'azote. Pour plus de détails, le lecteur peut consulter les thèses de Caubel (2001) et Maison (2000).

III.1- La minéralisation

Une partie de l'énergie nécessaire aux diverses transformations et dégradations survenant dans le sol provient du phénomène de minéralisation. En effet, lors de ce processus, les composés carbonés sont dégradés puis utilisés en tant que source d'énergie. Nous distinguons deux processus dans ce que nous notons génériquement la minéralisation : l'ammonification et la nitrification.

L'activité microbienne anaérobie (fréquente en milieu neutre ou alcalin) et la présence de moisissures sont les principaux facteurs de l'ammonification. La nitrification correspond à la transformation d'azote ammoniacal en azote nitrique.

L'ammoniaque est rapidement transformé en acide nitrique puis, par combinaison avec les bases du sol, notamment la chaux, produit des nitrates NO_3 . Nous voyons bien alors que les nitrites sont en fait un stade intermédiaire et sont rapidement oxydés en nitrates.

La nitrification n'est pas un processus très rapide (une à plusieurs semaines sont nécessaires). Cette réaction est fortement influencée par les conditions environnementales et notamment par l'acidité et la température.

Le rendement de la minéralisation des résidus végétaux dépend du rapport Carbone-Azote qui est caractéristique de la qualité des matériaux présents dans le sol. Lorsque ce rapport est élevé (>30) l'azote reste dans les micro-organismes qui dégradent le sol, alors que pour un rapport plus faible (<25), la libération de l'azote se produit plus rapidement. L'équilibre entre minéralisation et réorganisation se situe pour une valeur C/N de l'ordre de 25 (Muller et Mary, 1981).

L'hydrolyse de l'urée, l'application d'engrais contenant de l'ammonium et la minéralisation des formes organiques de l'azote (fumiers, humus...) sont les principaux vecteurs de la formation de l'ammonium. Ce composé, bien que soluble dans l'eau, est bien retenu dans les sols du fait du pouvoir adsorbant des particules d'argile. Le processus d'adsorption est équilibré et est réversible, ce qui constitue alors une source éventuelle d'ammonium. En sol limoneux par exemple, Bockman *et al.* (1990) notent qu'environ 20 Kg N.ha⁻¹ sont présents dans le sol au moment des récoltes céréalières.

III.2- L'immobilisation

Il s'agit ici d'un phénomène se produisant plus volontiers lors des périodes froides. L'azote minéral est alors transformé par certains microbes présents dans le sol en azote organique. Ceci se fait aux dépens des nitrates du sol. La présence de ces populations microbiennes sous-entend une dépense énergétique pour leur reproduction. Ceci ne peut donc s'effectuer qu'en présence de substances carbonées. L'immobilisation peut donc se produire en permanence lors de la période de croissance racinaire voire également lorsque les végétaux ont achevé leur croissance. Tout comme la minéralisation de l'azote, l'immobilisation se produit quasiment exclusivement dans la couche labourée (Remy et Hébert, 1977). Ils estiment à 20 le rapport entre les quantités dans les 20 premiers centimètres du sol et dans les couches inférieures du sol.

III.3- La dénitrification

La dénitrification est la réduction dissimilatrice de l'azote nitrique en azote gazeux (N₂ et N₂O), réalisée après la réduction séquentielle de différentes espèces (Firestone, 1982) :



C'est un processus respiratoire qui se produit essentiellement en milieu anaérobie, et qui produit de l'énergie. La réduction dissimilative du nitrate en ammonium n'est pas considérée au sens strict comme de la dénitrification. La dénitrification hétérotrophe est réalisée par des bactéries hétérotrophes, c'est-à-dire dont le carbone cellulaire est d'origine organique, par opposition aux bactéries autotrophes, dont le carbone cellulaire est d'origine minérale.

La dénitrification est très influencée par les conditions du milieu (Firestone, 1982) tels que la température, l'humidité, la teneur en matière organique du sol (Addy *et al.*, 1999), la disponibilité en oxygène (Smith et Tiedje, 1979), la morphologie du sol, le pH (Stanford *et al.*, 1975) ou encore l'activité des micro-organismes (Firestone, 1982) et des plantes. En ce qui concerne l'influence des plantes sur la dénitrification, nous notons qu'elles favorisent ce phénomène grâce à leur production de matériaux carbonés, ce qui contribue à accroître l'activité microbienne, donc la production d'énergie, notamment dans la zone racinaire, mais aussi à créer par cette même activité des zones anaérobies à forte teneur en eau. D'un autre côté, les plantes inhibent quelque peu la dénitrification par leur action évidente de séchage des sols (absorption d'eau) et par le fait qu'elles assurent la réduction des nitrates disponibles à l'adsorption d'azote minéral nécessaire à leur croissance.

L'humidité du sol a une forte influence sur le taux de diffusion de l'oxygène dans le sol, aussi, nous comprenons aisément le rôle primordial qu'elle joue sur la dénitrification. Le taux de diffusion de l'oxygène est par exemple 1000 fois plus élevé en sol sec qu'en sol saturé en eau.

III.4- L'absorption par les plantes et le lessivage

Les plantes prélèvent dans le sol des composés azotés (ammonium et nitrates) solubles. Les nitrates constituent la principale source azotée des plantes. L'équilibre entre ces deux formes azotées dépend de la plante en question, mais les nitrates restent toujours la principale source d'azote des plantes. Les besoins en azote sont spécifiques à chaque espèce de plantes et dépendent des conditions environnementales (climat, humidité) et du développement de la plante (Haynes, 1986b). De ce fait, les différents stades de la croissance de la plante, la densité des plantations ou encore la profondeur des racines auront des rôles très importants sur l'absorption d'azote par les plantes.

L'absorption des formes azotées par les plantes est calculée de manière classique par le modèle de Watts et Hanks (1978). Cette méthode nécessite au préalable l'estimation du potentiel d'absorption journalier.

L'azote qui est relevé dans les profils de sol se trouve sous deux types différents. L'azote des engrais se retrouve presque exclusivement dans la couche de surface, alors que l'azote du sol se situe plus volontiers dans la zone racinaire entière. Nous notons que l'azote du sol, qui provient du cycle de l'azote, et plus principalement de la minéralisation, est disponible pour les plantes tout au long de la période de croissance des plantes, contrairement à l'azote des engrais qui n'agit que sur une période bien spécifique. Machet *et al.* (1987) notent que 40 à 60% de l'azote absorbé par les plantes provient de l'azote du sol.

L'urée, les nitrates et l'ammonium se déplacent dans le sol sous l'effet des flux d'eau. L'urée, soluble dans l'eau tant qu'il n'a pas été hydrolysé, et les composés ammoniacaux, adsorbés sur les particules de sol, représentent de faibles quantités dans le lessivage des sols. Comme nous l'avons déjà mentionné, la forme azotée la plus mobile dans le sol est constituée par les nitrates. Bélamie *et al.* (1984) note que 95% de l'azote lessivé est constitué par les nitrates. Les déplacements de nitrates dans le sol sont fonctions des flux et donc sont fortement influencés par la morphologie du sol et les puits ou sources éventuels en eau (précipitation, irrigation, évapotranspiration...). Les mécanismes de transport des nitrates sont la convection, la diffusion et la dispersion mécanique (voir annexe 1). Dans les régions mobiles du sol (macropores), l'eau et les nitrates se déplacent autant par convection que par diffusion. Par contre, dans les régions immobiles du sol (micropores), Sardin *et al.* (1991) ont montré qu'alors le transport de l'eau et des nitrates s'effectue principalement par diffusion du fait des gradients de concentrations dans le sol. Nous notons, du point de vue du modélisateur, que dans ce cas, un modèle diffusif représentera correctement ces phénomènes. Pinheiro (1995) note que le lessivage est très variable d'une année à l'autre, ce que nous comprenons aisément du simple fait de la variation des conditions météorologiques.