

N° d'enregistrement  
au CNRS.

n° A0 12880

46 (1976) 127 a

**THÈSE DE DOCTORAT D'ÉTAT**  
**ÈS SCIENCES NATURELLES**

TH-NC9

Présentée

A L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE  
PARIS VI

par **M. Jean-Charles FONTES**

pour obtenir le grade de DOCTEUR ÈS SCIENCES

sujet de la Thèse :



**BIOTOPES DU MILIEU ET CYCLES DES**  
**ÉLÉMENTS NATURELS: QUELQUES ASPECTS**

soutenu le 11 Octobre 1976  
devant le jury composé de

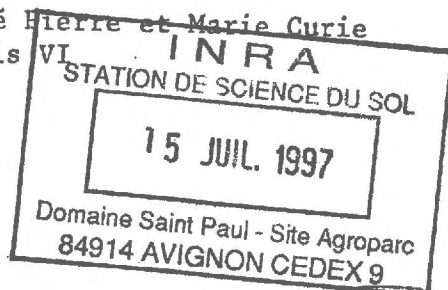
**MM. R. DARS**  
**H. FAURE**  
**R. LETOLLE**  
**G. MILLOT**  
**B.R. PAYNE**

THESE de DOCTORAT D'ETAT

ès Sciences Naturelles

présentée

à l'Université Pierre et Marie Curie  
Paris VI



par M. Jean-Charles FONTES

pour obtenir le grade de DOCTEUR ès SCIENCES

Sujet de la Thèse:

"ISOTOPES DU MILIEU ET CYCLES DES EAUX NATURELLES: QUELQUES ASPECTS"

soutenue le

devant le jury composé de :

MM. R. DARS  
H. FAURE  
R. LETOLLE  
G. MILLOT  
B.R. PAYNE





## A V A N T - P R O P O S

Tout au début de ce travail, on trouve un personnage qui jetait alors les jeunes chercheurs vers les voies nouvelles, un peu comme on relève d'instinctifs défis. Habile cependant à percevoir le progrès des idées et donc à canaliser ses intuitions, il souhaitait fortifier sa démarche de visionnaire essentiellement attiré vers les synthèses, par une approche quantitative des objets et des phénomènes de la Géologie. Ainsi entendait-il que, à travers mes recherches débutantes, un quelconque isotope lui apportât la preuve du caractère juvénile de certaines eaux d'Auvergne. D'eaux juvéniles point, et si la collaboration scientifique n'alla pas au-delà, Louis GLANGEAUD, Professeur honoraire à l'Université de Paris VI, reste à l'origine de l'entreprise, c'est-à-dire à l'essentiel.

Maintenant, au terme de cette étape, il y a la Commission qui discute le mémoire, on dit aussi le Jury. Il est fait d'hommes que leur science et leur soin de la profession ont rendu éminents, et aussi d'hommes plus jeunes qui le deviennent bien vite par leurs travaux et leurs fonctions. Ceux-ci m'ont fait la confiance, peut-être trop généreuse, que dicte l'amitié, ceux-là m'ont offert leur correction, forme la plus généreuse de l'affection.

Dans l'intervalle, il y a toutes les collaborations que j'ai pu rechercher, ou qui se sont proposées, avec des spécialistes de telle région ou de tel problème. Le travail en commun a été l'un des privilèges de mon entreprise, et les nombreuses traces que l'on en retrouvera dans les références furent autant d'ouvertures passionnantes vers d'autres domaines que la Géochimie, et bien souvent aussi le début de relations amicales.

Qu'il me soit permis, une fois, une seule, d'écorcher la pudeur de deux d'entre eux, parce qu'ils furent compagnons et témoins de mes premiers pas dans le "Laboratorio di Geologia Nucleare" de Pise, alors merveilleuse caverne magique où science, jeunesse et joie se conjuguèrent si bien que ces temps-là nous ont marqués tous trois.

L'un, solide, brun de poil, sûr de lui, et d'une extrême culture, est aussi la réplique de tant de brillants esprits toujours soucieux d'éblouir les autres afin de se rassurer eux-mêmes. Jamais, en 15 ans, je ne l'ai entendu avancer quoi que ce soit dont il ne fût sûr. Il est né de cette terre essentielle de Toscane par qui tout nous fut transmis ou donné.

L'autre vient du Wurtemberg, blond, le profil anguleux, le geste sec, mais aussi la vision immédiate et claire des situations. Il mène la recherche avec la décision et le succès d'un grand capitaine.

L'ironie des carrières a fait que ni l'un ni l'autre de ces chercheurs d'exception n'ont pu servir leur pays. Roberto GONFIANTINI effectue ses recherches dans une organisation internationale, Peter FRITZ est Professeur au Canada.

*Le plus souvent possible, cependant, deux à deux la plupart du temps, nous nous sommes retrouvés pour d'interminables et rafraîchissantes séances d'aggiornamento sur nos recherches et sur nous-mêmes.*

*Cependant, c'est au Laboratoire de Géologie Dynamique qu'ont été effectuées la quasi-totalité des mesures dont les résultats sont reportés dans le mémoire. Sur des machines conçues et, en grande part, réalisées par René LETOLLE lui-même, Annick FILLY et Jean-François SALIEGE ont travaillé des années durant. C'est à eux que je dois, que l'on doit, aussi ce mémoire.*

*Tant pour les problèmes abordés que pour la part analytique propre, il s'agit donc d'une oeuvre collective au sens le plus large du terme. On ne s'étonnera point qu'elle soit rédigée comme telle. Loin d'une forme de majesté, c'est d'un pluriel humble, en quelque sorte, que je vais donc user dans ce qui suit.*

## SOMMAIRE

pages

<u>INTRODUCTION</u>	1
CHAPITRE A - <u>LES ISOTOPES DANS LES EAUX NATURELLES.</u>	3
A-I - <u>DEUX VOIES DE TRACAGE.</u>	3
A-II - <u>ISOTOPES DU MILIEU : RAPPELS DE QUELQUES PRINCIPES.</u>	4
A-III - <u>LES CONDITIONS DU TRACAGE EN ISOTOPES DU MILIEU.</u>	9
A-III.1 - <u>Deux catégories fondamentales de traceurs :                   <u>traceurs internes et traceurs externes.</u></u>	9
A-III.2 - <u>Rappel des lois de variations de concentra-                   <u>tions en isotopes stables de l'oxygène et de                   l'hydrogène.</u></u>	10
A-III.2.1 - <i>Fractionnement isotopique lors des                           changements de phase.</i>	10
A-III.2.1.1 - <i>Traçage à la condensation.</i>	13
A-III.2.1.2 - <i>Traçage à l'évaporation.</i>	17
A-III.2.2 - <i>Réactions d'échange.</i>	22
A-III.2.3 - <i>Relations <math>^{18}\text{O}</math> - <math>^2\text{H}</math> dans les eaux                           naturelles.</i>	24
A-III.3 - <u>Les variations de concentrations en tritium,                   <u>isotope radioactif de l'hydrogène.</u></u>	26



A-III.3.1 - <i>Le tritium naturel.</i>	28
A-III.3.2 - <i>Le tritium artificiel.</i>	30
A-III.3.3 - <i>Tracage du milieu en tritium.</i>	33
A-III.4 - <u><i>Isotopes du carbone en solution.</i></u>	37
A-III.4.1 - <i>Production du <math>^{14}\text{C}</math> et conditions                   d'emploi en marqueur de temps.</i>	37
A-III.4.2 - <i>Pénétration du carbone dans les cycles                   hydrologiques, activité initiale du                   carbone dissous.</i>	42
A-III.4.3 - <i>Différents modèles d'estimation de                   l'activité initiale.</i>	44
A-III.4.4 - <i>Recours aux isotopes du carbone en                   hydrologie.</i>	48
A-III.5 - <u><i>Autres isotopes dissous utilisés en hydro-                   logie.</i></u>	51
A-III.5.1 - <i>Isotopes du soufre.</i>	51
<i>Variations naturelles et principes                   d'utilisation.</i>	51
<i>Acquis et perspectives.</i>	52
A-III.5.2 - <i>Isotopes de l'Azote.</i>	53
<i>Variations naturelles du rapport                   <math>^{15}\text{N}/^{14}\text{N}</math>.</i>	53
<i>Intérêt hydrologique.</i>	54
A-IV - <u><b>CONCLUSION.</b></u>	55
CHAPITRE B - <u>INVESTIGATION DES CONDITIONS DE TRACAGE DES EAUX                   NATURELLES EN ISOTOPES STABLES.</u>	56
B-I - <u>LES EPISODES DE PRECIPITATION.</u>	56
B-I.1 - <u><i>Précipitations isolées en différentes                   stations.</i></u>	59

B-I.1.1 - <i>Région parisienne.</i>	59
B-I.1.2 - <i>Sahara nord-occidental.</i>	65
B-I.1.3 - <i>Afrique intertropicale.</i>	67
B-I.2 - <u><i>Gradients isotopiques en altitude.</i></u>	69
B-I.2.1 - <i>Le versant au Sud du Léman.</i>	69
B-I.2.2 - <i>Une coupe dans l'Apennin romain.</i>	69
B-I.2.3 - <i>Les pentes du Mont Cameroun.</i>	71
B-I.3 - <u><i>Variations saisonnières.</i></u>	73
B-I.4 - <u><i>Conclusion à l'étude des précipitations.</i></u>	74
B-II - <u>L'EVAPORATION.</u>	75
B-II.1 - <u><i>Nomenclature.</i></u>	75
B-II.2 - <u><i>Equations de bilan.</i></u>	77
B-II.2.1 - <i>Bilans simples : pas d'échange avec la</i>	77
<i>vapeur atmosphérique.</i>	
Bassin à réduction de volume.	
Bassin à niveau constant.	
B-II.2.2 - <i>Bilans complexes : échange isotopique</i>	80
<i>avec la vapeur atmosphérique.</i>	
Bassin à réduction de volume.	
Pas de fractionnement à la conden-	
sation.	
Condensation avec fractionnement.	
Bassin à niveau constant.	
Pas de fractionnement à la conden-	
sation.	
Fractionnement à la condensation.	
B-II.2.3 - <i>Influence des sels dissous.</i>	84
B.II.2.3.1 - <i>Solutions saturées.</i>	84
Bassin à réduction de volume.	
Pas de fractionnement à la conden-	
sation.	
Fractionnement à la condensation.	

Bassin à niveau constant. Pas de fractionnement à la condensation. Fractionnement à la condensation.	
B.II.2.3.2 - Solutions non saturées.	85
B-II.2.4 - <i>Domaines de validité des modèles.</i>	86
B-II.3 - <u>Exemples d'applications.</u>	88
B-II.3.1 - <i>Bassin expérimental à niveau maintenu.</i>	88
B-II.3.2 - <i>Lac Léman.</i>	89
B-II.3.3 - <i>Bassin saharien de la vallée de la Saoura.</i>	90
B-II.3.4 - <i>Système du lac Tchad.</i>	96
B-II.3.5 - <i>Saumures.</i>	99
B.II.3.5.1 - <i>Marais salants d'Aigues-Mortes.</i>	99
B.II.3.5.2 - <i>Sebha el Melah (Sahara nord-occidental).</i>	102
B-II.3.6 - <i>Eaux courantes et étendues stagnantes.</i>	104
B-II.3.7 - <i>Eaux des végétaux.</i>	104
B-II.3.8 - <i>Eaux des sols.</i>	106
B-II.4 - <u>Conclusion à l'étude de l'évaporation.</u>	107
CHAPITRE C - <u>THEMES ET THEATRES D'APPLICATIONS HYDROLOGIQUES ET HYDROGEOLOGIQUES.</u>	109
C-I - <u>APPROCHE DES AIRES DE RECHARGE.</u>	109
C-I.1 - <u>La nappe des sources thermominérales d'Evian.</u>	109
Le problème.	
Le dossier isotopique.	
L'interprétation.	
La discussion.	



C-I.2 - <u>Les systèmes thermominéraux du Latium.</u>	113
Le problème Le document isotopique Interprétation Discussion.	
C-I.3 - <u>Origine des nappes de la plaine de Venise.</u>	117
Les faits Interprétation.	
C-II - <u>MISE EN EVIDENCE DE MELANGES.</u>	121
C-II.1 - <u>La Source d'Acquasanta.</u>	121
Le document isotopique L'interprétation.	
C-II.2 - <u>Les rapports entre la nappe du Continental intercalaire et la nappe du Complexe ter- minal dans l'Est saharien.</u>	125
Le problème Les données isotopiques Interprétation	
C-III - <u>LE PROBLEME DES RECHARGES PALEOCLIMATIQUES.</u>	127
C-III.1 - <u>Les nappes du Grand Erg occidental, de la Hamada du Guir et des Monts d'Ougarta.</u>	128
C-III.2 - <u>Le paléosystème du lac Abhè.</u>	130
Le cadre Les données isotopiques et géochi- miques Interprétation.	
C-IV - <u>RELATIONS EAUX DE SURFACE-NAPPES.</u>	135
C-IV.1 - <u>La nappe salée de la Sebkha el Melah (Nord-Ouest saharien).</u>	135
Le problème Les indications isotopiques Interprétation.	

C-IV.2 - <u>Les nappes phréatiques du lac Tchad.</u>	137
C-IV.2.1 - <i>Le problème.</i>	137
C-IV.2.2.- <i>Le dossier isotopique préliminaire.</i>	138
Les faits	
Hypothèse de travail	
C-IV.2.3 - <i>L'étude isotopique systématique.</i>	140
Les programmes	
Les résultats	
Interprétation	
C-IV.2.4 - <i>Quelques mots sur la régulation du lac Tchad.</i>	142
C-IV.3 - <u>Le rôle des dunes à l'infiltration.</u>	145
C-IV.3.1 - <i>Le problème.</i>	145
C-IV.3.2 - <i>Les grands ergs sahariens.</i>	147
Les données	
Interprétation	
C-IV.3.3 - <i>L'erg du Kanem.</i>	147
Les données	
Interprétation	
C-IV.4 - <u>Translation verticale et oblique de l'eau à travers les sols.</u>	149
Le problème	
Les données	
L'interprétation	
C-IV.5 - <u>Les réponses des aquifères fissurés.</u>	152
La question	
Le système karstique expérimental du Baget	
Situation	
Données	
Interprétation	
Discussion et plaidoyer pour une extension des enquêtes	

C-V	- <u>LES CIRCUITS GEOTHERMIQUES.</u>	159
C-V.1	- <u>La zone périvolcanique du Latium.</u>	159
	Situation	
	Données isotopiques	
	Interprétation	
C-V.2	- <u>Le système du lac Asal.</u>	162
	Aperçu hydrogéologique	
	Données isotopiques	
	Interprétation	
C-V.3	- <u>Conclusion.</u>	164
C-VI	- <u>CONCLUSIONS.</u>	165
CHAPITRE D	- <u>"AGE" DES EAUX.</u>	166
D-I	- <u>PRECAUTIONS SUR LE SENS A DONNER AUX MOTS.</u>	166
D-II	- <u>LES GRANDEURS IMPLIQUEES DANS LE CALCUL DES</u> <u>"TEMPS-<sup>14</sup>C".</u>	167
D-III	- <u>LES HYPOTHESES DE BASE D'UN NOUVEAU MODELE</u> <u>D'ESTIMATION DE L'ACTIVITE INITIALE.</u>	170
D-III.1.	<u>Le traitement des données chimiques.</u>	171
D-III.1.1	- <i>Bilan du carbone minéral.</i>	171
D-III.1.2	- <i>Limite de l'estimation de la teneur</i> <i>en carbone "mort".</i>	172
D-III.2	- <u>L'approche isotopique en termes de</u> <u>mélanges.</u>	173
D-III.2.1	- <i>Systèmes ouverts, systèmes fermés.</i>	173
D-III.2.2	- <i>Equation d'échanges partiels.</i>	174
D-III.2.3	- <i>Transcription en termes d'activité</i> <i><sup>14</sup>C.</i>	176



D-IV - <u>LA PLAINE DE VENISE.</u>	178
D-IV.1 - <u>Le problème.</u>	178
D-IV.2 - <u>Résultats.</u>	178
D-IV.3 - <u>Interprétation.</u>	178
D-V - <u>LE SYSTEME D'EVIAN ET SES ANNEXES.</u>	183
D-V.1 - <u>Le problème.</u>	183
D-V.2 - <u>Les résultats.</u>	186
D-V.2.1 - <i>Ages radiométriques en fonction des                   différents modèles.</i>	186
Vogel	
Tamers	
Pearson	
Mook	
Fontes et Garnier	
D-V.2.2 - <i>Essai d'interprétation en termes de                   mélanges.</i>	188
D-V.2.3 - <i>Une conclusion critique.</i>	191
D-VI - <u>LA NAPPE DES CALCAIRES CARBONIFERES DU NORD DE           LA FRANCE.</u>	194
D-VI.1 - <u>La situation du gisement.</u>	194
D-VI.2 - <u>Résultats.</u>	194
D-VI.3 - <u>Interprétation des résultats bruts.</u>	198
D-VI.4 - <u>Les modèles de détermination de l'activité.               initiale.</u>	198
D-VI.5 - <u>Vitesses radiométriques.</u>	200
D-VII - <u>LES NAPPES LIBRES DU NORD-OUEST SAHARIEN.</u>	201
D-VII.1 - <u>Le problème.</u>	201

D-VII.2 - <u>Les données du carbone 14.</u>	202
D-VII.3 - <u>Interprétation.</u>	203
D-VII.4 - <u>Discussion.</u>	204
D-VIII - <u>REFLEXIONS SUR LES PERSPECTIVES D'APPLICATIONS DU <sup>14</sup>C AU DATAGE DES EAUX SOUTERRAINES.</u>	205
REFERENCES	208

## I N T R O D U C T I O N

L'ambition première du mémoire est de proposer un lien entre des travaux dispersés dans la littérature, pour en faciliter ainsi la lecture critique. Le premier chapitre devrait en cela fournir les clés nécessaires à la compréhension des fondements de l'hydrologie isotopique. On n'y rencontrera rien d'inédit et ce que l'on pourrait considérer comme notre contribution s'y trouve volontairement limité au minimum pour être réservé aux chapitres suivants et ménager en la bonne forme la notion d'oeuvre originale.

Le deuxième chapitre rassemble une collection de données à incidences théoriques sur le traçage, c'est-à-dire les conditions dans lesquelles les eaux naturelles acquièrent leurs propriétés isotopiques. C'est en somme notre apport à la méthode elle-même. Les conséquences pratiques en sont cependant importantes lorsque les équations permettent d'accéder à des paramètres hydrométéorologiques. Les traitements proposés dans cette partie ne sont point nécessaires à la discussion des exemples qui suivent.

Le troisième chapitre est au contraire une illustration des possibilités d'applications de la technique des isotopes du milieu, à l'hydrologie de surface et surtout à l'hydraulique souterraine. Sous la forme de l'exposé d'une succession de thèmes (aires de recharge, mélanges, patrimoines paléoclimatiques, relations surfaces-nappes, translation à travers les sols, comportement des karsts, circuits géothermiques), on y trouvera en quelque sorte une adresse qui se souhaiterait convaincante à l'égard des praticiens et un appel à la discussion auprès des collègues.

Dans la dernière partie, nous avons voulu insister sur les directions que prennent actuellement les recherches dans un domaine crucial, celui de "l'âge" des eaux souterraines. Là, plus que dans tout autre secteur d'application, les résultats et leurs



interprétations possibles requièrent attention car, en particulier dans le cas des nappes captives, les données isotopiques ne peuvent être étayées ou éprouvées par les arguments hydrologiques conventionnels. Bien entendu, c'est cette partie qui contient le plus d'inconnues et donc le plus de promesses au plan des explorations futures qui devront plus encore marier les arguments venus de la chimie à l'apport des isotopes du milieu.

Ajoutons, mais cela ira de soi, que les résultats ne sauraient être discutés, et surtout complètement exploités, qu'à l'issue d'un examen composé de toutes les données disponibles, avec référence constante et attentive aux enseignements peu quantifiables du terrain. C'est par intention que nous manquons à cette règle, afin d'isoler l'apport propre de nos techniques et permettre d'en juger plus facilement. A cette fin, les discussions restent, autant qu'il est possible, limitées aux seuls arguments isotopiques.

## A - LES ISOTOPES DANS LES EAUX NATURELLES

### I - DEUX VOIES DE TRACAGE.

Les fondements de la technique du traçage en Hydrologie sont simples : repérage, et le plus souvent mesure des teneurs en composés chimiques, en substances colorées, en molécules isotopiques stables et radioactives, ou même en produits solides figurés, présents en un point du cycle hydrologique placé sous étude.

Le traçage artificiel consiste à introduire des substances déterminées dans le milieu où elles étaient absentes ou très faiblement représentées. Le traçage naturel se limite à l'examen des teneurs présentes dans le milieu en dehors de toute opération d'ensemencement.

Le traçage artificiel n'est point commenté ici. Soulignons simplement que des groupes spécialisés, comme celui du Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble, l'équipe de l'Institut des Mines de Cracovie, ont largement contribué à définir les domaines d'emploi et les lois d'exploitation des informations livrées par les traceurs artificiels en Hydrologie.

On retiendra simplement ici que certains facteurs intrinsèques (coût, niveau de détection, maîtrise simultanée de l'injection et du rejet) rendent l'usage des traceurs artificiels particulièrement adapté aux phénomènes hydrologiques à pas de temps brefs ou à mailles spatiales courtes. Bien souvent, l'efficacité du traceur artificiel s'impose élégamment dans les études d'eaux de surface, et de circulations souterraines rapides (karsts ou roches largement fissurées, nappes libres parfois).

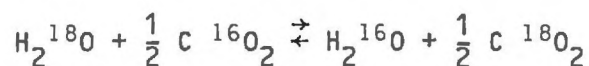
Le traçage naturel, ou traçage du milieu si l'on suit les recommandations de la Décennie hydrologique de l'UNESCO, recouvre théoriquement toutes les approches de type hydrochimique. Les avantages, qu'indique la méthodologie, résident essentiellement

dans la possibilité de s'adresser à un milieu quelconque, sans encourir de limitation imputable aux dimensions ou aux durées des objets d'étude. Autre particularité importante et d'intérêt : les traceurs du milieu sont généralement en régime permanent en chaque point de leurs cycles, y compris dans les fluctuations de leur teneur. Parmi ces marqueurs du milieu une place spéciale est accordée aux traceurs isotopiques du milieu (Environmental isotopes de la littérature anglo-saxonne).

## II - ISOTOPES DU MILIEU : RAPPELS DE QUELQUES PRINCIPES.

Les isotopes du milieu obéissent à des lois de répartition identiques à celles qui régissent les réactions chimiques : lois d'action de masse appliquées aux activités ou aux fugacités des molécules isotopiques. On ajoutera cependant une spécificité thermodynamique des isotopes. Ils peuvent s'échanger entre deux composés ou deux phases comportant le même élément sans qu'aucune réaction, autre qu'isotopique, ne s'opère d'une phase à l'autre, d'un composé à l'autre.

Par exemple, les réactions isotopiques suivantes sont, globalement, la règle sans qu'intervienne d'autre transfert de masse qu'un échange, très limité au demeurant<sup>(1)</sup>, des différentes espèces isotopiques :




---

(1) Dans la gamme des températures biologiques, les échanges isotopiques engendrent des variations de teneur qui sauf exception pour les composés hydrogénés, n'excèdent pas quelques pour cent relatifs (parts de différences relatives du rapport isotopique).

Un autre caractère distinctif des isotopes est, celui-là, évident : les dispositifs de mesures ou de détection sont nécessairement différents des techniques chimiques ordinaires puisque, par définition, les isotopes ne répondent pas aux critères de distinction chimiques. On mesurera les très légères différences de masses dans le cas des isotopes stables (spectrométrie de masse), on enregistrera l'émission radioactive caractéristique (spectrométrie alpha ou gamma) ou la radioactivité totale (comptage bêta) dans le cas des noyaux radioactifs.

Les isotopes stables font le plus souvent l'objet de mesures différentielles car leurs variations relatives sont suffisamment riches d'informations. On écrit alors, à l'aide de la notation très générale delta ( $\delta$ ) :

$$\delta = \frac{R \text{ (échantillon)}}{R \text{ (étalon)}} - 1$$

avec  $R$  = rapport isotopique  $\approx$  concentration de l'espèce isotopique rare.

Soit, par exemple :

$$R = \frac{^{18}\text{O}}{^{16}\text{O}} \approx \frac{^{18}\text{O}}{^{16}\text{O} + ^{18}\text{O}}$$

Dans le cas des eaux, l'étalon est réputé représenter la composition isotopique moyenne des eaux océaniques : "Standard Mean Ocean Water" : SMOW (Craig, 1961 a). C'est un étalon logique et naturel puisque tous les cycles hydrologiques prennent leur source et font finalement retour à l'océan qui, à lui seul, représente 97 à 98 % de l'eau de l'hydrosphère.

Dans la pratique il est commode de traiter des chiffres simples et  $\delta$  s'exprime en parts pour mille :

$$\delta = \left[ \frac{^{18}\text{O}/^{16}\text{O} \text{ (éch.)}}{^{18}\text{O}/^{16}\text{O} \text{ (étalon)}} - 1 \right] \cdot 1\,000$$



Selon les rapports isotopiques envisagés, l'incertitude sur  $\delta$  s'inscrit généralement entre  $\pm 0,05$  et  $\pm 0,3 \delta$  (ou ‰), lorsqu'elle est définie comme l'écart quadratique moyen sur une population suffisante de mesures.

Si l'on veut bien considérer, par exemple, que l'oxygène 18 qui dans les eaux est représenté en moyenne à raison de 2 atomes pour 1 000 atomes d'oxygène 16, se mesure relativement à environ  $0,1 \delta$ , cela signifie que le spectromètre de masse autorise une détection meilleure que  $10^{-6}$ . Rapportée à la plage des variations naturelles des teneurs en oxygène 18 (environ 100 ‰) c'est en définitive un traceur dont la sensibilité relative est proche de  $10^{-9}$ . C'est encore 1 000 à 10 000 fois moins que les meilleurs traceurs artificiels mais plusieurs ordres de grandeur au-dessus de la sensibilité des analyses chimiques d'éléments majeurs et d'oligoéléments. Il en va sensiblement de même pour les autres isotopes stables utilisés en hydrologie (tableau I).

Dans le cas des noyaux radioactifs, les sensibilités sont multipliées par plusieurs ordres de grandeur. Il est possible que le tritium, dont la production naturelle, équilibrée par la décroissance, conduit à une teneur de l'ordre de 1 atome  $^3\text{H}$  pour  $10^{17}$  atomes de  $^1\text{H}$ , n'eût pas été découvert s'il n'avait été émetteur bêta.

Aussi bien le carbone 14 que le tritium ne doivent pas leur présence dans le milieu au seul impact de la composante neutronique du rayonnement cosmique sur les noyaux d'azote de l'air. Ils ont été également injectés en grande quantité dans la stratosphère lors des essais thermonucléaires et nucléaires aériens. Leur concentration a donc varié largement au cours de ces vingt dernières années, avec un maximum lors des essais records des années 1963-1964 et une décroissance bien marquée depuis que la plupart des Nations ont renoncé aux essais aériens.

Elément et isotopes banal	Isotopes rares utilisés	Fréquence moyenne isotopes rares ppm	Formes étudiées	Domaine de variation %.
Hydrogène $^1\text{H}$	Deuterium : $^2\text{H}$ Tritium : $^3\text{H}^*$	156 $10^{-10}$	eau, hydrogène hydrocarbures	500 $10^{-15}$ à $10^{-11}$
Oxygène $^{16}\text{O}$	Oxygène 18: $^{18}\text{O}$	2000	eau, anions oxy- génés, $\text{CO}_2$	100
Carbone $^{12}\text{C}$	Carbone 13: $^{13}\text{C}$ Carbone 14: $^{14}\text{C}^*$	$1,11 \cdot 10^2$ $10^{-6}$	carbonates, $\text{CO}_2$ , hydrocarbures - d° -	80 $10^{-7}$ à $10^{-9}$
Azote $^{14}\text{N}$	Azote 15 : $^{15}\text{N}$	3660	azote, nitrates, sels ammoniacaux	80 (?)
Soufre $^{32}\text{S}$	Soufre 34 : $^{34}\text{S}$	$4,22 \cdot 10^4$	soufre, sulfates, soufre réduit	100

Tableau I - *Isotopes du milieu adaptés aux études hydrologiques*

$^3\text{H}^*$ ,  $^{14}\text{C}^*$  noyaux radioactifs.

Les teneurs en tritium se repèrent en unités tritium (1 UT correspondant à 1 atome  $^3\text{H}$  pour  $10^{18}$  atomes  $^1\text{H}$ ). Les activités en  $^{14}\text{C}$  se définissent par rapport à la teneur dite "moderne". La teneur "moderne" ou "carbone moderne" est censée représenter l'activité du  $\text{CO}_2$  de l'atmosphère avant la contamination nucléaire d'une part et avant la pollution par les résidus de combustion de l'ère industrielle (effet Suess) d'autre part. Le premier type de pollution apporte un excès de carbone 14, le second type, qui fait intervenir de très vieux carbones, conduit à une dilution du  $^{14}\text{C}$  de l'atmosphère. Par convention, on adopte l'année 1950 comme une date de référence où ces deux effets se sont équilibrés. L'activité en  $^{14}\text{C}$  sera repérée en pour cent de carbone moderne, l'activité de 100 % étant celle du  $\text{CO}_2$  de l'atmosphère en 1950 (et avant le début de l'ère industrielle), soit la première moitié du XIXe siècle).

Il faut souligner que les incertitudes sur les mesures de radioactivité sont fonction croissante de la racine carrée de l'activité enregistrée et que les incertitudes relatives diminuent donc lorsque l'activité augmente.

Il est commode de caractériser les éléments radioactifs par leur constante de désintégration radioactive, qui suffit à définir la décroissance, en désignant la proportion de noyaux actifs en désintégration à chaque instant au sein d'une masse active considérée comme un système clos (réservoir).

Dans la pratique des études, on a recours le plus souvent à la notion de période  $\tau$  qui contient exactement la même information avec :

$$\tau = \frac{\ln 2}{\gamma}$$

et qui repère le temps au bout duquel la radioactivité a épuisé la moitié du réservoir en noyaux actifs initiaux au cours du phénomène, univoque et exponentiel avec le temps, de décroissance radioactive.



Il est généralement vain de chercher à mesurer les activités après 8 à 10 périodes de décroissance. Les périodes respectives conditionneront l'usage des traceurs du milieu radioactif, de la même façon qu'elles limitent l'emploi des traceurs radioactifs artificiels ; Le tritium ( $\tau \approx 12.3$  ans) verra son emploi limité aux cycles hydrologiques relativement courts. Le carbone 14 ( $\tau \approx 5730$  ans) est intéressant pour l'examen des cycles longs, par exemple pour les nappes captives.

Dans son ensemble, la méthode du traçage implique une comparaison entre les entrées et les sorties au sein d'un système à étudier. La proposition est assez simple dans le cas du traçage artificiel. Pour ce qui regarde les isotopes des eaux naturelles, il est nécessaire de connaître ou d'établir les lois de variations de teneurs en isotopes du milieu dans les précipitations et les eaux de surface et de sub-surface.

### III - LES CONDITIONS DU TRACAGE EN ISOTOPES DU MILIEU.

#### III.1. - *Deux catégories fondamentales de traceurs : traceurs internes et traceurs externes.*

Il est aisé d'admettre que le problème essentiel du traçage réside sinon dans l'identité du moins dans l'identification de comportement entre le traceur et son vecteur, l'eau. Les multiples réactions possibles, et bien souvent déjà recensées, au sein d'un milieu hétérogène, comme par exemple celui d'un aquifère (ad ou absorption, diffusion moléculaire et ionique, diffusion turbulente, réactions entre les sphères d'hydratation et le substrat, fractionnements ioniques au cours des effets d'ultrafiltration, échanges de base alcalins-alcalinoterreux, etc...) incitent à la prudence et souvent à la suspicion. Cependant on peut considérer de façon très schématique que les effets susceptibles d'introduire des variations de comportement entre l'eau et la substance traçante se résument à deux causes :



- différence de dimension ;
- différences d'énergie potentielle disponibles aux interfaces eau-milieu, traceur-milieu, eau-traceur.

Les substances qui offrent la plus grande probabilité de se comporter de façon proche de celle de l'eau dans un milieu déterminé sont celles qui ont les dimensions et les densités d'électrons périphériques les plus voisines de celles de la molécule  $H_2O$ . Ceci nous impose d'introduire au sein de l'ensemble des traceurs une classe privilégiée : les espèces moléculaires de l'eau elle-même : soit en se bornant aux trois combinaisons qui présentent un intérêt pratique parmi toutes celles qu'offrent  $^{16}O$ ,  $^{17}O$ ,  $^{18}O$ ,  $^1H$ ,  $^2H$ ,  $^3H$  :

$^1H_2 \ ^{18}O$	:	Oxygène 18	] traceurs intimes
$^1H^2H \ ^{16}O$	:	Deutérium	
$^1H^3H \ ^{16}O$	:	Tritium	

La molécule d'eau est tracée de l'intérieur, dans l'intimité de son noyau, c'est le traçage le plus fin et le plus conforme à l'objet tracé qui puisse à l'heure actuelle se concevoir.

Toutes les autres substances traçantes correspondent à un traçage externe aux édifices moléculaires ou ioniques et à leur cortège électronique.

Les causes de variations de teneur en traceurs intimes sont d'abord les lois générales de la physique de l'eau appliquée aux espèces isotopiques. Les traceurs externes verront leurs conditions d'entrée dans un système hydrologique conditionnées par les facteurs locaux.

III.2. - Rappel des lois de variations des concentrations en isotopes stables de l'oxygène et de l'hydrogène.

III.2.1. - Fractionnement isotopique lors des changements de phase.

Les diverses molécules isotopiques ont des tensions de vapeur saturantes qui diffèrent très légèrement. Cela justifie l'apparition d'un fractionnement isotopique lors d'un changement partiel de phase par condensation ou vaporisation. De la même façon, les énergies libres de formation des molécules isotopiques solides et liquides étant différentes, il est normal d'attendre un autre fractionnement isotopique au passage partiel phase liquide-phase solide.

Ces fractionnements, prévus par le calcul théorique (UREY 1947, BIGELEISEN, 1965), ont été expérimentalement reproduits (BOTTINGA et CRAIG, 1969 ; MERLIVAT et NIEF, 1967 ; O'NEIL, 1968) ainsi que leur dépendance vis-à-vis de la température.

D'une façon générale dans le domaine des températures des eaux de surface et de subsurface le fractionnement isotopique décroît lorsque la température augmente. Par exemple pour l'oxygène 18, BOTTINGA et CRAIG (1969) proposent pour le passage liquide-vapeur l'équation empirique :

$$1000 \ln \alpha^{18O} = 2,644 - 3,206 \times 10^3/T + 1,534 \times 10^6/T^2$$

dans laquelle T est la température en Kelvin et  $\alpha^{18O}$  est le facteur de fractionnement :

$$\alpha^{18O} = \frac{(^{18O}/^{16O}) \text{ eau liquide}}{(^{18O}/^{16O}) \text{ eau vapeur}}$$

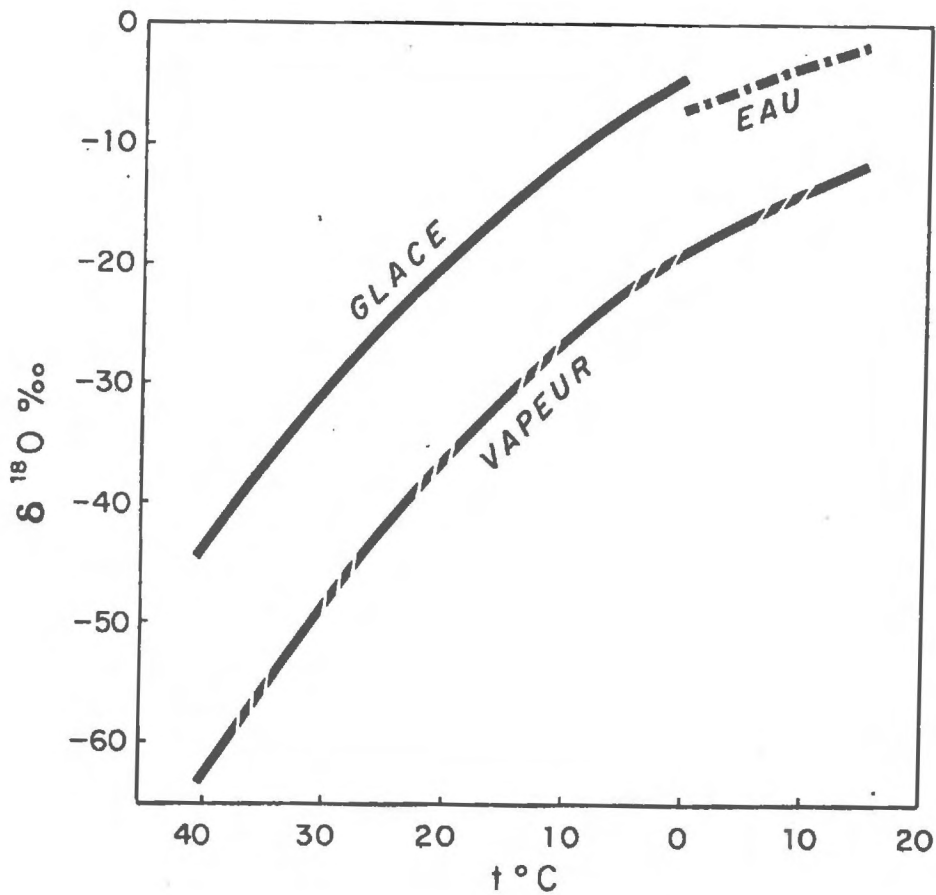


Figure A-1. Fractionnement isotopique.

Fractionnement isotopique de l'oxygène en fonction de la température entre l'eau liquide et la vapeur au-dessus de zéro°C et entre l'eau solide et la vapeur au-dessous de zéro°C. D'après GONFIANTINI (1971).

Dans la pratique  $\alpha$  est toujours peu différent de 1 et l'expression  $\ln \alpha$  est peu différente de  $\alpha - 1$ . Elle traduit l'enrichissement (ou l'appauvrissement) isotopique de l'une des phases par rapport à l'autre. Mais l'important n'est point tellement que l'enrichissement isotopique qui sépare le liquide de la vapeur qui s'en échappe (à saturation) soit plus élevé à basse température. L'important est que, dans le domaine des températures de l'hydrologie, cet enrichissement soit univoque. La vapeur est toujours appauvrie en isotopes lourds par rapport au liquide qui lui a donné naissance. *A contrario*, le condensat est toujours enrichi en isotopes lourds au détriment de la phase vapeur (ou liquide) d'origine (figure A.1.).

### III.2.2. - Traçage à la condensation.

Tout épisode de précipitation appauvrit le réservoir de vapeur en isotopes lourds. Par la suite, cette masse de vapeur ne donnera lieu à de nouveaux stades de condensation que si la température s'abaisse. Le réservoir subit alors un appauvrissement supplémentaire tandis que la nouvelle phase condensée, qui naît d'une réserve d'isotopes lourds déjà amoindrie, sera elle-même moins riche en  $^{18}\text{O}$  et  $^2\text{H}$  que lors de l'épisode précédent. Et ainsi de suite. On conçoit que la température de condensation et la composition isotopique des eaux météoriques soient liées. Là apparaît le principe du traçage naturel des précipitations. En effet, les profils thermiques de l'atmosphère sont généralement tels que l'on peut établir une relation de simple proportionnalité entre la température de condensation à la base du nuage et la température au sol. Bien entendu cela n'est vérifié de façon satisfaisante qu'à l'échelle de moyennes c'est-à-dire en émoissant les effets des anomalies météorologiques qui accompagnent parfois les épisodes de précipitations (inversion de température, développement de cellules de circulations convectives, occlusion de front, etc...).



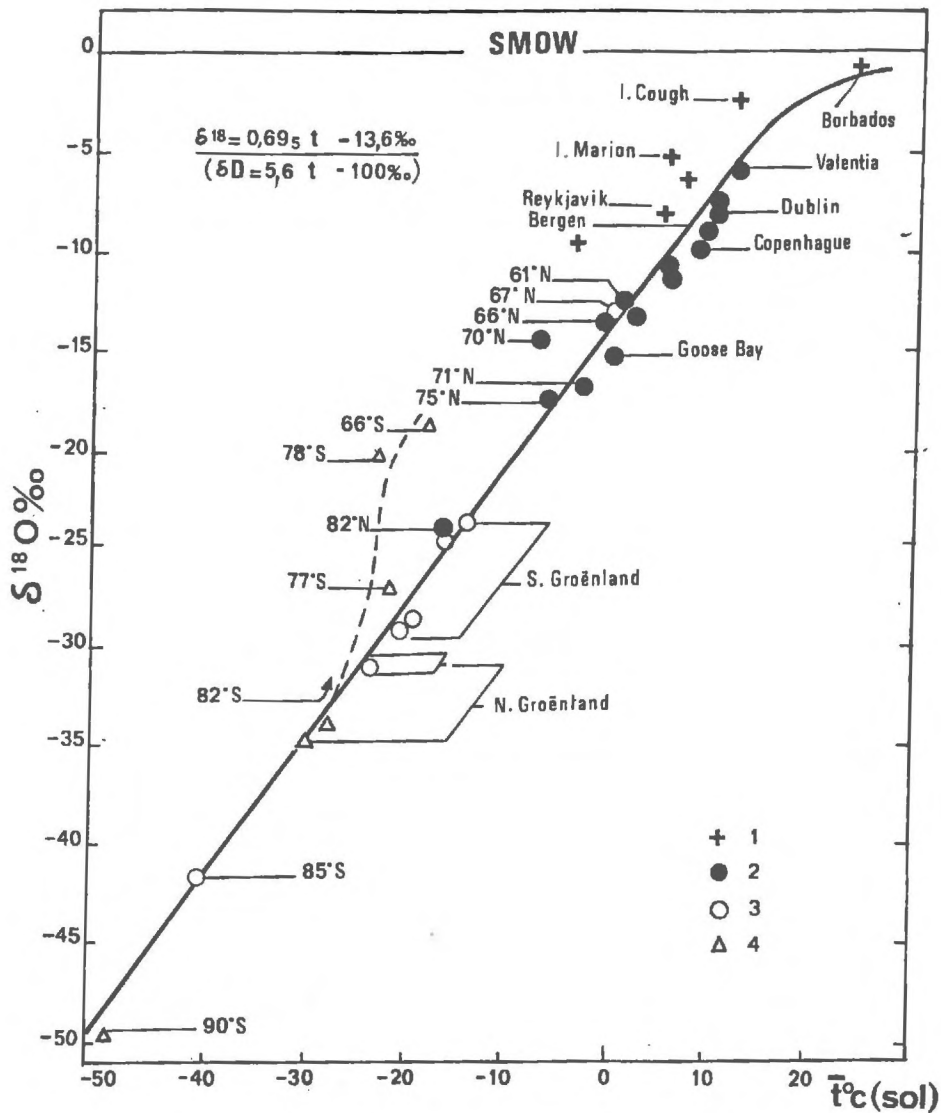


Figure A-2. Traçage des précipitations en isotopes stables.

Variation de la composition isotopique moyenne des précipitations ( $^{18}O$ ) en fonction de la température annuelle moyenne au sol : traçage en latitude.

1. Stations insulaires  $-4 < \bar{t} < 25^{\circ}C$ .
2. Stations continentales atlantiques  $-17 < \bar{t} < 11^{\circ}C$
3. Stations hautes latitudes  $-41 < \bar{t} < 14^{\circ}C$
4. Stations Groënland et Antarctique  $-50 < \bar{t} < -19^{\circ}C$ .

*Simplifié, d'après DANSGAARD (1964).*

Dans la pratique cette propriété est appréciable car elle relie la composition isotopique des eaux météoriques à des paramètres géographiques ou paléogéographiques, à savoir :

- la latitude (figure A.2.)
- l'altitude (figure A.3.)
- la saison (figure A.4.)
- la période climatique (dans le cas des eaux anciennes précipitées sous un climat qui n'a plus cours de nos jours, comme cela est par exemple le cas pour les eaux héritées des époques glaciaires).

Diverses tentatives ont été faites pour quantifier les relations de dépendance entre la température au sol et la teneur en isotopes lourds des eaux précipitées.

A l'échelle mondiale, pour des stations océaniques généralement froides ( $t_{\text{moyen}} < 10^{\circ}\text{C}$ ) DANSGAARD (1964) propose la relation :

$$\delta^{18}\text{O} = (0,69 t_{\text{moyen annuel}} - 13,6) \text{ ‰} \text{ (figure A.2.)}$$

Cette relation ne s'applique plus dès lors que l'on considère une station qui n'est plus soumise à ce type relativement simple de précipitations engendrées par les premiers stades de condensation d'une vapeur en équilibre avec les masses océaniques. En particulier les stations très continentales ou implantées dans des régions à forts reliefs reçoivent des précipitations qui correspondent à des stades poussés de condensation de vapeur d'origine mixte, marine et continentale. Il convient alors de rechercher les relations locales qui restent cependant du même type.

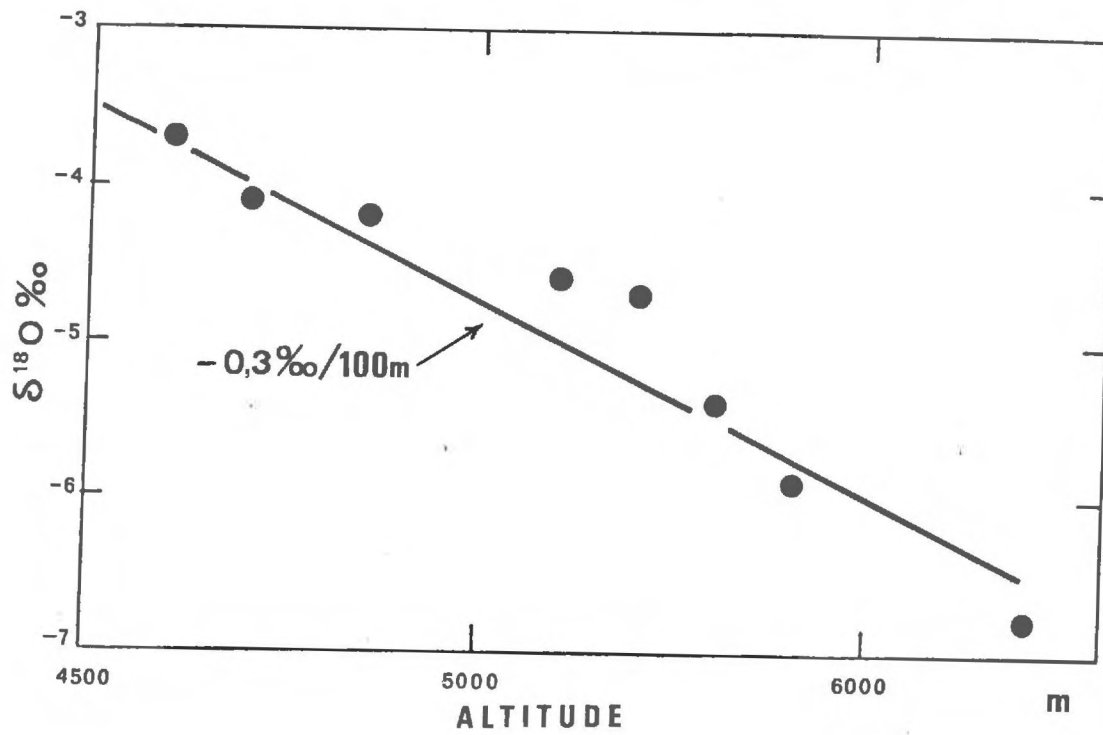


Figure A-3. Traçage des précipitations en isotopes stables.

Variation de la teneur en  $^{18}\text{O}$  d'un même épisode de précipitation en fonction de l'altitude. Il s'agit d'une collection de neige fraîche sur les pentes du Kilimandjaro. D'après TONGIORGI, inédit in GONFIANTINI (1970).

Les variations de composition isotopique avec l'altitude sont évidemment différentes d'une localité à l'autre puisqu'elles ne font que traduire commodément les variations locales de température sur les versants. Les gradients cités dans la littérature varient de 0,16 à 0,70 ‰/100 m. Les régions où la définition des profils est la plus détaillée livrent des valeurs variables : 0,16 ‰/100 m au Mont Cameroun (FONTES et OLIVRY, 1976), 0,26 ‰/100 m sur la côte pacifique du Nicaragua (PAYNE et YURTSEVER, 1974), 0,35 ‰/100 m sur les versants de l'Appenin romain (ZUPPI et al, 1974).

### III.2.3. - Tracage à l'évaporation.

D'autre part, en cours de chute dans un profil de l'atmosphère non saturé en vapeur d'eau, ou à la surface du sol, avant l'infiltration et lors des épisodes de rétention, l'eau s'évapore. Il en résulte un enrichissement de la teneur en isotopes lourds de la fraction liquide restante.

Appauvrissement et enrichissement en isotopes lourds lors des phénomènes de condensation et d'évaporation n'atteignent point toutefois les valeurs que laissent prévoir l'application d'un simple modèle de distillation fractionnée (processus de Rayleigh) : la condensation parce que le nombre d'épisodes de distillation est assez limité, l'évaporation parce qu'un phénomène complexe d'échange avec la vapeur atmosphérique ambiante vient limiter la variation de composition isotopique du liquide restant (CRAIG et al, 1963) : (figure A.5.).

Les enrichissements en  $^{18}\text{O}$  et en  $^2\text{H}$  engendrés par l'évaporation ont un déterminisme complexe (CRAIG et GORDON, 1965 ; GONFIANTINI, 1965 ; FONTES et GONFIANTINI, 1967 ; GAT, 1970 ; MERLIVAT, 1970 ; ZIMMERMAN et EHHALT, 1970) qui



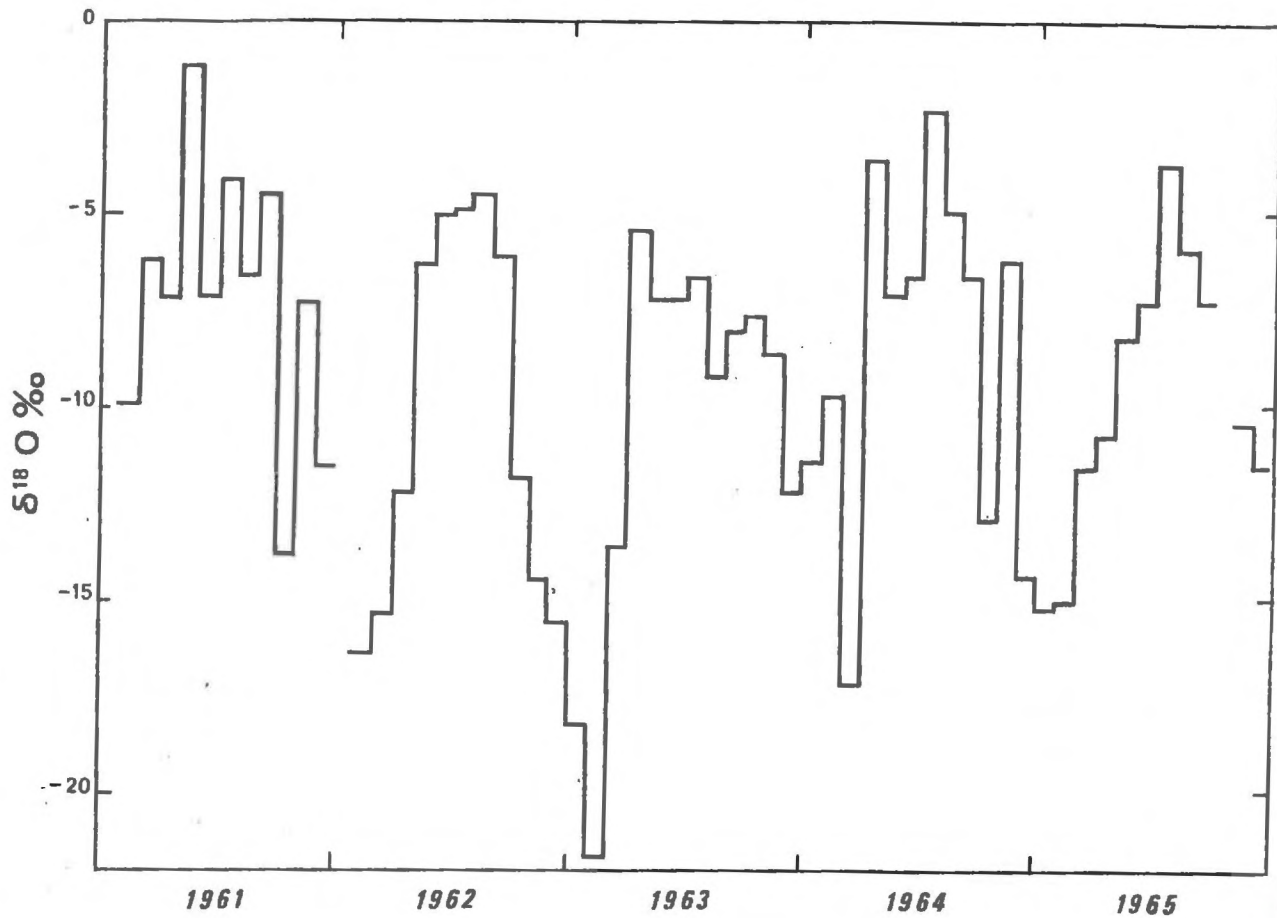


Figure A-4. Traçage des précipitations en isotopes stables.

Variations saisonnières des teneurs en <sup>18</sup>O des précipitations à Vienne (Autriche). I.A.E.A. (1969-70-71-73).

fait intervenir la température, la teneur en eau de l'atmosphère, la vitesse d'évaporation ainsi que la diffusion différentielle des molécules isotopiques dans l'air. Autant dire que les augmentations de teneur en isotopes lourds varient d'un système évaporatoire à l'autre en intégrant ces différents facteurs de variations qui reflètent les conditions climatiques locales. Dans la pratique l'enrichissement exprimé par rapport à la composition isotopique initiale au début du processus est de quelques unités  $\delta$  en oxygène 18 (ou quelques dizaines d'unités  $\delta$  en deutérium), sous les climats tempérés, pour atteindre 30 à 40  $\delta^{18}\text{O}$  et 150  $\delta^2\text{H}$  dans les sebkhas sahariennes (figure A-6.) exposées aux conditions les plus extrêmes d'aridité (FONTES et GONFIANTINI, 1967).

Les eaux de surface qui pénètrent dans le sol sont rapidement soustraites aux phénomènes d'évaporation libre et à l'enrichissement isotopique qui s'ensuit. Cependant, sous des climats arides comme celui du Nord du lac Tchad, il semble que l'évaporation puisse entraîner un effet isotopique jusque vers 3 m de profondeur (BRADLEY et FONTES : en préparation). L'évapotranspiration qui affecte les eaux de la nappe à son toit par l'intermédiaire de la frange d'alimentation des poils radiculaires absorbants, semble devoir s'opérer sans enrichissement isotopique. Les sucs végétaux se trouvent enrichis en isotopes lourds (GONFIANTINI et al., 1965 ; LESAINTE et al., 1974) par rapport à l'eau d'alimentation. Mais lorsque l'enrichissement est tel que la vapeur transpirée par les feuilles atteint la composition isotopique de l'eau de la nappe, le système est alors en régime permanent. Ce raisonnement qualitatif est facilement étayé par un traitement théorique en considérant que le végétal est un bassin évaporitique à niveau maintenu pratiquement sans échange avec la vapeur atmosphérique (FONTES, 1974).

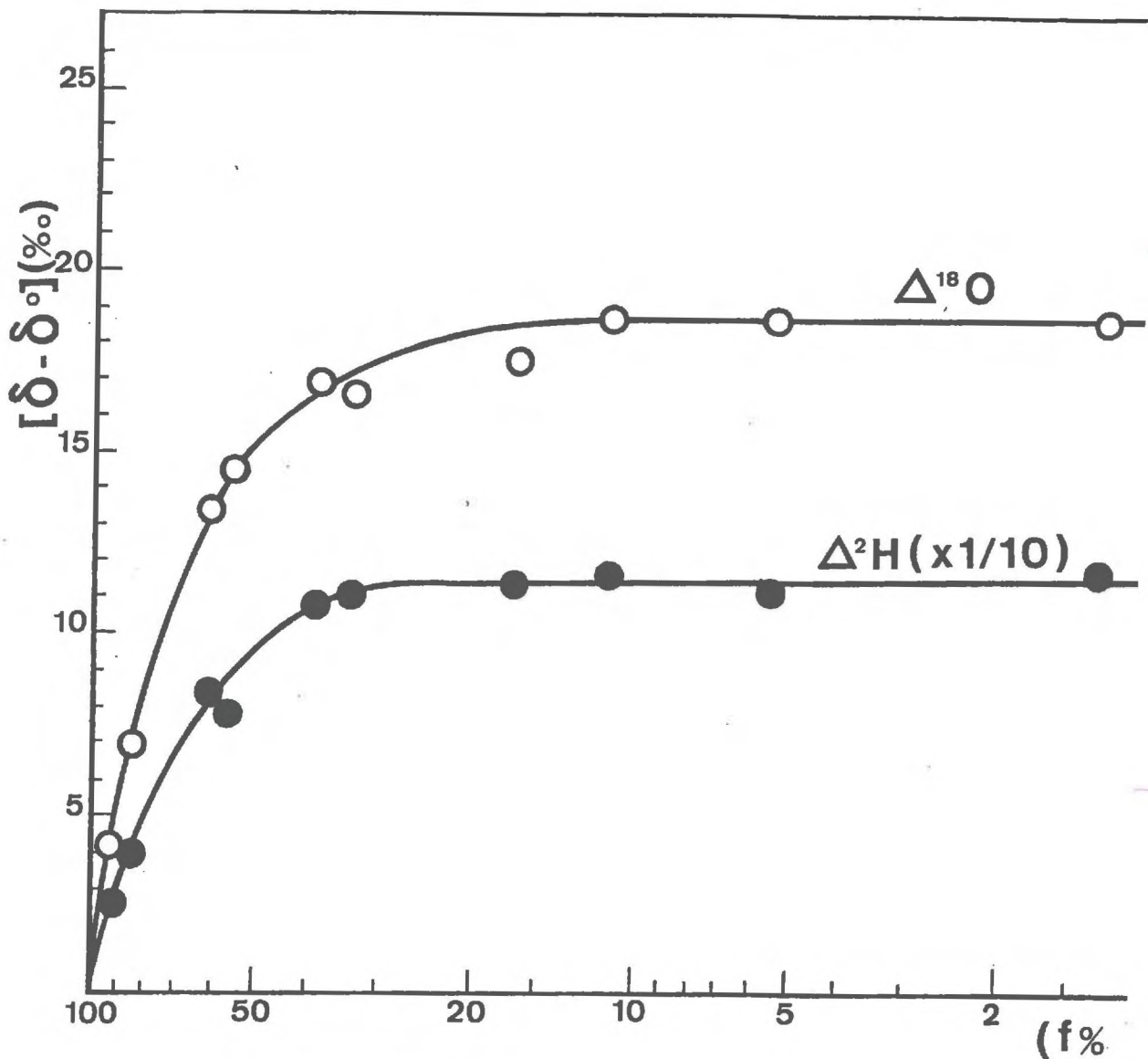


Figure A-5. Effet isotopique à l'évaporation : régions humides.

Evolution de la composition isotopique d'une eau en état d'évaporation avec enrichissement en isotopes lourds limité par l'échange avec la vapeur atmosphérique. La composition isotopique de l'eau tend vers une valeur constante, dite d'état stationnaire isotopique, alors que la fraction restante  $f$  de liquide continue à diminuer. Expérience conduite en Californie avec une humidité relative élevée ( $h$  voisin de 80 %). *Simplifié, CRAIG et al., (1963).*

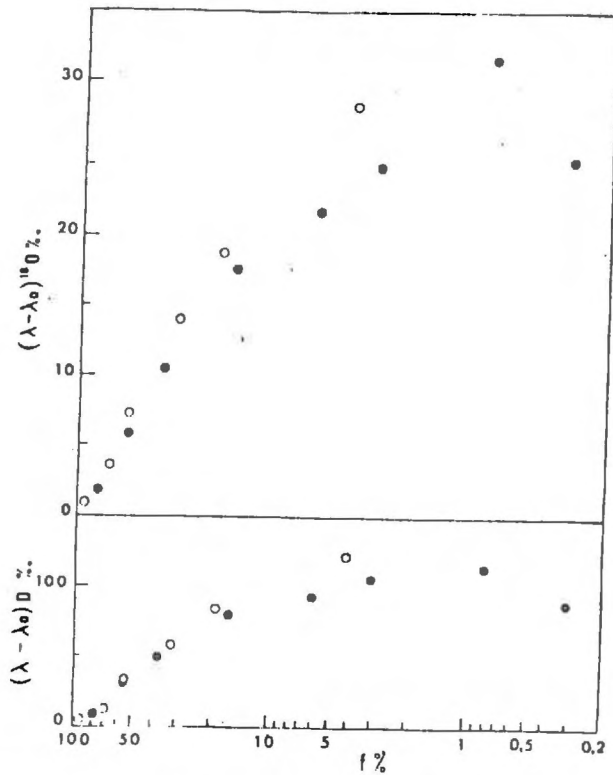


Figure A-6. Effet isotopique à l'évaporation : régions arides.

Les bassins du Nord-Ouest saharien, Lac du Guelb el Melah et Guelta de Gara Diba, montrent un enrichissement isotopique intense au cours de leur évolution évaporatoire.

La fraction restante  $f$  est calculée en admettant que le sodium (jusqu'à saturation en halite) puis le potassium sont conservés.

$$\lambda = \ln(1 + \delta) \approx \delta$$

Cercles ouverts : Guelta ; cercles pleins : Lac du Guelb el Melah.

D'après FONTES et GONFIANTINI, 1967.



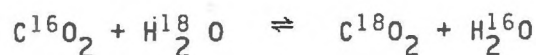
III.2.2. - Réactions d'échange.

D'autres causes possibles de variations de la composition isotopique des eaux dans les terrains aux basses températures ont été envisagées par certains auteurs. Elles concernent des effets assimilables aux phénomènes d'ultrafiltration, effets mal connus et, de toute façon, relativement limités.

Aux fortes températures comme celles des champs géothermiques, l'eau entre en réaction avec les minéraux de l'encaissant. Ainsi on peut, bien souvent, relier l'échauffement d'une eau à sa charge en silice ou aux teneurs relatives en  $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ . De la même façon les teneurs en oxygène 18 des eaux ainsi réchauffées vont s'élever. En effet, silicates et carbonates sont très généralement plus riches en  $^{18}\text{O}$  que les eaux. A hautes températures, le facteur de fractionnement diminuant, les teneurs en  $^{18}\text{O}$  des eaux surchauffées vont tendre vers les teneurs de la roche. En revanche, les roches étant pratiquement dépourvues de minéraux hydrogénés, à l'exception des radicaux hydroxyles des micas et des amphiboles, il est normal qu'aucun effet particulier ne vienne perturber les teneurs en deutérium (figure A-7.). Les eaux des circuits géothermiques vont être caractérisées par une augmentation des teneurs en  $^{18}\text{O}$  sans modification des teneurs en deutérium (CRAIG, 1963, 1966 ; GONFIANTINI et al., 1973).

Un autre type de réaction d'échange susceptible de modifier les teneurs isotopiques est celle qui met en jeu un composé gazeux et l'eau.

Par exemple la réaction :



engendre un enrichissement du  $\text{CO}_2$  en  $^{18}\text{O}$  (de l'ordre de 40 ‰ à l'équilibre, à 25°C). Les eaux chaudes qui se sont trouvées

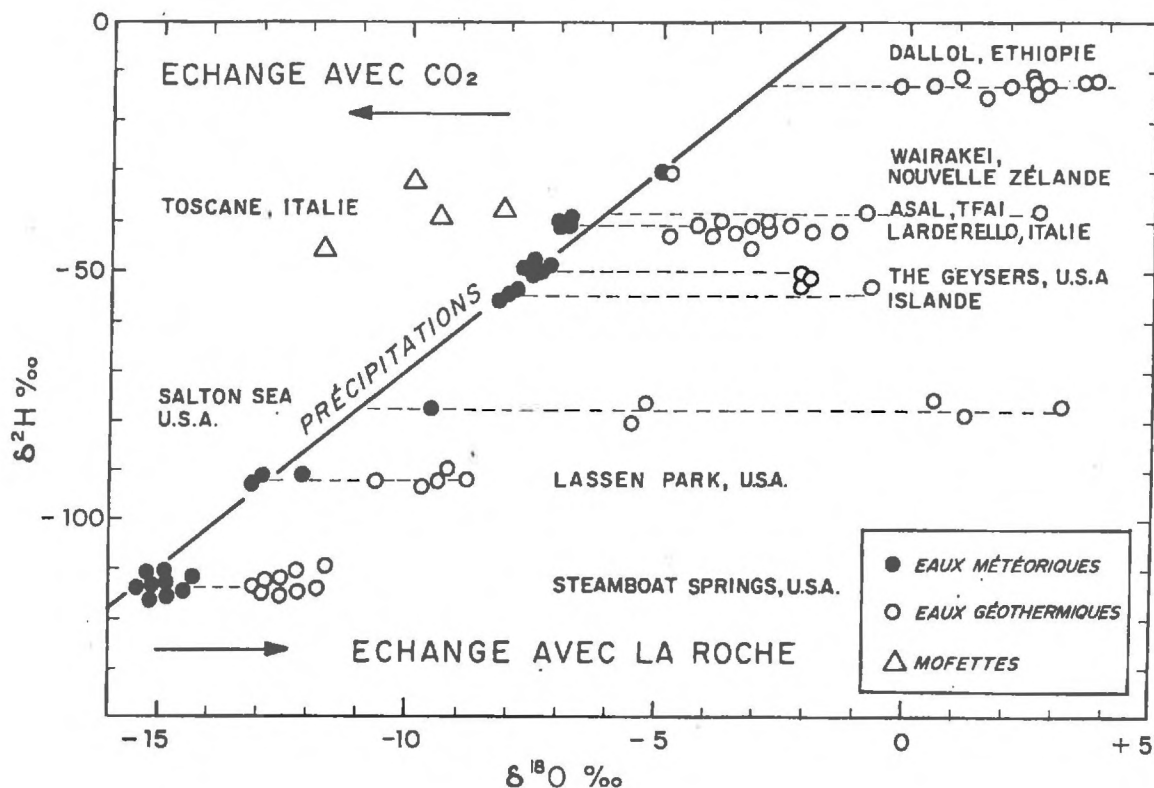


Figure A-7. traçage isotopique par échange géothermique :  
principaux sites actuellement recensés.

Aux fortes températures des circuits géothermiques les eaux s'enrichissent en oxygène 18 par échange avec les roches encaissantes qui ont des teneurs en  $^{18}\text{O}$  généralement plus élevées que celles des eaux. L'intersection d'une horizontale avec la droite des eaux météoriques représente les teneurs en  $^{18}\text{O}$  et  $^2\text{H}$  des eaux d'infiltration avant les réactions d'échange et permet de discuter de leur origine. Les eaux des mofettes très riches en  $\text{CO}_2$  subissent un échange isotopique qui conduit à un enrichissement du  $\text{CO}_2$  en  $^{18}\text{O}$ . Les eaux se trouvent donc appauvries par effet de bilan.

au contact de grandes quantités de  $\text{CO}_2$  tendent à s'appauvrir en oxygène-18. C'est le cas, par exemple, de certaines eaux incrustantes (FERRARA et al., 1965).

L'hydrogène participe à des réactions d'échange affectées de fortes ségrégations isotopiques. Ainsi, le contact avec de l'acide sulfhydrique ( $\text{H}_2\text{S}$ ) entraîne un enrichissement énorme de l'eau en deuterium (NIEF et BOTTER, 1960).

III.2.3. - Relations  $^{18}\text{O}$  -  $^2\text{H}$  dans les eaux naturelles.

Tous les raisonnements qualitatifs qui précèdent s'appliquent aussi bien à l'oxygène-18 qu'au deuterium. Par exemple, lors des épisodes de précipitation dans la nature, les teneurs en  $^{18}\text{O}$  et en  $^2\text{H}$  sont, de façon très satisfaisante, respectivement corrélées linéairement à la température de condensation. Il est donc normal que les teneurs en isotopes lourds des eaux de précipitations soient codépendantes. Il est maintenant bien établi que les précipitations qui n'ont pas subi d'évaporation obéissent à la relation :

$$\delta^2\text{H} = 8\delta^{18}\text{O} + d \quad (1)$$

La bonne constance de la pente de 8 au cours de tous les phénomènes de précipitations est, schématiquement, due au fait que la condensation est toujours un phénomène d'équilibre puisqu'il intervient à saturation.

La quantité  $d$ , désignée sous le nom d'excès de deuterium, est dans la plupart des cas, voisine de + 10, en particulier (cf § III.2.1.2.) pour les stations soumises à un régime de perturbations océaniques simples (CRAIG, 1961b) : (figure A-8).

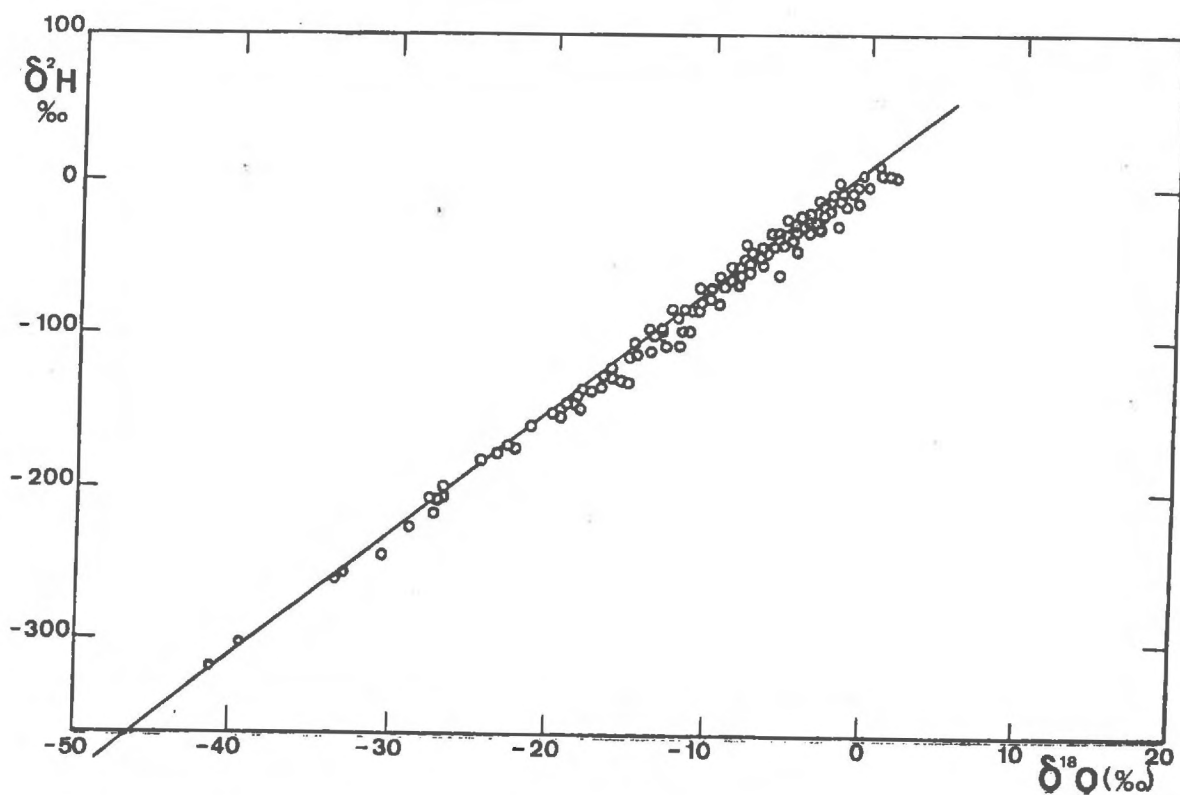


Figure A-8. Oxygène 18 et deutérium dans les précipitations.

A l'échelle mondiale, les teneurs en isotopes stables des précipitations sont bien corrélées au long d'une droite d'équation

$$\delta^2\text{H} = 8 \delta^{18}\text{O} + 10$$

Simplifié, d'après CRAIG (1961b).



Lorsqu'une proportion notable de la vapeur condensante provient d'une mer fermée ou de l'évaporation continentale elle-même, le paramètre  $d$  varie. Par exemple, pour le bassin oriental de la Méditerranée, les compositions isotopiques des précipitations obéissent à la relation :

$$\delta^2\text{H} = 8\delta^{18}\text{O} + 22 \quad (\text{NIR, 1967})$$

A l'évaporation, les teneurs en  $^{18}\text{O}$  et  $^2\text{H}$  du liquide restent corrélées de façon linéaire pour un bassin donné. D'une masse d'eau en état d'évaporation à l'autre, les pentes varient et traduisent en cela le fait que l'évaporation est pratiquement toujours un phénomène hors d'équilibre puisqu'il intervient en atmosphère "désaturée". Bien que variables, les pentes des droites qui traduisent la corrélation des teneurs en  $^{18}\text{O}$  et  $^2\text{H}$  de la phase liquide restante lors de l'évaporation, présentent cependant un caractère commun : elles sont toutes inférieures à la pente unique de 8 qui reflète le phénomène d'équilibre à la condensation (figure A-9). Les nombreux résultats disponibles montrent que les droites d'évaporation ont généralement des pentes comprises entre 3 et 5 (voir à ce sujet FONTES, 1974). A noter que les eaux des végétaux donnent lieu au même phénomène avec des pentes voisines de 3.

### III.3. - Les variations de concentration en tritium, isotope radioactif de l'hydrogène.

En toute rigueur, le tritium obéit aux lois du fractionnement isotopique telles qu'elles ont été énoncées pour les isotopes stables. Remarquons tout de suite que les effets isotopiques qui peuvent en découler ne peuvent guère, dans le domaine de température des précipitations, dépasser 30 pour cent relatifs du rapport  $^3\text{H}/^1\text{H}$ <sup>(1)</sup>. Bien qu'importantes, ces causes de variations

---

(1) En admettant que le tritium, obéit à un facteur d'enrichissement double de celui du deuterium, on obtient un écart relatif de 15 % entre le liquide et la vapeur à 25°C.

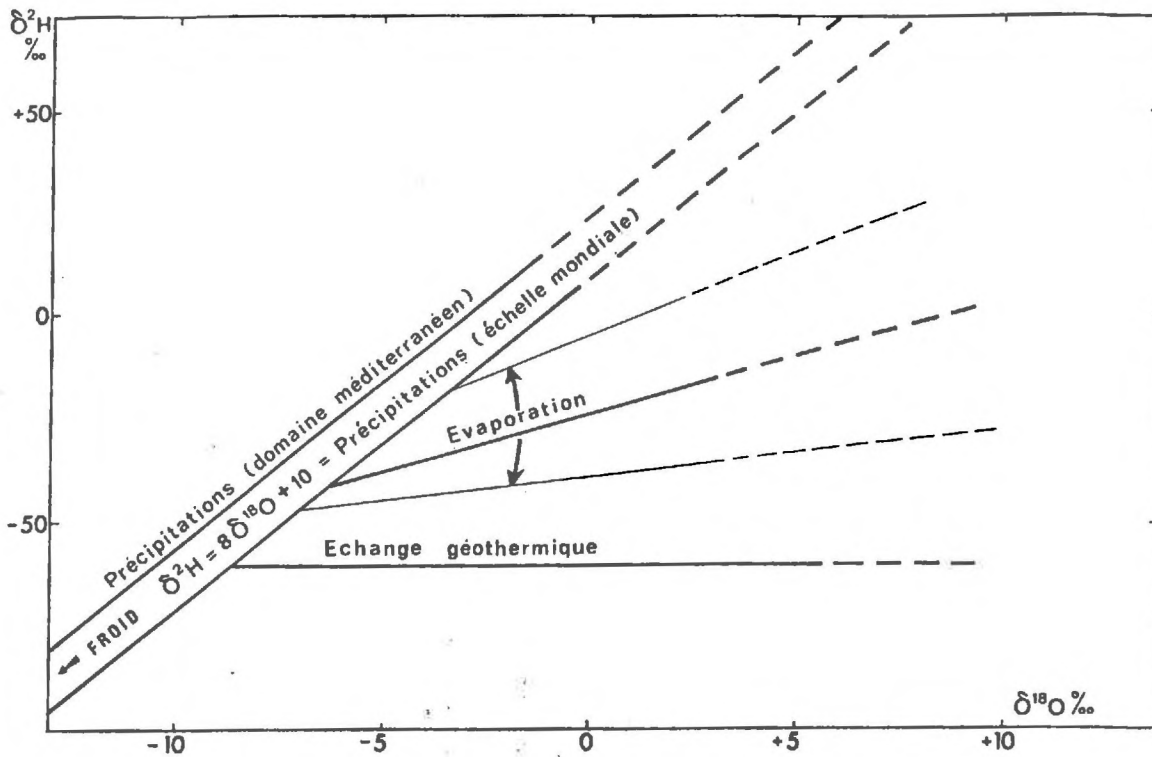


Figure A-9. Résumé des modalités du traçage naturel en isotopes stables.

Les précipitations montrent une corrélation linéaire de pente 8, caractéristique du phénomène de condensation, qui se produit toujours à saturation c'est-à-dire à l'équilibre. L'ordonnée à l'origine peut varier d'une région à l'autre en fonction de l'origine de la vapeur qui condense. La vapeur océanique (cas le plus fréquent) donne des précipitations qui ont un excès de deutérium de + 10. Les pluies du domaine méditerranéen oriental ont un excès de deutérium de + 22.

L'évaporation conduit également à des corrélations linéaires pour les teneurs en  $^2\text{H}$  et  $^{18}\text{O}$  des fractions liquides restantes. A la différence des précipitations qui obéissent à une pente de 8 (pente d'équilibre), les eaux évaporées montrent des pentes variables qui traduisent le fait que chaque étendue d'eau en état d'évaporation obéit à sa cinétique propre qui dépend des paramètres climatiques locaux. De plus, les pentes des droites d'évaporation sont plus faibles que celle de la droite de condensation et généralement comprises entre 3 et 5. Une eau évaporée se repérera donc facilement en s'inscrivant sous la droite des précipitations.

L'échange géothermique n'affecte que les teneurs en  $^{18}\text{O}$  qui se trouvent déplacées sur une horizontale.

restent relativement faibles devant les autres effets qui affectent les teneurs en tritium et ne sont généralement pas prises en compte dans les études qui mettent en jeu cet isotope. On comparera directement les teneurs des précipitations à celles des eaux de surface et des nappes.

### III.3.1. - Le tritium naturel.

Fils des premiers noyaux de l'azote-14 de l'air soumis aux chocs de la composante neutronique induite par les protons du rayonnement cosmique, le tritium est engendré en haute atmosphère, au taux moyen de 0,25 atomes/cm<sup>2</sup>/sec (LAL et SUESS, 1968). Après oxydation, il est distribué à la surface du sol par les précipitations. La déviation des particules chargées du rayonnement cosmique par le champ magnétique terrestre étant décroissante avec la latitude, il est normal que des quantités majeures de tritium soient produites dans les régions de haute latitude.

Par ailleurs, dans les zones basses de l'atmosphère, les masses de vapeur subissent des réactions d'échanges à la surface des eaux libres. Les eaux continentales qui ont une origine météorologique récente contiennent encore du tritium. En revanche, les masses marines qui correspondent à des temps de séjour longs de plusieurs siècles à plusieurs millénaires sont évidemment très pauvres en cet isotope à mort assez précoce. L'échange avec les eaux océaniques appauvrit la vapeur atmosphérique en tritium. D'autre part, et surtout, la contribution croissante de vapeurs marines au fur et à mesure de la migration des masses de vapeur au-dessus des étendues océaniques dilue de plus en plus le tritium ambiant.

De même, les précipitations collectées en altitude ont plus de chance d'être assez largement "tritiques" que celles qui ont traversé la totalité des basses couches de l'atmosphère où les mélanges avec la vapeur appauvrie en <sup>3</sup>H sont plus efficaces.



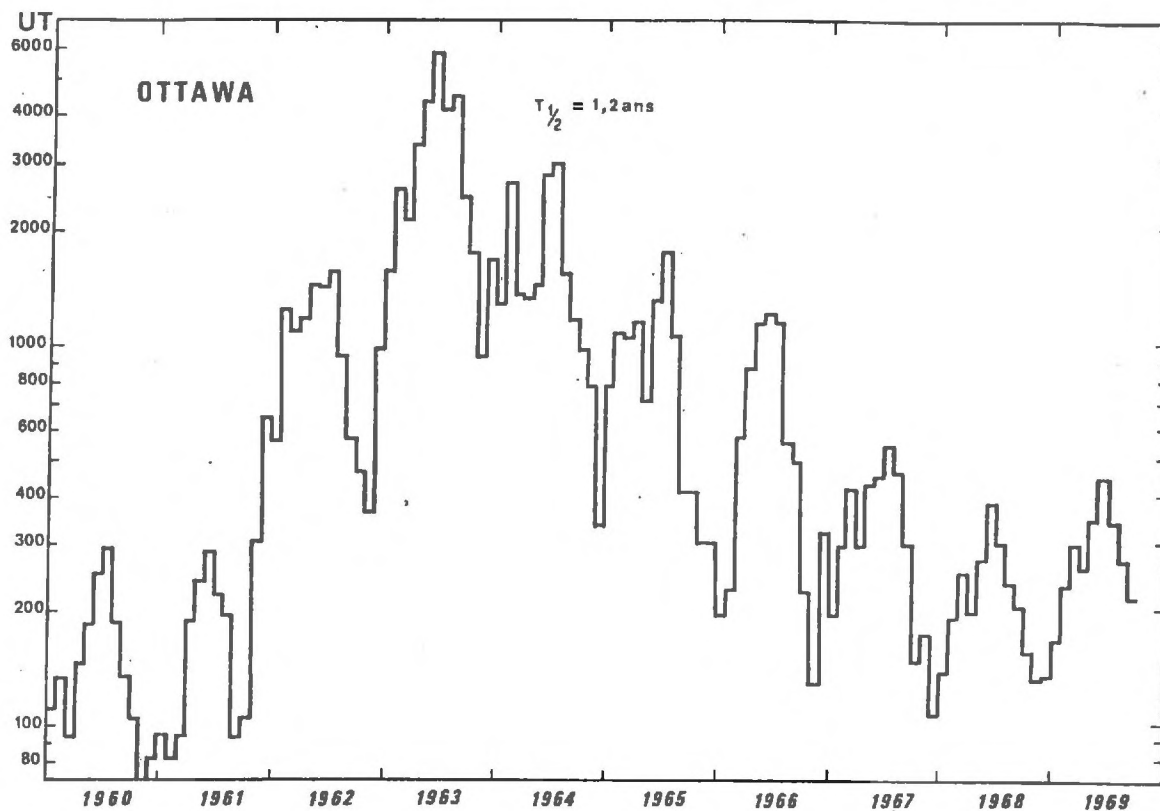


Figure A-10. Tracage des précipitations en tritium.

Les variations de teneur en tritium des précipitations sont modulées par les essais thermonucléaires aériens.

Après l'accord sur l'arrêt de ces essais, les teneurs ont baissé de 1965 à 1969. Depuis 1970, l'activité des précipitations s'est stabilisée puis a commencé à augmenter à nouveau dans certaines régions, probablement sous l'effet des bouffées actives relâchées par les installations nucléaires.

La figure de retombée d'Ottawa qui correspond au plus long enregistrement disponible représente une archive de référence car les variations relatives sont sensiblement les mêmes dans tout l'hémisphère nord.



En principe, c'est donc au coeur des continents, aux hautes latitudes et altitudes que les teneurs en tritium sont les plus fortes. Dans la pratique, seul l'effet de continentalité est vraiment important à l'échelle des valeurs moyennes pondérées, mensuelles ou annuelles (I.A.E.A., 1969, 1970, 1971, 1973). Conformément aux lois de variations définies ci-dessus, les teneurs en tritium naturel des précipitations sont comprises entre 5 et 20 unités tritium (UT).

### III.3.2. - Le tritium artificiel.

Le tritium est produit en fortes quantités lors des essais de bombes thermonucléaires et son apparition remonte donc aux premiers tests de 1954. Lors d'une expérience aérienne, le tritium se trouve largement injecté dans la stratosphère au delà de la zone écran de la tropopause. Là, soumis aux circulations laminaires zonales de cette enveloppe de l'atmosphère, il gravite à la latitude d'injection qui restera donc une zone préférentielle de retombées. Les retombées se produisent comme pour le tritium naturel sous forme humide, après oxydation et selon les mêmes mécanismes. Mais les teneurs artificielles ont été particulièrement élevées à certaines périodes et ont parfois dépassé de plusieurs ordres de grandeur les teneurs naturelles, autorisant ainsi des mesures plus faciles et plus précises (figure A-10). Les différents mécanismes qui favorisent la translation du tritium de la stratosphère vers la troposphère ont pu être ainsi précisés (THATCHER et PAYNE, 1965 ; SUESS, 1969 ; OLIVE, 1970).

La diffusion à travers la barrière tropopausique est un mécanisme qui joue probablement en permanence.

L'ensemencement direct des nuages convectifs à fort développement vertical est possible lorsque les têtes de ces cumulonimbus atteignent ou dépassent même la tropopause. Ce phénomène

est plus facile vers les moyennes et hautes latitudes puisque la tropopause s'abaisse en moyenne de 12 000 m à l'équateur jusque vers 6 000 m aux pôles.

Le délestage direct semble cependant le mécanisme le plus efficace de retombée du tritium. Il intervient à la faveur des discontinuités de la tropopause, dont on ne sait si elles sont de véritables déchirures ou des extrusions dirigées vers le bas. Ces zones de délestage privilégié se trouvent découvertes à la fin du printemps lorsque les tropopauses polaires et équatoriales ont tendance à migrer en sens inverses libérant ainsi le passage aux produits jusque là maintenus en sustentation stratosphérique. Par la suite, les deux tropopauses convergent à nouveau et se recouvrent, oblitérant ainsi la zone de délestage. Il en résulte schématiquement un pic dit "pic de printemps" qui s'inscrit à environ 3 fois la teneur moyenne pondérée de l'année, suivi par une vallée d'hiver qui est sensiblement inférieure de moitié à cette même moyenne.

Les variations saisonnières des teneurs en tritium des précipitations se superposent à l'évolution générale qui, depuis 1954, correspond au bilan injection-délestage du tritium artificiel. Pour l'hémisphère nord, ce bilan est bien connu, grâce aux enregistrements d'Ottawa qui remontent à 1953 (BROWN, 1961, 1970).

Après une succession d'impulsions qui conduisent à des teneurs maximales au cours des printemps 1958-1959, les activités décroissent pour ne plus représenter que 2 à 3 fois le niveau naturel au cours de l'hiver 1960. Puis vient la période de la compétition aux essais d'engins toujours plus puissants. Elle culmine avec des retombées humides en tritium comprises entre 5 000 et 10 000 UT lors du "pic de printemps" de 1963 en Europe centrale et au coeur du continent nord-américain. Par la suite,

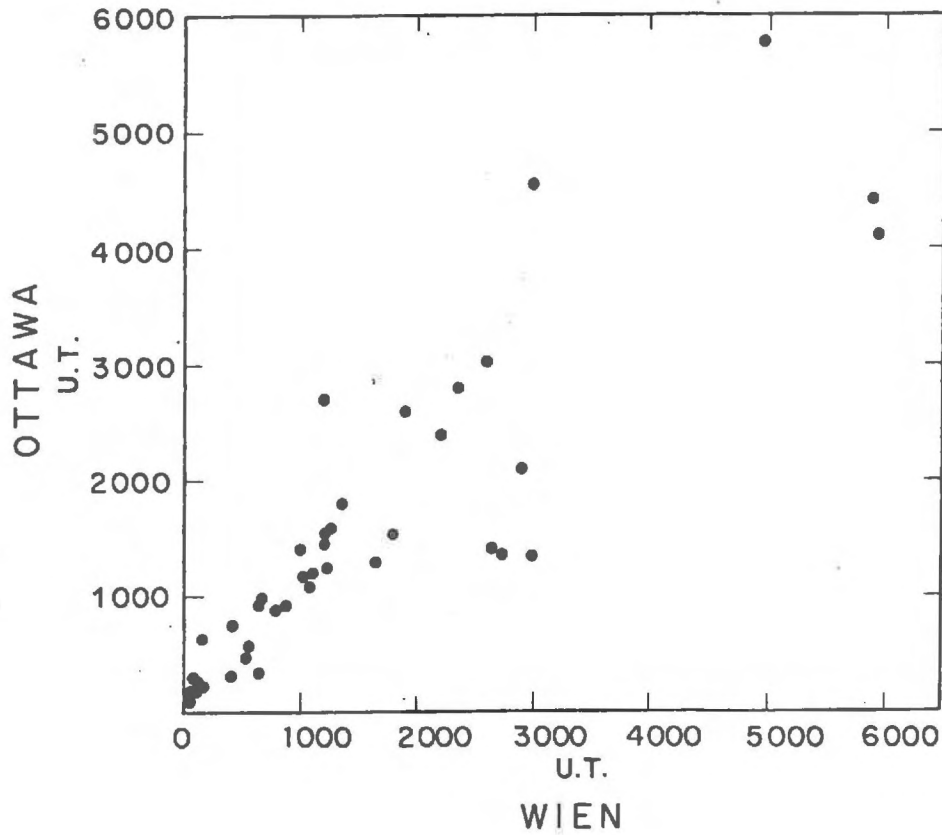


Figure A-11. Le tritium dans l'hémisphère sud (Afrique du Sud).

Les communications atmosphériques interhémisphères sont réduites et difficiles. Les injections d'origine thermonucléaires s'étant préférentiellement produites dans l'hémisphère boréal, il est normal de relever des teneurs beaucoup plus basses et légèrement déphasées dans les précipitations d'Afrique du Sud, D'après VERHAGEN et *al.*, (1970).



avec l'accord sur l'arrêt des essais aériens, le réservoir stratosphérique s'épuise rapidement, avec un temps de demi-vidange, de l'ordre de 1,2 ans, jusqu'en 1968. Depuis, la tendance se stabilise avec des fluctuations probablement imputables à des bouffées actives relâchées par les réacteurs nucléaires, chaque année plus nombreux dans les régions industrialisées. A l'heure actuelle, les teneurs moyennes en tritium des précipitations sur les régions tempérées de l'hémisphère nord s'inscrivent à environ 100 UT.

Dans l'hémisphère sud, la tendance est complètement différente (figure A-11). En effet, les circulations atmosphériques interhémisphères sont très faibles et le passage des masses d'air est donc lent. De plus, ces circulations ne se produisent guère qu'au niveau des grandes étendues continentales, c'est-à-dire essentiellement en Afrique. Or, jusqu'aux essais de Polynésie, l'hémisphère sud était resté exempt de tout apport intrinsèque. Si l'on ajoute que la surface marine australe véritable piège à tritium est relativement plus importante que celle des mers boréales, on concevra facilement que les teneurs en tritium soient restées faibles en particulier en Nouvelle Zélande et en Australie où elles n'ont point dépassé 40 à 50 UT, maximum relevé en 1965-1966 et 1966-1967. (BROWN et TAYLOR, 1974 ; ALLISON et HUGUES, 1974). Sur l'Afrique du Sud où l'apport d'air boréal est plus aisé, le maximum de 1965 apparaît encore légèrement décalé par rapport à celui de l'hémisphère nord (1963-1964) et reste inférieur à 110 UT (VOGEL et VAN DIJKEN, 1972).

### III.3.3. - Traçage du milieu en tritium.

Dans la pratique, et pour ce qui regarde l'hémisphère nord, les facteurs qui tendent à provoquer des variations des retombées en tritium d'une région à l'autre se trouvent fortement



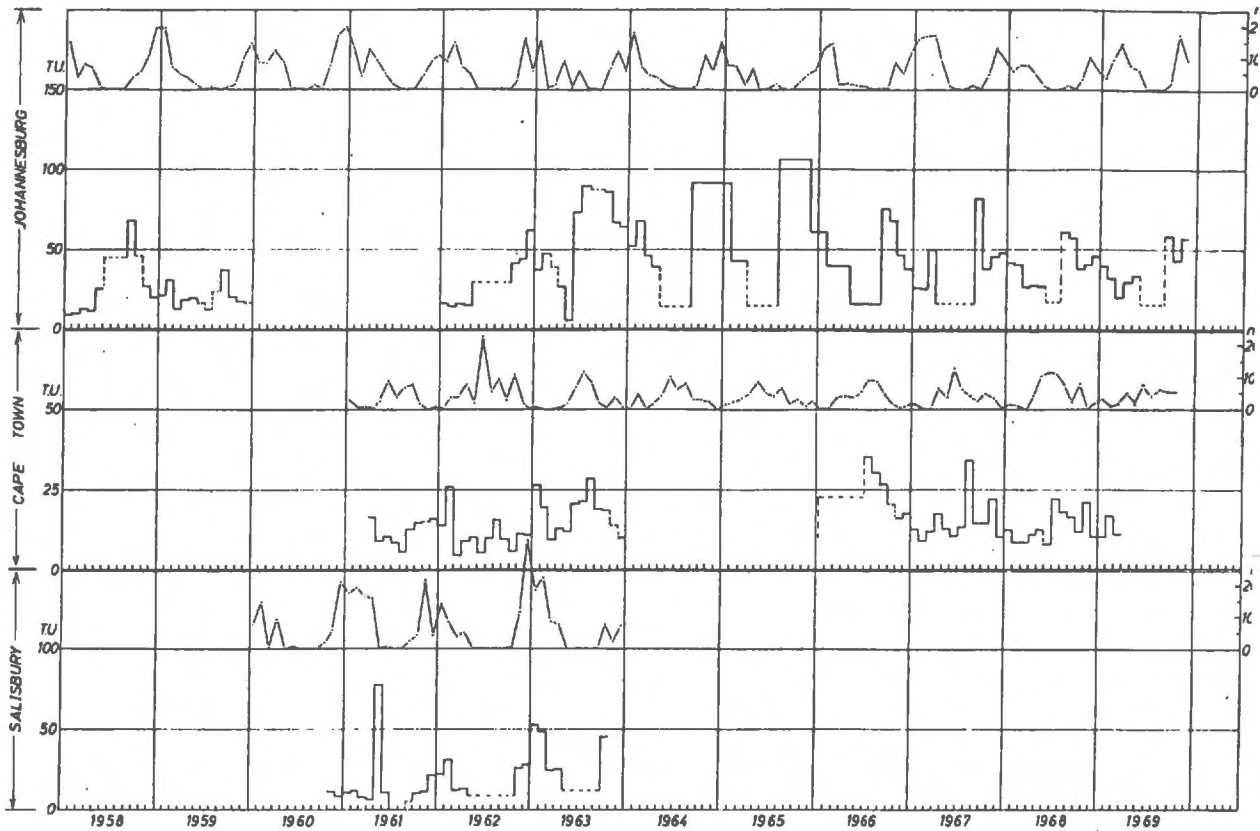


Figure A-12. Exemple de corrélation des teneurs en tritium entre deux stations du même hémisphère.

Entre les stations de Vienne et d'Ottawa, la corrélation est suffisamment significative pour permettre la reconstitution des activités des précipitations à Vienne avant que ne débutent les mesures systématiques. Sources : BROWN (1970) et I.A.E.A. (1969-1970).

contrariés par le "bon" brassage turbulent de la troposphère. Pour chaque grande zone climatique, les teneurs en tritium des précipitations restent simplement proportionnelles entre elles d'une localité à l'autre, traduisant ainsi les effets de la continentalité. Cette intéressante propriété permet de reconstituer a posteriori les teneurs en tritium précipité à une station donnée en se référant aux enregistrements plus complets d'une autre station. Etant donné que la collection de données continues d'Ottawa couvre la totalité de l'évolution des retombées en  $^3\text{H}$  de 1953 à 1969 (BROWN, 1970), il a été possible de recalculer de façon précise toutes les figures complètes locales de retombées de la zone tempérée au prix de quelques années de mesures destinées à établir les divers coefficients de proportionnalité avec Ottawa (figure A-12). La courbe de distribution des teneurs en tritium des précipitations depuis 1953 représente la fonction initiale du traçage en tritium. La comparaison des données de cette courbe avec les variations d'activité au cours du temps d'un cours d'eau ou d'un point d'eau souterrain permet de procéder aux mêmes types de traitements que dans la pratique du traçage artificiel (figure A-13). La fonction initiale est connue, la fonction distribution des temps de séjour est déterminée, le traitement par déconvolution permet de reconstituer les paramètres de dispersion du système (NIR, 1964 ; MARGRITA et al., 1970). D'autres approches sont également possibles, comme celle qui consiste à établir des modèles de mélanges successifs où chaque année la même proportion d'eau récente se mêle à un mélange des eaux des années précédentes, homogène et obtenu de la même façon (MUNNICH et ROETHER, 1963 ; DAVIS et al., 1967). Plus simplement, le tritium est souvent utilisé sur la base d'estimations empiriques qui permettent d'identifier les mélanges. Aussi, pour la zone tempérée, nord, peut-on admettre les critères suivants pour l'étude des eaux souterraines :

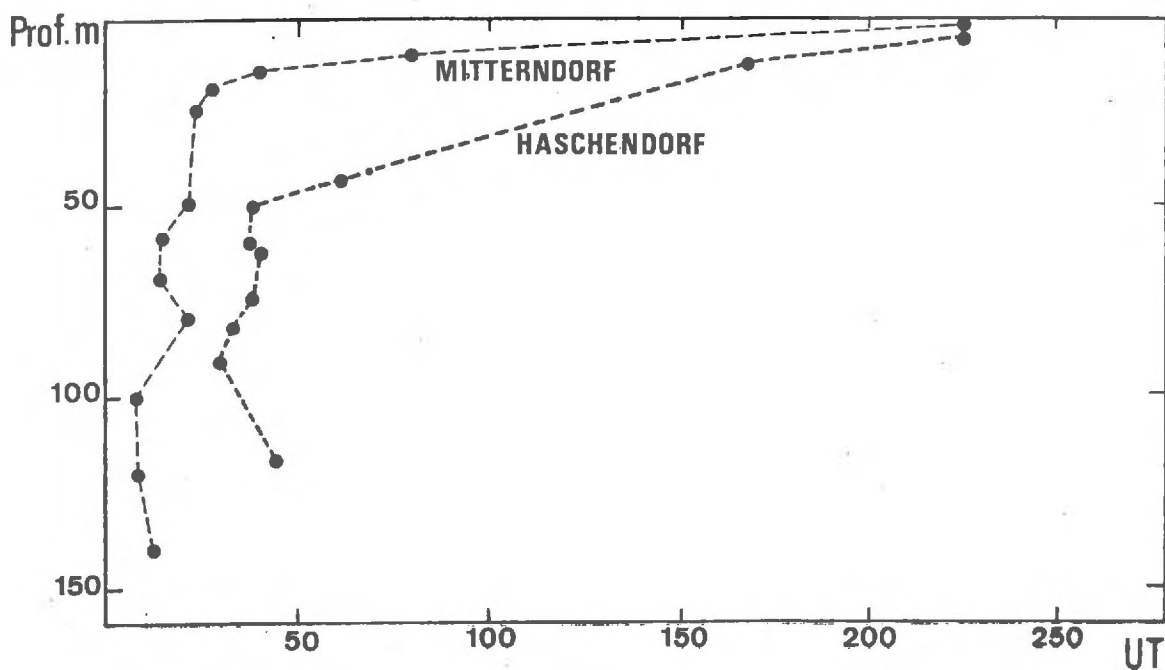


Figure A-13. *Tritium indicateur des variations de perméabilité.*

Les teneurs en tritium des eaux prélevées au cours de l'exécution de deux forages en Autriche sont reportées en fonction de la profondeur. Les eaux sont récentes mais stratifiées en fonction des variations de perméabilité verticale des terrains. Simplifié, d'après DAVIS et al. (1967).

- 0 à 5 UT la composante ancienne antérieure à 40 ans domine,
- 5 à 40 UT le prélèvement représente un mélange entre de l'eau ancienne et des apports récents,
- > 40 UT la composante contemporaine domine.

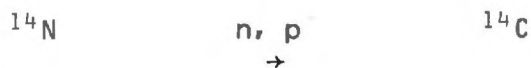
Encore faut-il bien voir qu'il ne s'agit là que de recettes destinées à guider les enquêtes et non de règles. Il est clair par exemple qu'une contamination d'une réserve souterraine vieille de plusieurs millénaires par 2 % d'eau météorique de Juin 1964 conduira, compte tenu de la décroissance radioactive du tritium à une teneur de 40 à 50 UT en 1976. Bien entendu, la logique continue du système hydraulique rend hautement improbable une telle coïncidence, mais il convient d'être prudent, en particulier dans le cas des karsts où les décharges en tritium au moment des crues peuvent être le produit de mélanges discontinus (MARGRITA et al., 1970).

Parfois, encore le tritium est utilisé en tout ou rien pour diagnostiquer le passage des eaux de 1964 dans les systèmes qui sont censés fonctionner essentiellement par "effet piston" (SMITH et al., 1970) : (figure A-14).

#### III.4. - *Isotopes du carbone en solution.*

##### III.4.1. - Production du $^{14}\text{C}$ et conditions d'emploi en marqueur de temps.

Comme le tritium, le radiocarbone  $^{14}\text{C}$  se forme dans la haute atmosphère à partir des noyaux d'azote 14.





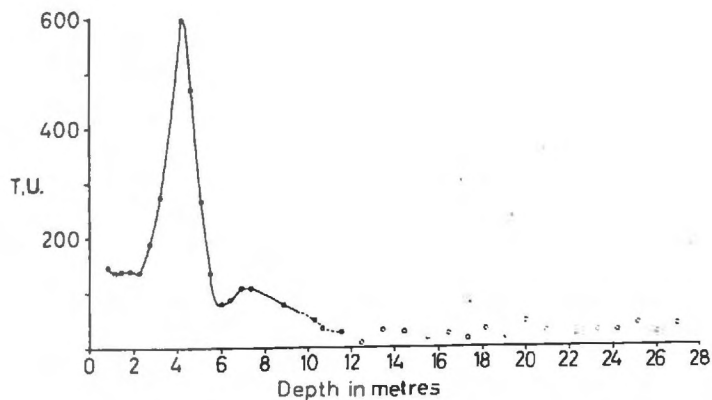


Figure A-14. Tritium indicateur de la stratification des eaux dans la zone non saturée.

Le pic de tritium attribué aux précipitations des années 1963-1964 (pic majeur) est retrouvé, pratiquement sans dispersion, dans un profil de craie à porosité d'interstice homogène et forte (teneur en eau : 0,21 g/g).

Le pic secondaire que l'on relève vers 7 m de profondeur est attribué au pic secondaire des années 1958-1959 (cf § III.2.2.2.). Les recharges des années successives s'empilent à raison de 0,88 m/an, soit une recharge annuelle d'environ 330 mm/an pour une porosité totale de 38 %. D'après SMITH et al. (1970).

Après oxydation, il est distribué dans le cycle général du carbone sous forme initiale de  $^{14}\text{CO}_2$  mêlé au  $\text{CO}_2$  atmosphérique. Le principe de l'utilisation du carbone-14 comme chronomètre est fondé sur l'estimation de la décroissance radioactive par unité de temps qui est proportionnelle au nombre de nuclides  $N$  du milieu :

$$\frac{dN}{N} = - \lambda dt$$

qui s'intègre en considérant l'état initial ( $t = 0, N = N_0$ ) :

$$N = N_0 e^{-\lambda t}$$

ou encore en introduisant la période radioactive ou temps de demi-vie ( $t = \tau, N = \frac{N_0}{2}$ ) :

$$t = \frac{\tau}{\ln 2} \ln \frac{N_0}{N_t}$$

Dans le cas des marqueurs de temps généralement utilisés en géochimie, on détermine indirectement  $N_0$  en mesurant la teneur en noyaux fils produits dans la réaction de décroissance et qui est égale à la différence  $N_0 - N_t$ . Ici le noyau fils du carbone est l'azote banal  $^{14}\text{N}$  :



L'azote 14 radiogénique, dilué à l'infini par l'azote atmosphérique, est évidemment inaccessible à la mesure.

Pour déterminer le temps par la mesure de l'activité spécifique  $A_t = N_t/g$ , on doit donc estimer  $A_0$ .

L'hypothèse la plus simple consiste à admettre que  $A_0$  reste constant au cours du temps et correspond à l'activité du  $CO_2$  de l'atmosphère. Cela suppose :

- un équilibre entre la production cosmique et la décroissance radioactive du  $^{14}C$ ,
- une bonne homogénéisation du réservoir troposphérique,
- un cycle du carbone-14 en régime permanent en chaque point,
- la connaissance des fractionnements isotopiques qui accompagnent les réactions du cycle du carbone.

Toutes ces conditions liminaires nécessitent un examen critique délicat. Disons simplement que la comparaison des âges radiométriques avec les âges réels a pu être menée sur les 6 derniers millénaires avec des matériaux tirés des nécropoles anciennes et surtout par dendrochronologie, c'est-à-dire par comptage des anneaux de croissance de certains arbres (Pinus aristata du Sud des Etats-Unis). Les résultats montrent un écart croissant avec le temps à partir du début de notre ère. En limite d'étalonnage, la différence est d'environ 10 % (DAMON et al., 1966).

Pour le calcul du temps, deux contraintes propres au milieu d'étude s'ajoutent à ces conditions :

- le système doit rester clos, c'est-à-dire exempt de toute contribution supplémentaire en carbone actif ou "mort" qui viendrait fausser l'effet de la décroissance radioactive du  $^{14}C$ ,
- l'activité initiale du système au moment de sa fermeture  $A_0$  doit pouvoir être reliée à l'activité du  $CO_2$  de l'atmosphère au même moment.

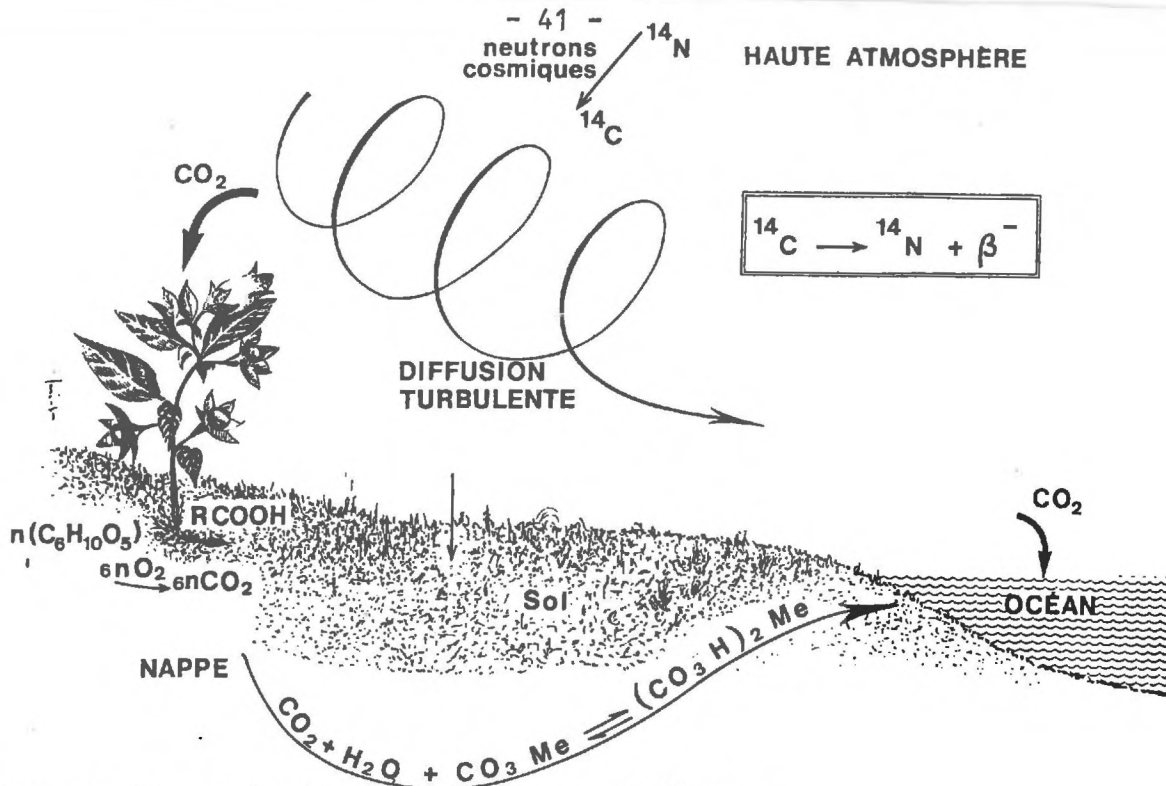


Figure A-15. Cycle du carbone-14 naturel dissous.

Après sa production par les rayons cosmiques, le carbone-14 est brassé dans la troposphère sous forme de gaz carbonique. Il pénètre ensuite dans les autres portions du cycle selon la voie directe par réalisation des équilibres  $\text{CO}_2 - \text{CO}_3\text{H}_2 - \text{CO}_3\text{H}^-$  à la surface des eaux libres (ou encore, pour mémoire, par infiltration directe des eaux chargées en  $\text{CO}_2$  dissous) ou bien, et c'est la voie préférentielle pour la partie continentale du cycle, le  $\text{CO}_2$  de l'atmosphère est assimilé par les végétaux chlorophylliens et se trouve ensuite cédé à nouveau à l'hydrosphère par oxydation ou décarboxylation de la matière organique.

L'eau agressive chargée en acide carbonique est ensuite saturée par des cations, le plus souvent alcalino-terreux ( $\text{Me} = \text{Ca}^{2+}, \text{Mg}^{2+}$ , éventuellement  $\text{Na}^+$ ), pour donner les bicarbonates qui circulent dans la zone noyée. La réaction de l'acide carbonique actif (= chargé en  $^{14}\text{C}$ ) qui provient du sol sur le carbonate "mort" (= dépourvu de  $^{14}\text{C}$ ) peut se résumer à une dilution de l'activité du  $\text{CO}_2$  de l'atmosphère dans le carbone dissous. La détermination des termes de cette dilution, c'est-à-dire de l'activité initiale du carbone dissous représente le problème crucial dans l'estimation des "âges" des eaux anciennes.



La notion de système clos est assez facile à admettre dans le cas de restes végétaux massifs tels que les bois. Pour les carbonates ou les bicarbonates dissous dans les eaux souterraines, il ne peut y avoir de système clos qu'en nappe captive. Le problème de l'activité initiale est lié à l'origine, c'est-à-dire au chimisme du carbone dissous.

III.4.2. - Pénétration du carbone dans les cycles hydrologiques, activité initiale du carbone dissous.

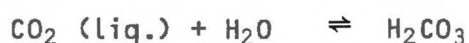
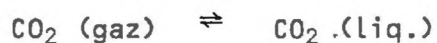
La pénétration du carbone dans l'hydrosphère suit donc deux voies différentes (figure A-15) :

- équilibre  $\text{CO}_2 - \text{CO}_3\text{H}_2$  à la surface des eaux libres,
- organo-synthèse via la phytosphère et l'assimilation chlorophyllienne.

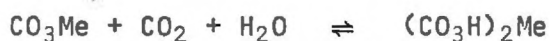
Après fermentation ou même seulement par respiration, la voie organique conduit elle-même à un dégagement de  $\text{CO}_2$  par décarboxylation. Ce  $\text{CO}_2$  est alors disponible pour s'intégrer à la suite des équilibres de dissociation des bicarbonates et des carbonates, de la même façon que dans la voie minérale. Cependant, la mise en solution du  $\text{CO}_2$ , premier terme de la série d'équilibres, est proportionnelle à la pression partielle du  $\text{CO}_2$  gazeux (loi de HENRY).

Sous l'effet de l'activité organique, la pression partielle de  $\text{CO}_2$  dans les sols est d'environ deux ordres de grandeur supérieure à celle de l'atmosphère ( $10^{-3,4}$  atm). Les sols constituent, de loin, le point le plus large passage du carbone entre l'atmosphère et la partie continentale de l'hydrosphère.

Le CO<sub>2</sub> qui se dissout dans l'eau des sols donne le départ à une chaîne de réactions de type :



qui reviennent à la mise en solution d'un carbonate solide, le plus souvent alcalino-terreux (Me = Ca ou Mg) sous l'action de l'eau agressive.



On devrait donc considérer l'activité du carbone dissous sous forme de bicarbonate comme le résultat d'un mélange équimoléculaire des deux espèces de carbone : le CO<sub>2</sub> porteur de <sup>14</sup>C et le carbonate solide généralement dépourvu de radiocarbone. Avec 100 % de carbone moderne dans le CO<sub>2</sub> d'origine biologique et 0 % dans le carbone minéral, on obtient facilement une activité initiale théorique de 50 % pour le bicarbonate dissous.

Dans la réalité, plusieurs mécanismes interviennent pour modifier ce trop simple schéma réactionnel :

- le carbone dissous comprend en général la coexistence d'au moins deux formes chimiques (CO<sub>2</sub> dissous - bicarbonate ou bicarbonate-carbonate),

- la relation phase liquide-phase solide ne correspond pas toujours à des réactions d'équilibre, et donc à la stoechiométrie, puisque le calcul montre que les eaux souterraines sont très souvent sursaturées vis-à-vis des carbonates,

- Le carbone en phase liquide est susceptible d'échanges isotopiques soit avec un excès de CO<sub>2</sub>, soit avec les carbonates solides de l'aquifère (THILO et MUNNICH, 1970).

III.4.3. - Différents modèles d'estimation de l'activité initiale.

Des approches différentes de l'activité initiale ont été proposées. VOGEL (1967, 1970) réalise une étude statistique de la teneur en <sup>14</sup>C du carbone dissous dans l'eau des sols d'Allemagne. A l'issue de plus de 100 mesures, il propose la relation :

$$A_0 = 85 \pm 5 \% \text{ de carbone moderne}$$

La critique de ce modèle réside essentiellement dans le fait qu'il ne prend pas en compte les modifications de la composition chimique et isotopique qui interviennent après le passage dans les sols.

TAMERS (1966, 1970, 1975) propose une correction fondée sur les teneurs molaires respectives en CO<sub>2</sub> dissous a et en bicarbonate b. En attribuant l'activité au CO<sub>2</sub> et à la moitié des bicarbonates, il vient :

$$A_0 = \frac{a + b/2}{a + b} \% \text{ carbone moderne}$$

Ce modèle purement chimique méconnaît évidemment toute possibilité d'échange isotopique.

PEARSON (1970, 1972, 1974) adopte une méthode fondée sur la large discrimination isotopique qui se produit dans le cycle du carbone-13, isotope stable du carbone au cours des différentes réactions. Les végétaux lors de la biosynthèse utilisent avec

préférence le carbone banal  $^{12}\text{C}$ . Cette règle de fonctionnement, très générale de l'activité enzymatique, conduit à un appauvrissement en  $^{13}\text{C}$  de la matière organique, et donc du  $\text{CO}_2$  des sols par rapport au  $\text{CO}_2$  du réservoir atmosphérique. En revanche, les carbonates sédimentaires sont enrichis en  $^{13}\text{C}$  par rapport à ce même  $\text{CO}_2$ . Les carbonates marins ont une composition isotopique voisine de zéro, ce qui est normal puisque l'étalon de l'échelle destinée à représer les teneurs en  $^{13}\text{C}$  est un carbonate de rostre de Bélemnite (P.D.B.I.). L'écart le plus généralement relevé entre carbonate marin et  $\text{CO}_2$  du sol est environ de 25 ‰ en  $^{13}\text{C}$ . En considérant que toutes les réactions se résument à des mélanges, il vient :

$$A_o = \frac{\delta_{\text{carbone tot. dissous}} - \delta_{\text{carbonate solide}}}{\delta_{\text{CO}_2 \text{ sol}} - \delta_{\text{carbonate solide}}} \approx \frac{\delta_{\text{carb. tol. dissous}}}{-25} \% \text{ carb. mod.}$$

Ce traitement simple conduit souvent à des valeurs cohérentes de  $A_o$ , mais il se révèle trop rigide en ce qui concerne les teneurs limites en  $^{13}\text{C}$  du  $\text{CO}_2$  des sols d'une part, du carbonate de l'aquifère d'autre part.

MOOK (1972) allie les traitements chimiques et isotopiques précédents, et introduit les différents facteurs de fractionnement qui affectent la répartition isotopique du carbone lors des diverses réactions mises en jeu. L'expression du bilan chimique et isotopique à l'issue des réactions s'écrit alors :

$$A_o = \frac{1}{a+b} [ aA_{ao} + bA_{bo} + (A_{be} - A_{bo}) \frac{(a+b)\delta_{\Sigma} - a\delta_{ao} - b\delta_{bo}}{\delta_{be} - \delta_{bo}} ] \% \text{ carb. mod.}$$

où a et b sont les concentrations en  $\text{CO}_2$  dissous et en bicarbonates,



avec  $\Sigma = a + b$ , les indices o et e désignent respectivement l'état initial ou final avant et après équilibre isotopique, A les activités du  $^{14}\text{C}$ ,  $\delta$  les teneurs en  $^{13}\text{C}$ .

Ce modèle est beaucoup plus raffiné que les précédents, mais se révèle très sensible aux variations de certains paramètres, en particulier  $\delta_{ao} + \epsilon$ .

FONTES et GARNIER (1976) proposent une approche fondée sur le bilan chimique des éléments liés aux carbonates solides mobilisés (alcalino-terreux et éventuellement carbonates alcalins). La concentration en carbone "mort" dissous  $C_M$  est alors donnée par :

$$mC_M \approx m\text{Ca}^{2+} + m\text{Mg}^{2+} + m \frac{\text{Na} + \text{K} - \text{Cl}}{2} - m\text{SO}_4^{2-}$$

que l'on peut aussi corriger de l'apport en alcalins dû au nitrates.

L'échange isotopique du carbone dissous est traité comme un mélange partiel d'une fraction ayant conservé sa composition isotopique et son activité initiales avec une fraction totalement équilibrée, soit avec l'encaissant carbonaté, soit avec un excès de  $\text{CO}_2$  gazeux. L'équation finale est :

$$A_o = \frac{1}{C_T} \left[ (C_T - C_M) A_{ao} + C_M A_M + \left( A_{ao} + \frac{2\epsilon}{10} - A_M \right) \frac{\delta_T C_T - \delta_M C_M - \delta_{ao} (C_T - C_M)}{(\delta_{ao} + \epsilon) - \delta_M} \right] \%$$

de carbone moderne

où C désigne les concentrations, A les activités  $^{14}\text{C}$  et  $\delta$  les compositions isotopiques ; les symboles T, M et ao se rapportent respectivement au carbone total dissous, au carbone mort mobilisé et au  $\text{CO}_2$  du sol ;  $\epsilon$  est pris comme le facteur d'enrichissement isotopique en ‰ entre le  $\text{CO}_2$  gazeux et le carbonate solide.

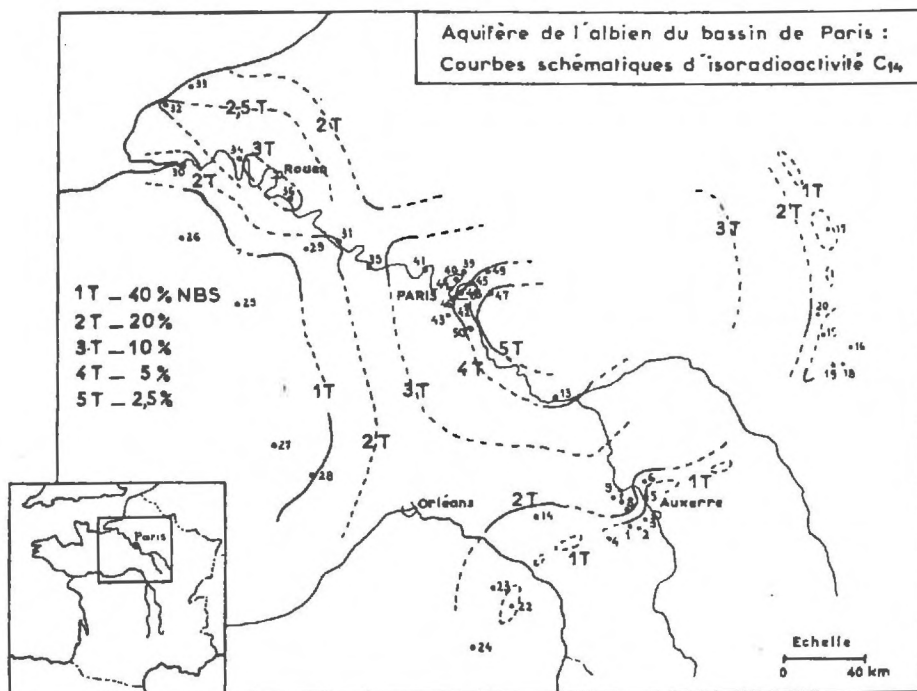


Figure A-16. Exemple d'évaluation de l'"âge" des eaux souterraines : la nappe de l'Albién du Bassin de Paris.

Les activités du carbone dissous ont été transcrites en termes de temps, exprimés ici en unités de période radioactive du  $^{14}\text{C}$ , soit 5 730 ans, en considérant que l'activité initiale est restée constante et égale à 80 % pour tous les échantillons analysés. Forts de cette simple hypothèse, les auteurs proposent les "âges" compris entre l'Actuel et environ 5 périodes de  $^{14}\text{C}$  pour les eaux captives de la nappe de l'Albién. D'après *EVIN et VUILLAUME (1970)*.

Ce modèle semble plus cohérent que ceux des approches précédentes, mais reste encore imparfait vis-à-vis en particulier des apports en  $\text{CO}_2$  dans l'aquifère lui-même, par exemple par oxydation de la matière organique ou par exhalaisons profondes.

III.4.4. - Recours aux isotopes du carbone en hydrologie.

A l'issue de la brève revue critique des divers modèles disponibles dans la littérature pour estimer les conditions aux limites de l'entrée du radiocarbone dans les nappes captives, il apparaît que le problème n'est pas encore définitivement réglé.

Les études de terrain qui apportent suffisamment d'éléments, ne sont pas encore assez nombreuses pour estimer les différentes approches en présence. En effet, il est clair que toutes les études d'évaluation du temps de transit souterrain des eaux selon un parcours souterrain défini par les points de collecte exige plusieurs opérations : précipitation totale du carbone dissous dans les eaux sous forme de carbonate de baryum en milieu alcalin ; mesure in situ du pH, de la température, du potentiel d'oxydo-réduction, de l'alcalinité ; analyse complète au laboratoire des ions majeurs avec un soin tout particulier pour les alcalino-terreux. Tout ceci requiert le déplacement sur le terrain d'un véritable laboratoire. En particulier, il est nécessaire de filtrer un témoin d'eau sur membrane colloïdale (pores < 0,8 micromètres) avant de le fixer à l'acide chlorhydrique supra-pur qui stabilise les teneurs en ions calcium et magnésium avant les analyses en laboratoire des ions majeurs dont le bilan sera complété sur un témoin non acidifié.

Jusqu'à une date encore récente, les corrections des âges apparents étaient généralement proposées sur la base d'une valeur de  $A_0$  plus ou moins proche des 85 % du modèle de Vogel (EVIN et VUILLAUME, 1970 ; figure A-16).



En certains cas, les auteurs n'ont point cherché à reconstituer une valeur pour l'activité initiale et se sont limités à la simple hypothèse que cette activité est restée constante tout au long de la période d'infiltration de la nappe captive (BORTOLAMI et al., 1973). En ce cas  $A_0$  disparaît de la relation qui donne la différence de temps de parcours entre deux points A et B de l'aquifère au long d'une direction d'écoulement :

$$t_B - t_A = - \frac{\tau}{\ln 2} \ln \frac{A_B}{A_A}$$

Bien entendu, cette approche ne tient pas compte des variations de la répartition isotopique du carbone sous l'effet, en particulier, des écarts climatiques qui ont pu intervenir au cours des époques, parfois fort longues et fort différentes, sur lesquelles s'est étalée la recharge d'une nappe captive. Les modifications de composition chimique en cours de cheminement de l'eau ne sont pas, non plus, considérées dans cette très simple hypothèse qui ne peut donc représenter qu'une large approximation. Une tentative de correction en a été proposée en considérant que l'augmentation de l'alcalinité en cours de trajet souterrain était due à une dilution par du carbone "mort" (BORTOLAMI et al., 1973).

Par ailleurs, l'interprétation des teneurs en carbone-14 demande, on l'a vu, la connaissance impérative des teneurs en  $^{13}\text{C}$ , mais aussi bien souvent les données des mesures de tritium. En effet, dans le rappel des principes, on a évoqué la double origine du  $^{14}\text{C}$ . Comme dans le cas du tritium, la balance entre l'apport des essais nucléaires et, surtout, thermonucléaires et l'absorption du  $\text{CO}_2$  dans le cycle photosynthétique, a conduit à un excès variable de  $^{14}\text{C}$  dans l'atmosphère. L'évolution des teneurs atmosphériques en  $^{14}\text{C}$  est assez comparable à celle du tritium dans les précipitations (figure A-17). Si l'on considère que le passage



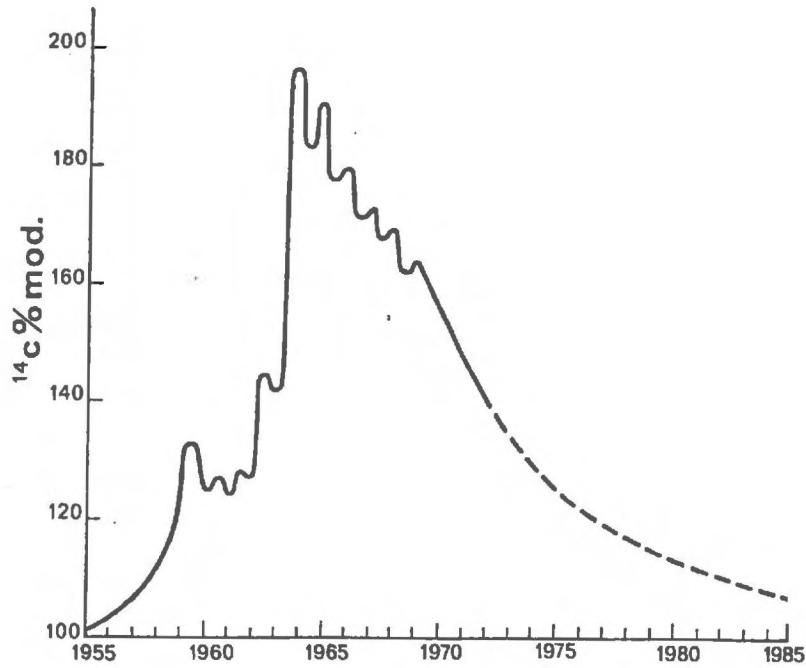


Figure A-17. L'excès de radiocarbonate apporté par les essais nucléaires.

A l'égal du tritium, le  $^{14}\text{C}$  injecté dans la stratosphère est délesté dans les basses couches sous forme de  $\text{CO}_2$ . L'allure générale des variations de teneur représente un traçage du milieu supplémentaire qui peut, par exemple, être confronté aux données du tritium dans l'étude des nappes libres. D'après NYDAL et al. (1971).

du  $^{14}\text{C}$  par la biosphère avant son entrée dans les eaux souterraines entraîne un déphasage d'environ 2 ans (THILO et MUNNICH, 1970). Les teneurs en  $^{14}\text{C}$  artificiel seront, en principe, liées aux teneurs en tritium. Ainsi, la présence de tritium permettra de déceler les contaminations par les eaux récentes qui rendent évidemment encore plus délicate l'interprétation des teneurs en  $^{14}\text{C}$ . D'un autre côté cependant, la présence de carbone-14 artificiel doté d'une variation initiale de concentration atmosphérique comparable à celle du tritium présente au contraire un intérêt supplémentaire pour l'étude des nappes libres. En ce cas, la décroissance radioactive est bien entendu parfaitement négligeable devant les temps de séjour moyens et le radio-carbone propose alors une équation supplémentaire pour les modèles de mélanges et de circulation.

### III.5. - *Autres isotopes dissous utilisés en hydrologie.*

#### III.5.1. - Isotopes du soufre.

##### Variations naturelles et principes d'utilisation.

Aux températures biologiques, l'activité bactérienne est la cause première des ségrégations isotopiques entre les espèces stables les plus fréquentes du soufre ("lourd" :  $^{34}\text{S}$ ) ("léger" :  $^{32}\text{S}$ ). Comme il est de règle pour tous les isotopes des éléments métabolisables, (cf. A.III.3.1.3.), la biosynthèse fait préférentiellement appel aux isotopes légers. La fraction non métabolisée de la réserve initiale s'en trouve enrichie en isotopes lourds. Dans le cas du soufre, on peut considérer que la composition isotopique  $\delta^{34}\text{S}$ <sup>(1)</sup> du sulfate du réservoir marin correspond à la sommation de différents effets qui se compensent à chaque instant c'est-à-dire à un état stationnaire.

---

(1) Pour le soufre, le zéro de l'échelle relative  $\delta$  correspond à la teneur en  $^{34}\text{S}$  d'un sulfure (troïlite) provenant d'une météorite précipitée à Cañon Diablo (New-Mexico, U.S.A.). L'étalon est ainsi dénommé "Canon Diablo : CD".

On aura donc :

$$\delta^{34}\text{S} (\text{SO}_4^{2-} \text{ marin actuel}) = \text{constant} = + 20,3 \text{ ‰ vs CD}$$

Dans la littérature, les autres domaines de variation se définissent comme suit (voir RIGHTMIRE et al., 1974) :

$$\delta^{34}\text{S} (\text{évaaporites anciennes}) = + 8 \text{ à } + 32$$

$$\delta^{34}\text{S} (\text{SO}_4^{2-}, \text{précipitations}) = - 1,5 \text{ à } + 19,4$$

$$\delta^{34}\text{S} (\text{H}_2\text{S biogénique}) = - 35 \text{ à } + 4,0$$

$$\delta^{34}\text{S} (\text{sulfures sédimentaires}) = - 35 \text{ à } + 42$$

Compte tenu de la précision des mesures ( $\sigma \approx 0,2 \text{ ‰}$ ), les variations naturelles sont confortables et la méthode est fort sensible. L'analyse isotopique du soufre dissous permet dans une large mesure d'en préciser l'origine au prix de certaines précautions dans l'usage de la technique. En particulier, les conditions de collection doivent éliminer toute possibilité de réduction ou d'oxydation postérieure au prélèvement par blocage des réactions. Les variations de teneur en  $^{34}\text{S}$  doivent être confrontées à des paramètres chimiques : teneurs totales en  $\text{SO}_4^{2-}$ , rapport  $\text{Cl}^-/\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{S}^{2-}/\text{SO}_4^{2-}$ .

#### Acquis et perspectives.

Les études, encore rares, sont cependant prometteuses. Dans l'aquifère captif de Floride, RIGHTMIRE et al. (1974) distinguent entre différentes sources de sulfate dissous : précipitations maritimes chargées en sulfate, mise en solution de gypse de l'aquifère, et mélange avec des eaux marines. Dans l'aquifère Edwards au Texas, ces mêmes auteurs mettent en évidence l'apport éolien de gypse permien à la surface de la zone de recharge et la remontée de sulfures profonds liés à des saumures.

Dans le Latium, ZUPPI et al., (1974) interprètent les variations de teneurs en  $^{34}\text{S}$  (et oxygène-18) des sulfates comme le produit de deux phénomènes : répartition d'une réserve initiale de soufre entre  $\text{S}^{\text{=}}$  et  $\text{SO}_4^{2-}$  en fonction des potentiels redox du milieu et mélange entre un soufre de type sédimentaire et un soufre profond périvolcanique.

Les possibilités d'exploitation à des fins hydrologiques des variations de teneur en  $^{34}\text{S}$  sont également intéressantes pour les enquêtes sur les circuits chauds. Les formes réduites et oxydées du soufre entrent en réaction chimique et isotopique et l'écart entre les teneurs respectives en  $^{34}\text{S}$  est alors une fonction de la température de réaction. C'est le principe d'un géothermomètre.

### III.5.2. - Isotopes de l'azote.

#### Variations naturelles du rapport $^{15}\text{N}/^{14}\text{N}$ .

Les nombreux degrés d'oxydation possibles de l'azote - 3,0, + 3, + 5, les conditions souvent métaboliques de son transfert d'un point à l'autre de son cycle laissent pronostiquer un déterminisme complexe des variations de teneur en isotopes lourds.

Les recherches exploratoires (voir MARIOTTI et LETOLLE, 1976 ; MARIOTTI et al., 1976) indiqueraient que les variations de teneur en  $^{15}\text{N}$  des nitrates des eaux peuvent être schématisées comme la sommation de deux effets :

- mélanges en provenance de deux réservoirs en état stationnaire et donc à composition isotopique constante :

- atmosphère  $\delta^{15}\text{N} = 0$  <sup>(1)</sup> ‰,

- complexe organique des sols  $\delta^{15}\text{N} \approx + 4$  à  $+ 10$  ‰

---

(1) L'étalon de l'échelle relative  $\delta$  est précisément la composition isotopique moyenne, réputée constante, de l'azote atmosphérique en tous points de la troposphère.



- biodégradation partielle des composés ammoniacaux comparable à une distillation partielle et se traduisant par le départ d'une "tête" pauvre en  $^{15}\text{N}$  (effet enzymatique) sous forme  $\text{NH}_3$  et la constitution d'un résidu non métabolisé riche en  $^{15}\text{N}$ .

#### Intérêt hydrologique.

De nos jours et dans la plupart des régions de culture, la voie d'entrée principale de l'azote atmosphérique dans les cycles hydrologiques passe par la fertilisation nitrique (les engrais nitriques provenant d'une réaction initiale d'oxydation de l'azote de l'air, au cours de laquelle la composition isotopique  $\delta^{15}\text{N}$  demeure préservée :  $\delta^{15}\text{N}$  fertilisants  $\approx 0$ ).

Le mélange des nitrates du complexe organique des sols ( $\delta^{15}\text{N} = +4$  à  $+10$  avec  $+8$  à  $+10$  pour les valeurs les plus fréquentes au sein des sols de grande culture) avec les fertilisants nitriques non métabolisés sera donc mis en évidence par la composition isotopique de l'azote nitrique total qui s'inscrira à une valeur intermédiaire.

Les apports ammoniacaux soumis à fermentation avant oxydation en nitrates sont essentiellement imputables aux déchets animaux et humains. Leur contribution à l'azote nitrique dissous sera détectée par l'élévation, parfois considérable ( $+20$  à  $+30$  ‰) des teneurs en  $^{15}\text{N}$ .

Il est clair que cette nouvelle technique est appelée à connaître de larges développements pour les investigations sur l'origine des teneurs en azote des eaux souterraines et de surface.

#### IV - CONCLUSION.

Le traçage par les isotopes du milieu constitutifs de la molécule d'eau : oxygène-18, deuterium, tritium, offre à l'hydrologue un outil supplémentaire doté de caractéristiques originales.

- Traçage initial des précipitations généralement en régime permanent.
- Marquage intime des molécules.
- Indépendance du traçage initial vis-à-vis des réactions chimiques dans le cas des circuits froids.
- Possibilité d'utilisation autonome.

Ces propriétés font des isotopes constitutifs un ensemble bien adapté à la reconstitution de l'origine et de l'histoire des eaux au cours de leurs cycles.

Le traçage par les isotopes du milieu dissous est fort différent et s'apparente à un traçage chimique. L'interprétation qui doit faire appel à la connaissance des conditions physico-chimiques du milieu, autorise la reconstitution de "l'âge" du carbone dissous ( $^{14}\text{C}$ ,  $^{13}\text{C}$ ), de l'origine du soufre ( $^{34}\text{S}$ ) et de l'azote ( $^{15}\text{N}$ ).

Les perspectives d'utilisation du traçage par les isotopes du milieu seront peut-être étendues à d'autres éléments comme le silicium, l'argon ou le krypton qui comportent des isotopes marqueurs de temps ( $^{32}\text{Si}$ ,  $\tau \approx 500$  ans ;  $^{39}\text{Ar}$ ,  $\tau = 270$  ans ;  $^{85}\text{Kr}$ ,  $\tau = 10,4$  ans).

Enfin, on doit tenir en compte la concentration croissante dans toute l'hydrosphère de certains composés industriels inertes. Par exemple, le fréon que l'on dose facilement par une méthode nucléaire, peut à l'avenir enrichir la gamme des traceurs du milieu.

B - INVESTIGATION DES CONDITIONS DE TRACAGE  
DES EAUX NATURELLES EN ISOTOPES STABLES

I - LES EPISODES DE PRECIPITATION.

Il a été dit que, vue sous l'angle isotopique (A-III-2.1.2) la condensation de l'eau obéissait dans l'ensemble à un schéma simple de distillation fractionnée des isotopes stables à partir d'une réserve de vapeur en état stationnaire. Par état stationnaire de la réserve atmosphérique, on entend un système où la quantité d'isotopes est à chaque instant conservée. Cela s'applique à la vapeur atmosphérique, en permanence renouvelée dans les mêmes conditions d'évaporation à partir des masses océaniques qui représentent la quasi totalité de l'hydrosphère, c'est-à-dire un réservoir de composition isotopique initiale constante.

A chaque instant, la conservation des isotopes pendant la condensation peut s'exprimer par :

$$dQ_V \cdot \delta_L = d(\delta_V Q_V) = \delta_V \cdot dQ_V + Q_V \cdot d\delta_V \quad (\text{Eq.B-I.1}) \quad (\text{fig.E})$$

où  $\delta$  : composition isotopique

Q : quantité

V et L : désignent la vapeur et le liquide en équilibre

En introduisant dans cette relation l'expression du fractionnement à la condensation :

$$\epsilon = (\alpha - 1) = \frac{\delta_L + 1}{\delta_V + 1} - 1 = \frac{\delta_L - \delta_V}{\delta_V + 1} \quad (\text{Eq.B-I.2})$$

ou, en simplifiant, avec une approximation meilleure que 1% dans le cas de l'oxygène 18 :

$$\epsilon \approx \delta_L - \delta_V \quad (\text{Eq.B-I.3})$$

## CONDENSATION

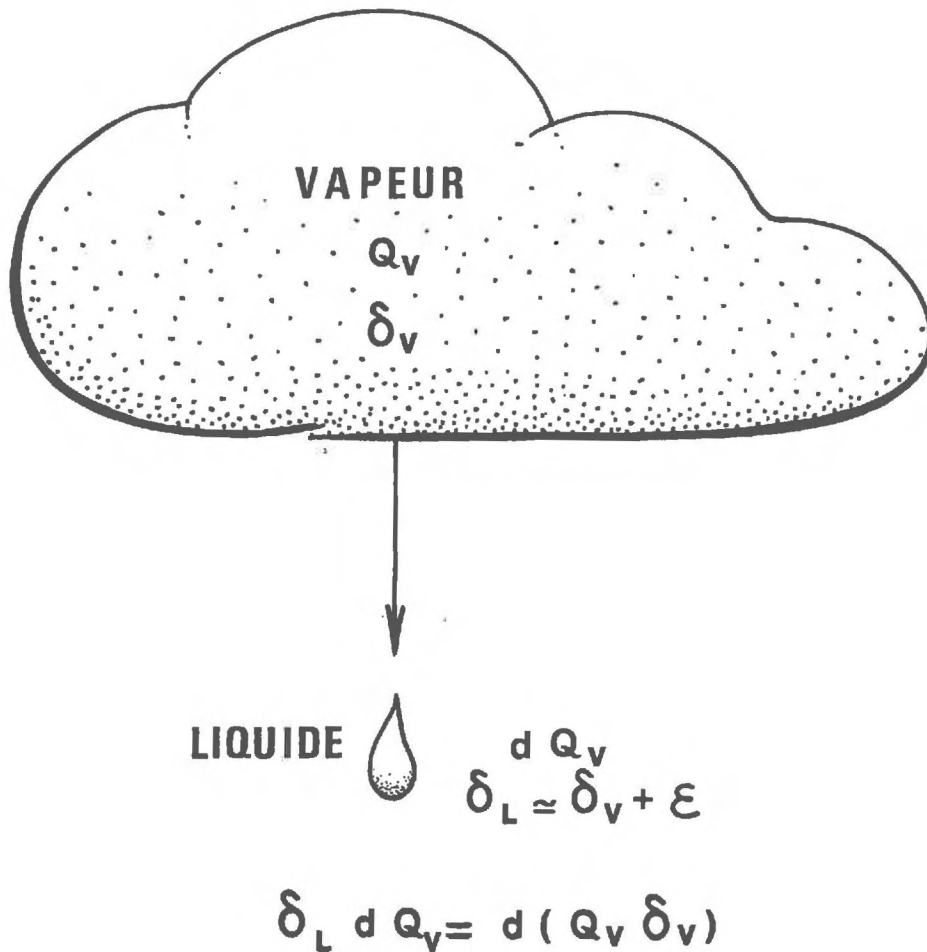


Fig. B-1. Effet isotopique à la condensation.

Le liquide apparaît lorsque la saturation est atteinte, c'est-à-dire qu'il s'agit d'un processus d'équilibre. Le fractionnement vapeur-liquide à l'équilibre peut être pris en compte pour rendre compte du phénomène, avec  $\alpha = R_L/R_V$

( $\alpha$  = facteur de fractionnement,  $R = {}^{18}\text{O}/{}^{16}\text{O}$  ou  ${}^2\text{H}/{}^1\text{H}$ ,  $V$  = vapeur,  $L$  = liquide) ou encore  $\epsilon = \alpha - 1$ , qui désigne le facteur d'enrichissement isotopique.

Si, à chaque instant, la masse de liquide condensé est faible devant la réserve de vapeur et si le liquide est immédiatement soustrait du contact avec le liquide, on peut appliquer au phénomène les termes d'une équation de distillation (modèle de Rayleigh). C'est le cas à la base d'un nuage au moment de la chute d'une gouttelette, ainsi qu'il est représenté ci-dessus.



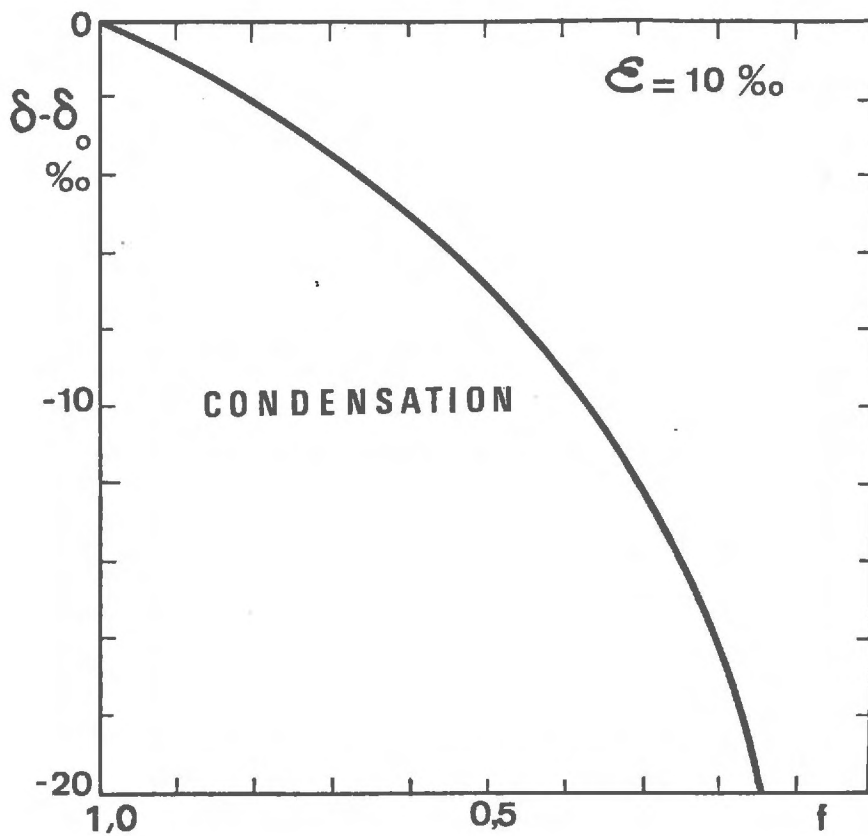


Fig. B-2. Distillation de Rayleigh.

Evolution de la teneur en isotopes lourds d'une réserve de vapeur soumise à condensation dans les conditions décrites par la fig. B-1. L'appauvrissement exponentiel de la vapeur en isotopes lourds par rapport au début du processus est décrit par l'équation

$$\delta_V - \delta_V^\circ = \epsilon \ln f$$

( $\delta$  = composition isotopique,  $\delta^\circ$  = état initial,  $\epsilon$  = facteur d'enrichissement,  $f$  = fraction restante de vapeur)

il vient après intégration avec les conditions initiales  $\delta = \delta^{\circ}$ ,  $Q = Q_0$  :

$$\delta_V - \delta_V^{\circ} \approx \epsilon \ln \frac{Q}{Q_0} = \epsilon \ln f \quad (\text{Eq. B-I.4})$$

où  $f$  est la fraction restante de vapeur (fig. B.2).

Ce type de relation n'est autre que l'équation générale la plus simple de distillation (distillation de Rayleigh) dans laquelle le liquide est constamment et immédiatement soustrait au système. C'est assez bien le cas de la base d'un nuage (DANSGAARD, 1954, 1961, 1964 ; CRAIG, 1961b ; FRIEDMAN, 1953).

Cependant, pour les essais d'application des isotopes du milieu, la référence aux précipitations, source unique des eaux continentales, est capitale (cf. A.II). Il est nécessaire de poursuivre avec différentes mailles d'observation (épisodes isolés, moyennes mensuelles, moyennes annuelles) et sous différentes situations géographiques et climatiques, les nombreuses études déjà disponibles dans la littérature.

### *1.1. - Précipitations isolées en différentes stations (fig. B.3).*

#### *1.1.1 - Région parisienne (Aubervilliers : 48°01 N, 29°30 E ; 30 m).*

- Collection : pratiquement tous les épisodes de précipitations de l'année 1964, soit environ 90.

- Mesures annexes : hauteur et type de précipitation, profil thermique de l'atmosphère, hauteur et température de la tropopause, profil et vitesse du vent, humidité relative au sol, altitude (radar) de la formation nuageuse précipitante.

- Le document : (FONTES, KIENTZEL, OLIVE, 1976). Dans le diagramme  $\delta^{18}\text{O}$  - température au sol (fig. B.4), les valeurs des pluies

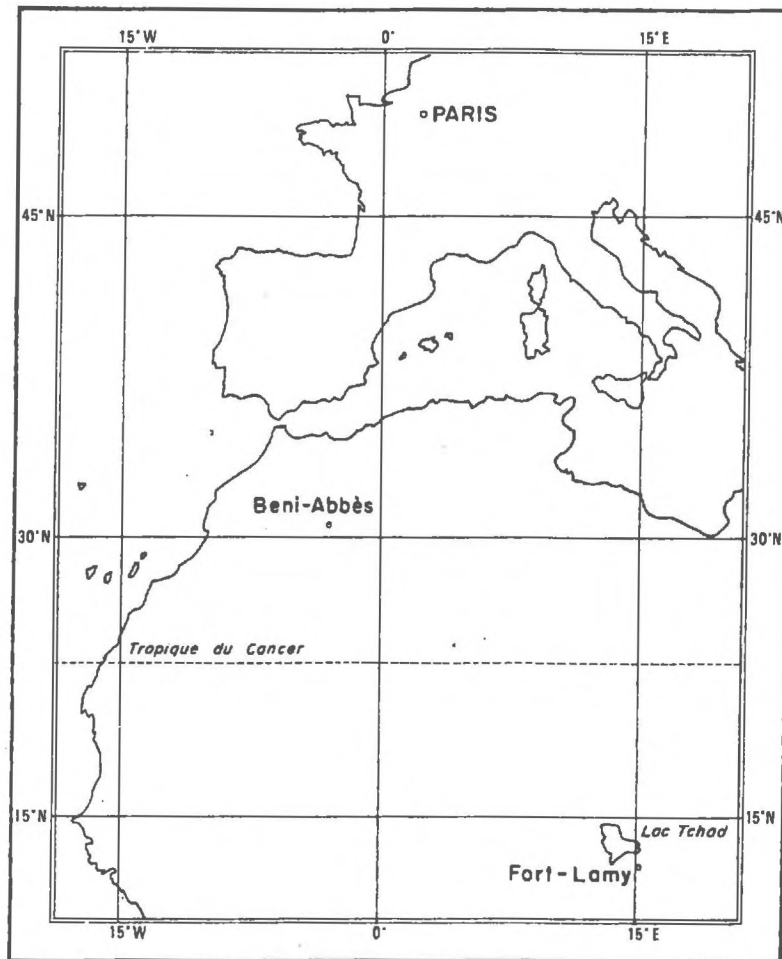


Fig. B-3. Stations d'étude de la teneur en isotopes lourds des précipitations.

Les stations ont été choisies de façon à couvrir une bande de latitudes correspondant aux régions sous étude. Travail effectué grâce à l'assistance du Centre d'Etudes et de Recherches Atomiques Militaires (Aubervilliers), du Centre de Recherches sur les Zones Arides (Béni-Abbès) et de l'Office de la Recherche Scientifique et Technique Outre-Mer (Fort-Lamy, actuellement N'djaména).

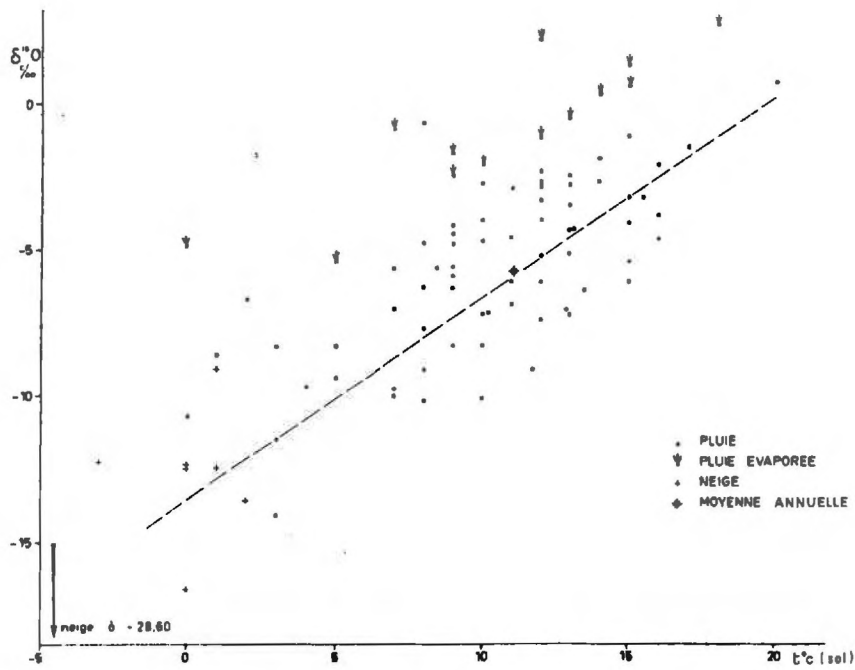


Fig: B-4. Relation température-teneur en  $^{18}\text{O}$  dans les précipitations de l'année 1964 à Aubervilliers (précipitations individuelles).

La température, repérée au sol pendant l'épisode pluvieux, est en médiocre corrélation avec la teneur en  $^{18}\text{O}$ . Les effets météorologiques locaux sont prépondérants à cette échelle d'observation. Nombre d'épisodes pluvieux de faible intensité ont subi une évaporation partielle en cours de chute. D'après FONTES, KIENZEL et OLIVE (1976).



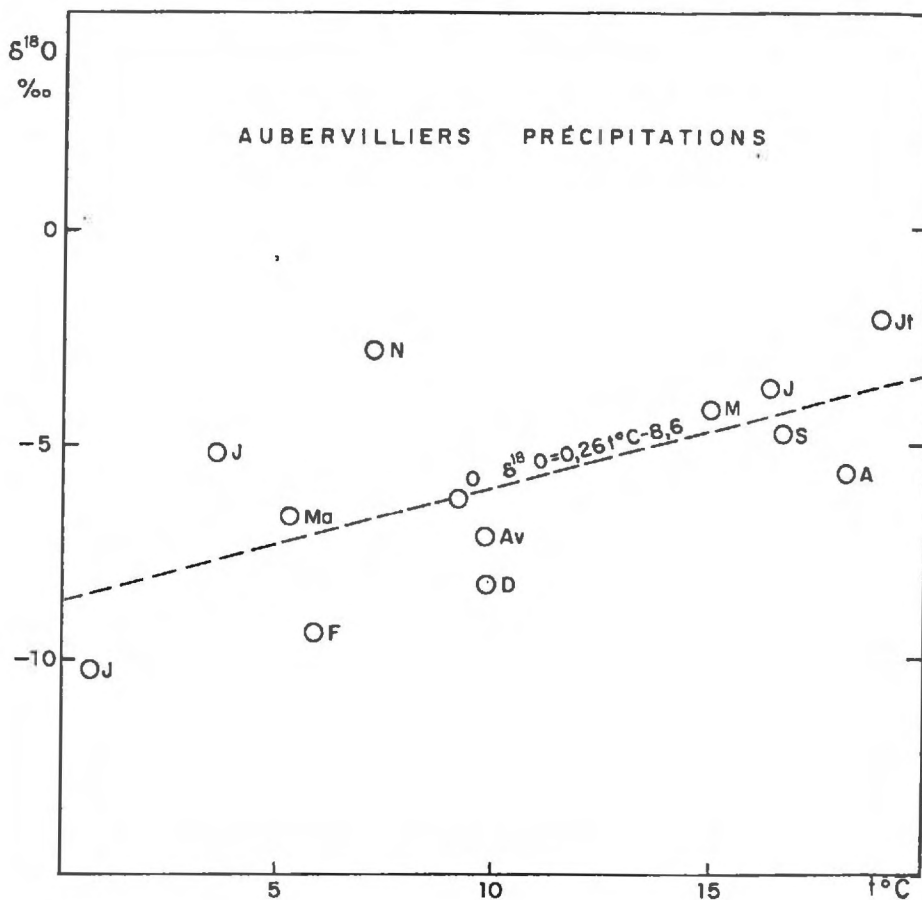


Fig. B-5. Relation température-teneur en <sup>18</sup>O dans les précipitations de 1964 à Aubervilliers (moyennes mensuelles).

La corrélation est sensiblement meilleure que dans le cas des précipitations individuelles. D'après FONTES, KIENZ, et FONTES (1976).

individuelles sont très largement dispersées selon une tendance et non point une corrélation linéaire. Si l'on regarde les valeurs moyennes (fig. B.5), la tendance devient une médiocre corrélation bien différente de la relation établie par DANSGAARD (1964, op.cit.) pour les valeurs annuelles moyennes à l'échelle mondiale. Cependant la valeur annuelle moyenne pondérée que l'on calcule à Aubervilliers ( $\delta^{18}O = 5,72\%$ ) s'inscrit à proximité de la relation de DANSGAARD. La corrélation de nos valeurs est sensiblement meilleure avec les températures au sol plutôt qu'avec les températures de la base du nuage. Les pluies les plus fines et les plus faibles (inférieures à 2 mm en 24 heures) montrent un enrichissement général en isotopes lourds par rapport aux précipitations plus intenses et plus importantes. Ceci ne s'applique pas aux quelques échantillons de neige qui, rapportés aux températures de précipitation (sol et base du nuage) apparaissent au contraire très appauvris en oxygène 18.

- L'interprétation : La relation  $\delta^{18}O$ -température est le reflet d'une rééquilibration que l'on sait rapide (WOODCOCK et FRIEDMAN, 1963) des gouttelettes avec la vapeur ambiante pendant la traversée du profil d'atmosphère. C'est donc la température au sol qui gouverne finalement la teneur en isotopes stables. Les neiges échappent assez largement à ce schéma, la vitesse de la réaction isotopique d'échange solide-vapeur étant vraisemblablement plus faible que celle du couple liquide-vapeur. De plus le fractionnement global à la condensation vapeur-solide est plus fort d'environ 2 à 3 % (O'NEIL, 1968) que l'écart vapeur-liquide. Ces deux effets jouent dans le même sens pour rendre compte des très faibles teneurs en isotopes lourds de certaines neiges. Les gouttelettes les plus fines pour lesquelles la surface spécifique ( $cm^2/g$ ) est la plus forte subissent une évaporation poussée. Le caractère réduit de la précipitation n'autorise cependant pas une saturation complète du profil de chute : l'eau s'évapore et s'enrichit en isotopes lourds.

La dispersion des points est en partie due à cette évaporation secondaire mais également à l'histoire des dépressions qui viennent

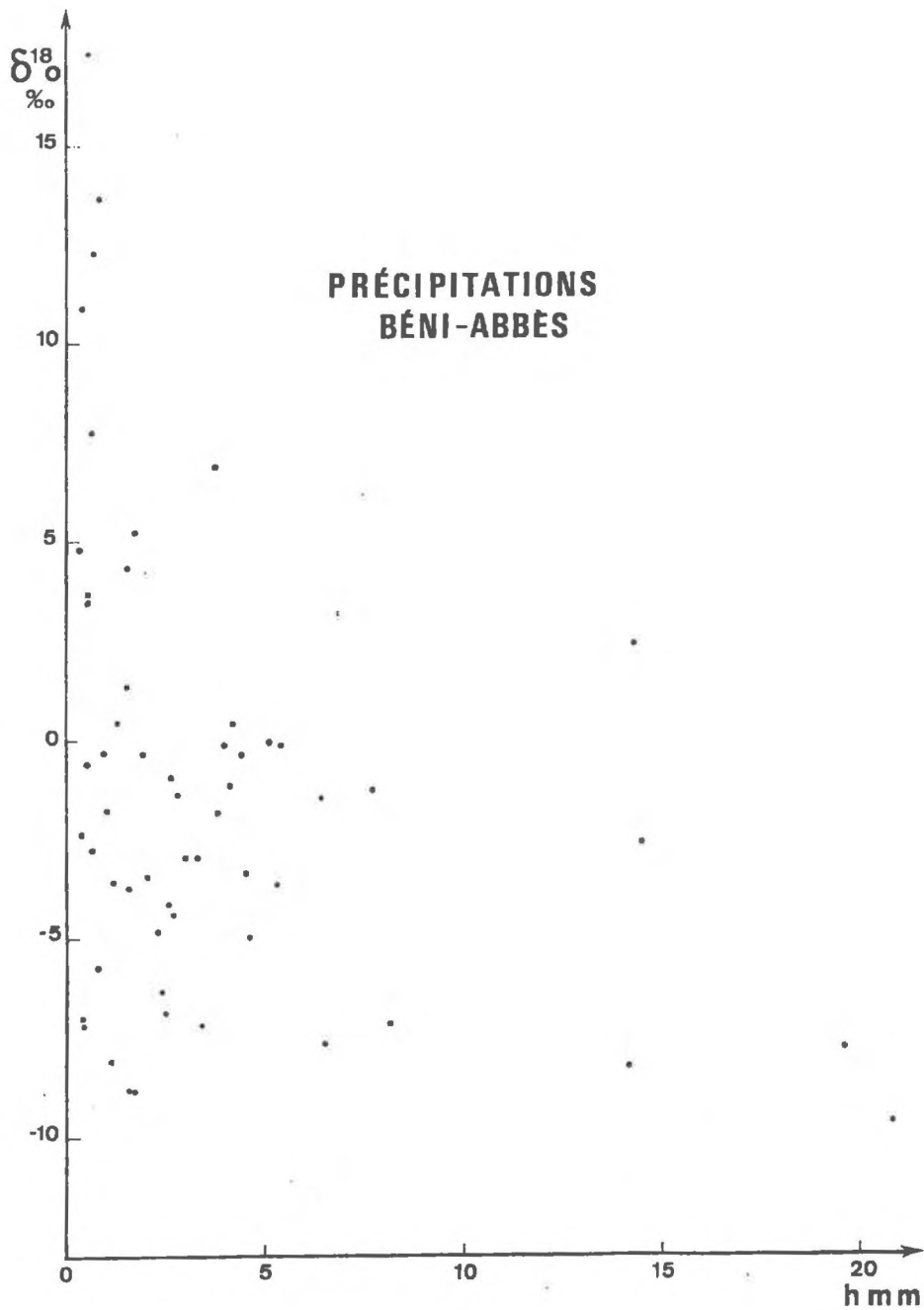


Fig. B-6. Relation hauteur d'eau précipitée-teneur en  $^{18}O$  dans les précipitations du Sahara nord-occidental (précipitations individuelles).

La tendance inverse indique que le facteur dominant est la réévaporation des gouttelettes pendant la chute. La majorité des précipitations procède clairement de condensations très froides, de type front polaire, et se trouve enrichie en isotopes lourds par le passage partiel en phase vapeur. Période d'observation : 1966 à 1974.  
D'après CONRAD et FONTES (1970), GONFIANTINI et al. (1974), CONRAD et FONTES (inédit).

crever sur la région parisienne. La vapeur n'a pas une source unique, elle provient de mélanges qui ont parfois reflué à plusieurs reprises sur les fronts froids de l'Est du Bassin de Paris. Les prélèvements dans les formations majeures au-dessus de la Rhénanie (TAYLOR, 1969) mettent en évidence cette nature composite de la vapeur dans les zones à circulations atmosphériques complexes.

I.1.2 - Sahara nord-occidental (Béni-Abbès :  
30°08 N, 2°11 W; 498 m).

- Collection : tous les épisodes de pluie entre 1966 et 1974 (CONRAD et FONTES, 1970; GONFIANTINI et al., 1974; CONRAD et FONTES, en préparation).

- Mesures annexes : hauteurs de pluie.

- Le document (fig. B-6) : les eaux correspondant aux précipitations les plus fortes sont en général les plus appauvries en  $^{18}\text{O}$ , mais ce n'est pas la règle. Les valeurs extrêmes montrent un écart voisin de 30 % (+ 17,5 à - 12,3 %). La moyenne pondérée s'inscrit à  $\delta^{18}\text{O} \approx - 3,6$  ‰ pour une température moyenne de 22,5°C.

- L'interprétation : aucune relation n'est à attendre entre la température au sol et la composition isotopique. Les pluies procèdent de condensations très hautes et parfois très froides correspondant pour la plupart à des occlusions de fronts polaires (DUBIEF, 1959-60). L'évaporation en cours de chute est intense ainsi que l'enrichissement isotopique qu'elle engendre. Le facteur essentiel qui règle l'évaporation des gouttelettes est probablement l'intensité de la précipitation. Le taux d'évaporation exprimé par le rapport entre la quantité de liquide initialement condensé et la quantité qui parvient à la surface du sol ne peut se calculer avec précision. L'application d'un modèle d'évaporation en eau douce (cf.B-II.2.2.) avec les paramètres suivants : humidité relative 25 %, température moyenne 20°C, facteur d'enrichissement 15 ‰, composition isotopique de la vapeur d'eau atmosphérique - 20 ‰ indique une évaporation supérieure à 95 % pour un écart de 24 ‰.



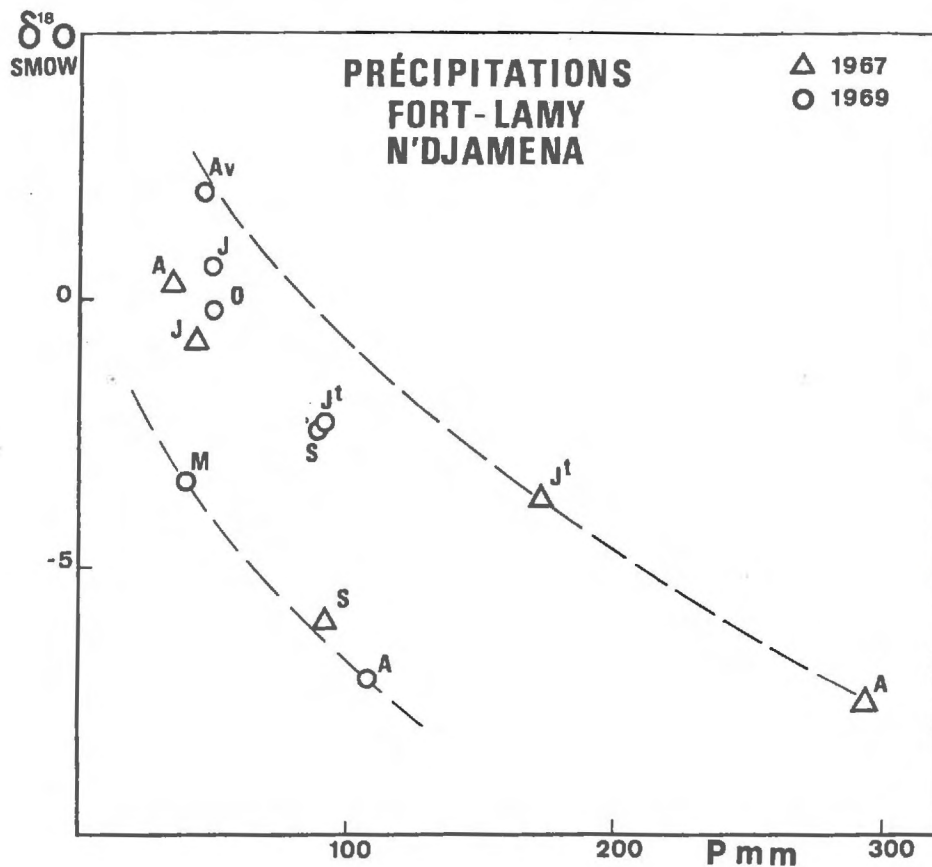


Fig. B-7. Composition isotopique des précipitations à Fort-Lamy (N'djaména) (moyennes mensuelles pondérées).

Les teneurs en isotopes lourds sont essentiellement gouvernées par le profil d'humidité qui autorise ou, au contraire, limite la réévaporation des précipitations vers l'atmosphère et l'enrichissement en  $^{18}O$  qui en découle.

Au coeur de la saison des pluies (août), la composition isotopique est minimale.

Période d'observation : 1967 et 1969. FONTES (inédit).

L'approche est évidemment grossière mais confirmerait que le Sahara est une région fort pluvieuse où les pluies ne parviennent au sol qu'à l'état de traces<sup>(1)</sup>.

A noter que certaines eaux météoriques contemporaines peuvent montrer de très basses teneurs en  $^{18}\text{O}$  voisines de  $-10\text{‰}$ . La présence d'eaux souterraines très appauvries en  $^{18}\text{O}$  ne saurait constituer un argument suffisant pour admettre une recharge ancienne héritée d'un climat plus frais, en particulier en nappe libre.

I.1.3 - Afrique intertropicale (N'djaména :  
 $12^{\circ}13\text{ N}$ ,  $15^{\circ}03\text{ E}$ ; 294 m).

- Collection : toutes les pluies de 1967 (53 échantillons).

- Mesures annexes : hauteur et intensités des pluies, températures, humidité relative.

- Le document : (FONTES, inédit) : (fig. B-7). Les valeurs manifestent une tendance régulière qui épouse l'évolution de la saison humide. Après les valeurs fortes ( $\delta^{18}\text{O} \approx +3$ ) du début de saison humide (fin avril - début mai), on voit diminuer les teneurs au fur et à mesure que les pluies augmentent en fréquence, hauteur et intensité, avec des valeurs très basses à la fin août ( $\delta^{18}\text{O} \approx -12\text{‰}$ ). Puis les concentrations en isotopes lourds croissent à nouveau jusqu'à la mi-octobre ( $\delta^{18}\text{O} \approx -1\text{‰}$ ), fin de la saison des pluies. La moyenne pondérée sur 656 mm s'inscrit à  $\delta^{18}\text{O} = -5,32\text{‰}$ .

- L'interprétation : là encore, il n'y a pas de relation, même lointaine, entre la température au sol et la composition isotopique des pluies. La vapeur de mousson venue du Golfe de Guinée subit, à partir d'un réservoir à teneur assez constante en isotopes lourds, une condensation partielle dont le produit se trouve largement évaporé tant que le profil d'humidité de l'atmosphère n'est pas saturé ou proche de la saturation. Le facteur essentiel de variation de teneur

---

(1) L'observation d'averses dont la chute s'interrompt "à quelques hectomètres en l'air" a été réalisée récemment dans le Hoggar (MILLOT, comm.pers.).

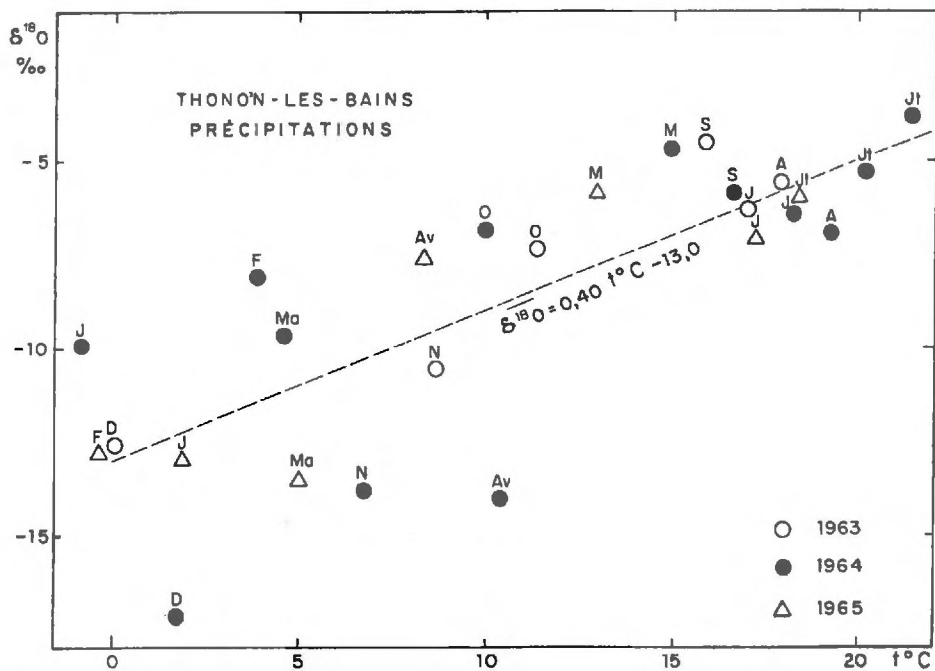


Fig. B-8. Détermination indirecte du gradient de composition isotopique sur le versant au Sud du Léman (Thonon-les-Bains).

La variation de la composition isotopique moyenne pondérée des précipitations en fonction de la température moyenne annuelle (+ 0,7 ‰/100 m) peut être traduite en terme de gradient isotopique en altitude sur la base du profil de température sur les versants (environ - 0,6°C/100 m). La valeur calculée est de - 0,4 ‰/100 m. D'après FONTES et al. (1967).

en isotopes lourds est l'écart entre les valeurs de l'humidité relative avant la pluie et au début de l'épisode pluvieux. Un autre facteur déterminant est l'intensité de l'épisode pluvieux.

### *1.2. - Gradients isotopiques en altitude.*

La connaissance du gradient local de variation de teneur en isotopes lourds avec l'altitude est essentielle aux interprétations hydrogéologiques puisqu'elle permet de proposer une "altitude isotopique de recharge" (ZUPPI et al., 1974). Le principe en est très simple :

altitude isotopique de recharge = altitude du point d'eau +  $\frac{\delta - \bar{\delta}_p}{k}$

où  $\delta$  est la composition isotopique au point d'eau,  $\bar{\delta}_p$  est la composition isotopique moyenne des précipitations à l'altitude du point d'eau,  $k$  le gradient isotopique en altitude (cf.C.I.).

#### *1.2.1 - Le versant au Sud du Léman (FONTES et al., 1967).*

Les faits : (fig.B-8). La teneur moyenne mensuelle des précipitations en  $^{18}\text{O}$  est portée en fonction des moyennes mensuelles de température à la station de Thonon-les-Bains. La variation est de 0,7 ‰/°C. Dans la région, le gradient thermique en altitude est environ de - 0,6°C/100 m. On obtient donc :

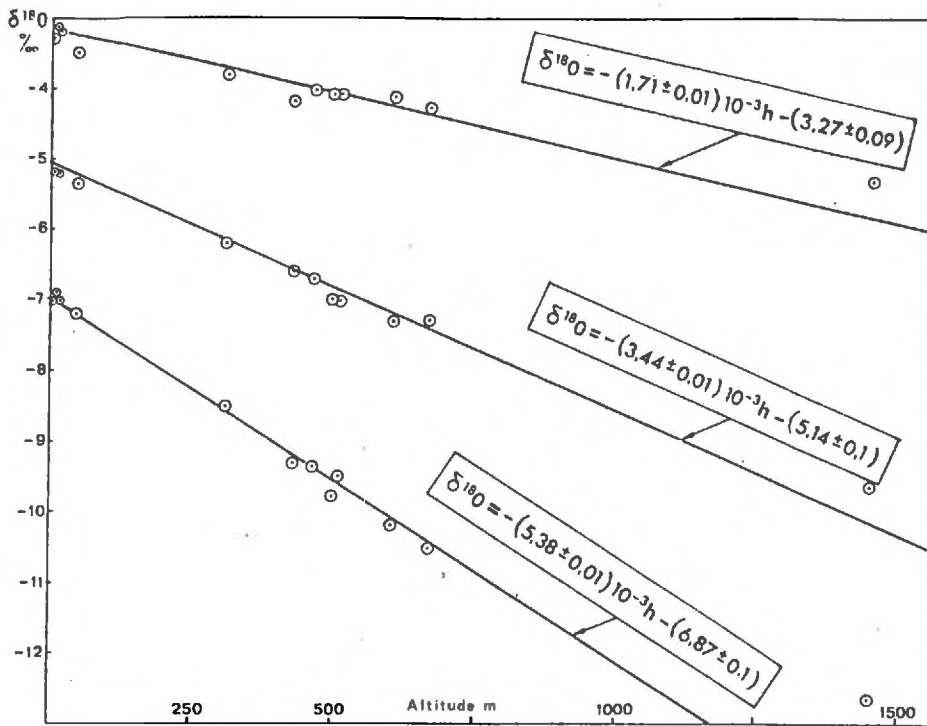
$$k = 0,7 \times (- 0,6) = - 0,4 \text{ ‰/100 m.}$$

Discussion : il s'agit d'une valeur obtenue indirectement et donc largement frappée d'incertitude. Dans cette région d'Europe, des gradients comparables ont été proposés par différents auteurs : - 0,30 ‰/100 m en Tchécoslovaquie (DINCER et al., 1970), - 0,50 ‰/100 m sur les pentes du Mont-Blanc (valeur calculée sur la base des teneurs en deuterium de MOSER et STICHLER, 1970).

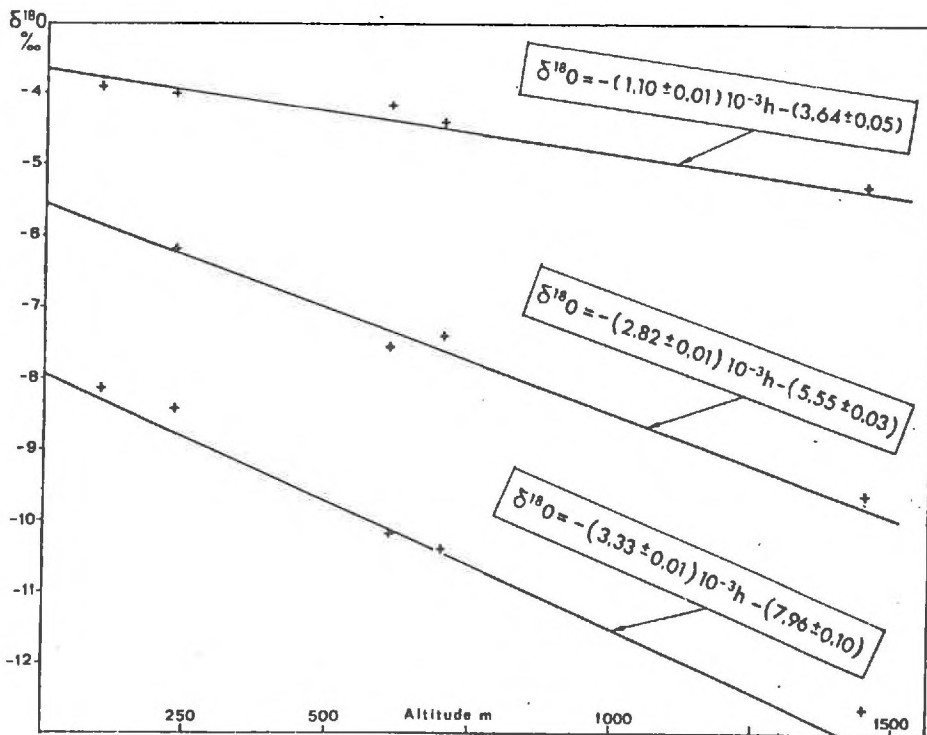
#### *1.2.2 - Une coupe dans l'Apennin romain (ZUPPI et al., 1974).*

Les faits : (fig.B-9 a et b). Les stations s'étagent entre le niveau de la mer sur le versant tyrrhénien, la ligne de crête, ici





a



b

Fig. B-9. Profil isotopique en altitude de l'Apennin du Latium.

- a. versant tyrrhénien
- b. versant adriatique.

Valeurs moyennes pondérées :

- courbes supérieures : valeurs estivales
- courbes inférieures : valeurs hivernales
- courbes moyennes : valeurs annuelles.

Les variations saisonnières considérables des gradients isotopiques en altitude sont imputables aux différents régimes météorologiques de la péninsule italienne.  
D'après ZUPPI et al. (1974).

vers 1500 m, et redescendent vers la côte adriatique. Les gradients moyens sont établis sur des échantillons mensuels moyens pondérés avec 12 mois d'observation (nov. 71 à oct. 72) :

versant tyrrhénien : - 0,34 ‰ ± 0,01/100 m

versant adriatique : - 0,28 ‰ ± 0,01/100 m

Discussion : Les gradients annuels moyens sont en réalité le produit de gradients mensuels ou saisonniers fort différents :

gradients estivaux } versant tyrrhénien : 0,17 ± 0,01 ‰/100 m  
juin, juillet, août } versant adriatique : 0,11 ± 0,01 ‰/100 m

gradients hivernaux } versant tyrrhénien : -0,54 ± 0,01 ‰/100 m  
déc., janv., fév. } versant adriatique : -0,33 ± 0,01 ‰/100 m

Il est clair que les "altitudes isotopiques de recharge" devront donc être confrontées à un examen hydrogéologique des conditions et des périodes d'infiltration avant de pouvoir être converties en altitudes des aires de recharge.

### I.2.3 - Les pentes du Mont Cameroun (FONTES et OLIVRY, 1976).

Les données (fig.B-10) : on dispose de deux années d'enregistrements correspondant à des échantillons annuels moyens. Une vingtaine de dispositifs collecteurs sont répartis au flanc de la montagne entre 0 et 4000 m. Ils sont relevés une fois l'an par les soins de l'ORSTOM. L'eau collectée est mise hors évaporation par une couche d'huile de paraffine préalablement épandue au fond du pluviomètre totalisateur. Les teneurs relevées indiquent en 1972 comme en 1973 la même variation : - 0,16 ‰/100 m. Dans les deux cas, les teneurs en deuterium des échantillons collectés entre 1000 et 4000 m sont parfaitement corrélées ( $r = 0,995$ ) aux teneurs en oxygène 18 par une droite d'équation :

$$\delta^2\text{H} = 8\delta^{18}\text{O} + 10$$

Entre 1000 m et le niveau de la mer, la pente de la droite de corrélation s'abaisse légèrement à une valeur comprise entre 7 et 8.

Discussion : L'eau n'est pas évaporée et la méthode de prélèvement est licite et commode pour pondérer des échantillons annuels le plus simplement du monde.

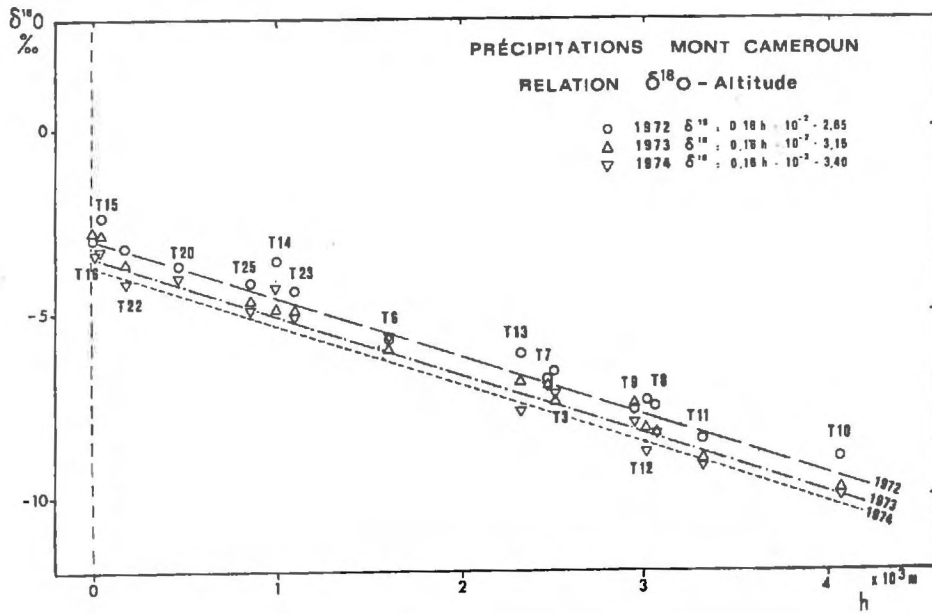


Fig. B-10. Gradient annuel moyen sur les flancs du Mont-Cameroun.

Entre 0 et 4000 m et sur trois années d'observation (1972-73-74), le gradient s'établit à  $-0,16 \text{ ‰}/100 \text{ m}$ .  
Echantillons annuels moyens pondérés.

D'après FONTES et OLIVRY (1976).

Le très faible gradient est imputable à la présence d'une énorme masse de vapeur de provenance océanique directe. Le profil de condensation du Mont Cameroun représente la première interception orographique de cette vapeur qui reste en quantité relative très grande devant la phase condensée quelle que soit l'importance de cette dernière (plus de 4 mètres de hauteur d'eau précipitée au sommet du Mont). La ponction en isotopes lourds exportés par le condensat ne suffit pas pour appauvrir le réservoir de plus de 0,16 ‰ pour un refroidissement équivalent à 100 m d'ascension. En d'autres termes, la masse même de vapeur qui enveloppe en permanence la montagne pendant la saison de mousson, joue en volant thermique considérable. La variation de température en altitude, indiquée par les ballons-sondes, est probablement une des plus réduites que l'on connaisse. La fraction condensante de la masse de vapeur est très limitée. Le gradient de composition isotopique reste donc faible au fur et à mesure que procède la condensation.

La relation entre les teneurs en  $^2\text{H}$  et en  $^{18}\text{O}$  illustre le pur mécanisme de condensation de la vapeur océanique par simple refroidissement, dans des conditions qui sont pratiquement adiabatiques. C'est, sur un profil vertical et donc sur une même série d'épisodes, une confirmation de la relation proposée par CRAIG (1961b) pour différentes stations océaniques, à l'échelle mondiale.

Entre 1000 et 4000 m, l'atmosphère est saturée en eau. L'évaporation en cours de chute n'intervient pas. Au-dessus de 1000 m, une légère désaturation de l'atmosphère pendant la saison des pluies, est possible.

### *1.3. - Variations saisonnières.*

Les données : Les échantillons mensuels moyens pondérés vérifient la loi générale de variation saisonnière de composition isotopique.



	$\delta$ min. (moy. mens. pondérées)	$\delta$ max.	période
Thonon-les-Bains	- 17,2	- 4,5	1963-65
Aubervilliers	- 10,2	- 2,1	1964
Anzio (littoral tyrrhénien)	- 8,7	- 2,4	1971-72
Fort-Lamy (N'Djaména)	- 7,7	+ 0,4	1967
	- 7,2	+ 5,3	1969

Commentaires : les variations saisonnières qui sont le reflet des fluctuations de température (zones froides et tempérées) ou d'humidité relative (zone intertropicale) représentent en général 5 à 20 % d'amplitude. En principe, les stations sous influence marine directe montrent des variations mineures. Le traçage naturel reste cependant considérable vis-à-vis de l'incertitude de mesure 0,1 %.

#### *1.4. - Conclusion à l'étude des précipitations.*

En zone tempérée, le profil de température de l'atmosphère régit en premier lieu le marquage naturel en isotopes lourds. L'origine de la vapeur, la forme, liquide ou solide, de la précipitation et l'évaporation en cours de chute jouent un rôle important.

En zone aride ou semi-aride, le facteur dominant est le profil d'humidité de l'atmosphère qui conditionne l'évaporation, mais les caractères propres à la précipitation elle-même interviennent également granulométrie des gouttelettes, intensité de la précipitation.

Les gradients en altitude varient selon les régions considérées en fonction de l'importance de la réserve d'eau de l'atmosphère à fortes réserves hydriques de vapeur, gradients isotopiques faibles. La gamme complète des variations en  $^{18}\text{O}$  prend place dans l'intervalle - 0,16 ‰/100 m (Mont Cameroun, FONTES et OLIVRY, 1976) à - 0,6 ‰/100 (Groënland, DANSGAARD, 1961).

## II - L'EVAPORATION.

Dans le bilan général de l'eau, l'évaporation se présente avec une double originalité qui justifie d'un effort d'étude particulier :

- C'est, de loin, le terme le plus difficile à estimer au regard des apports et de l'exportation.

- C'est, en large part, le responsable de la salinisation des eaux.

La prise en compte des teneurs en isotopes au cours du phénomène présente alors un double intérêt pour :

- l'établissement de bilans isotopiques complexes avec approche de paramètres naturels tels que l'humidité relative moyenne et de variables comme la fraction évaporée ;

- l'estimation de la part qui revient à l'évaporation dans la charge saline des eaux.

Tous les phénomènes d'évaporation naturelle peuvent se ramener à deux types fondamentaux (fig. B.11) :

- évaporation avec réduction de volume,
- évaporation à niveau maintenu.

### II.1. - *Nomenclature.*

Compositions isotopiques  $\delta$  :

- $\delta_L$  eau du système en évaporation
- $\delta_i$  eau d'importation avant évaporation
- $\delta_C$  vapeur condensante à la surface liquide
- $\delta_A$  vapeur de l'atmosphère
- $\delta_V$  vapeur s'échappant de la surface liquide
- $\delta_E$  eau exportée du système

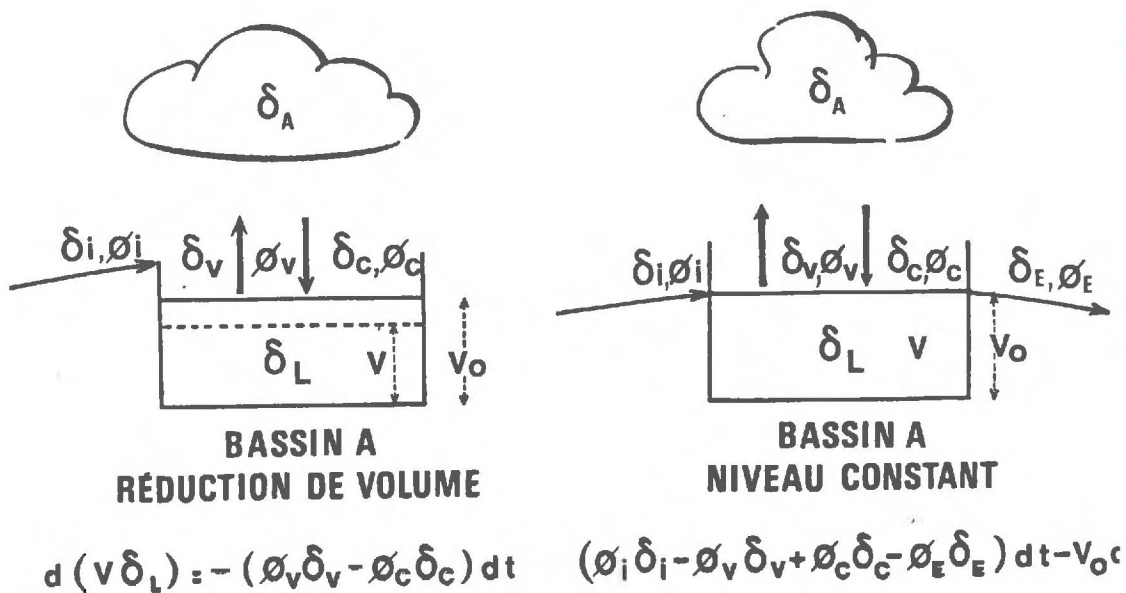


Fig. B-11. Modèles de variation de la composition isotopique pour deux types de bassins en état d'évaporation.

Les équations de bilan (voir texte) permettent de prévoir l'évolution de la composition isotopique.

Les variables sont  $\delta_L$  (composition isotopique du liquide),  $V$  (volume) dans le cas du bassin à niveau non constant,  $t$  (temps) que l'on peut faire tendre vers des valeurs suffisamment grandes pour que les formes du type  $\exp.g(-t)$  tendent vers zéro. Le terme  $\delta_c$  (composition isotopique de la vapeur atmosphérique) est un paramètre ainsi que les différents flux d'importation  $\phi_i$ , d'exportation  $\phi_e$ , d'évaporation  $\phi_v$ , de condensation  $\phi_c$ , et la composition isotopique de l'importation  $\delta_i$ . Si l'on considère que  $\phi_c = 0$  (évaporation en air absolument sec sans possibilité d'échange entre le liquide et la vapeur qui s'en échappe), on retombe sur le modèle simple de distillation de Rayleigh qui s'applique alors, au signe près, aussi bien à l'évaporation qu'à la condensation.

Paramètres du fractionnement isotopique :

$\epsilon_V$  : effet isotopique à l'évaporation, normalisé à la température de surface du liquide,

$\epsilon_C$  : effet isotopique à la condensation, normalisé à la température de surface du liquide.

D'une façon générale :

$$\epsilon = \frac{\delta_L - \delta_V}{\delta_V + 1} \quad (\text{Eq. B-II.1})$$

Quantités :

V : système à réduction de volume,

$V_0$  : volume initial,

$f = \frac{V}{V_0}$  : fraction restante de liquide,

$\phi_i$  : flux d'apport,

$\phi_V$  : flux d'évaporation,

$\phi_C$  : flux de condensation,

$\phi_E$  : flux émissaire.

Autres paramètres intervenant dans le bilan :

h : humidité relative normalisée à la température de la surface liquide,

X : activité du liquide.

## II.2. - Equations de bilan.

### II.2.1 - Bilans simples : pas d'échange avec la vapeur atmosphérique.

#### Bassin à réduction de volume.

Le traitement est le même que pour la condensation (Eq. B-I.1).

Il vient :

$$\ln \frac{\delta_L + 1}{\delta_L^0 + 1} = - \frac{\epsilon}{\epsilon + 1} \ln f \quad (\text{Eq. B-II.2})$$



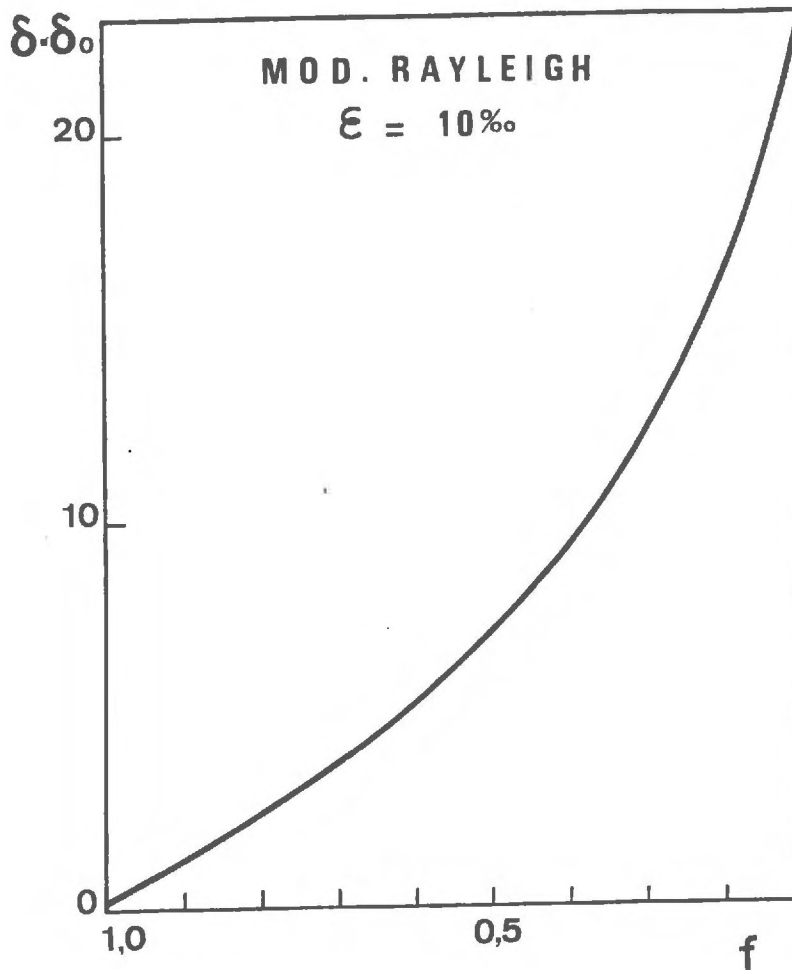


Fig. B-12. Effet isotopique à l'évaporation : cas théorique.

Enrichissement isotopique  $\delta - \delta_0$  d'une eau libre en état d'évaporation en fonction de la fraction restante de liquide  $f$ . Cette évolution correspond à un modèle de distillation isotopique dans lequel le liquide, en permanence bien mélangé, reste exempt de tout échange avec la vapeur qui s'en échappe (distillation de Rayleigh). Il s'agit d'un cas extrême théorique difficile à concevoir dans la nature, où de la vapeur, ne serait-ce que celle qui quitte la surface liquide, est toujours disponible pour des réactions d'échange.

L'équation de bilan s'écrit simplement :  $\delta - \delta_0 = - \epsilon \ln f$ .

Soit en négligeant  $\epsilon$  devant 1, ce qui est licite dans le cas de l'oxygène 18 :

$$\ln \frac{\delta_L + 1}{\delta_L^0 + 1} = -\epsilon \ln f \quad (\text{Eq. B-II.3})$$

ou encore avec une approximation satisfaisante (toujours pour  $^{18}\text{O}$ ) :

$$\delta_L - \delta_L^0 \approx -\epsilon \ln f = \delta_L - \delta_i \quad (\text{Eq. B-II.4})$$

C'est à nouveau l'équation de la distillation de Rayleigh (fig. B-12).

Bassin à niveau constant.

L'équation de conservation des flux isotopiques par unité de temps s'écrit :

$$(\theta_i \delta_i - \theta_V \delta_V - \theta_E \delta_E) dt = V_0 d\delta_L \quad (\text{Eq. B-II.5})$$

qui s'intègre pour les conditions initiales  $\delta_L = \delta_L^0 = \delta_i$  et  $t = 0$  :

$$= -\frac{1}{\theta_V} \left\{ \exp - \frac{(\epsilon+1)\theta_V t}{V_0} (-\theta_V \delta_L^0 + \epsilon \theta_i \delta_i + \theta_i \delta_i + \theta_V \epsilon - \theta_E \delta_E \epsilon - \theta_E \delta_E) - \epsilon \theta_i \delta_i - \theta_i \delta_i - \theta_V \epsilon + \theta_E \delta_E \epsilon + \theta_E \delta_i \right\} \quad (\text{Eq. B-II.6})$$

Au bout d'un temps de fonctionnement suffisamment long,  $\delta_L$  tend vers une valeur limite  $\delta_L^S$  :

$$\delta_L \rightarrow \delta_L^S = \frac{\epsilon \theta_i \delta_i + \theta_i \delta_i + \theta_V \epsilon - \theta_E \delta_E \epsilon - \theta_E \delta_E \epsilon}{\theta_V} \quad (\text{Eq. B-II.7})$$

Si le bassin est bien mélangé, on a  $\delta_E = \delta_L^S$

$$\delta_L^S = \frac{\delta_i \theta_i (1 + \epsilon) + \epsilon \theta_V}{\theta_i + \epsilon \theta_E} \quad (\text{Eq. B-II.8})$$

Soit en considérant que

$$\begin{aligned} \epsilon \theta_i &\ll \theta_i \\ \epsilon \theta_E &\ll \theta_E \end{aligned}$$

on obtient

$$\delta_L^S \approx \delta_i + \epsilon \frac{\theta_V}{\theta_i} \quad (\text{Eq. B-II.9})$$

La composition isotopique du bassin tend vers un régime permanent (ou état stationnaire) simplement défini par la teneur en isotopes lourds de l'apport, le facteur de fractionnement et la fraction de l'apport qui s'évapore.

II.2.2 - Bilans complexes : échange isotopique et la vapeur atmosphérique.

Bassin à réduction de volume.

Dans le cas où il n'y a pas fractionnement à la condensation on considère que les molécules de vapeur viennent sans discrimination "coller" à la surface du liquide. Le bilan s'écrit :

$$d(V\delta_L) = -(\theta_V\delta_V - \theta_C\delta_C) dt \quad (\text{Eq. B-II.1})$$

avec

$$dV = -(\theta_V - \theta_C) dt \quad (\text{Eq. B-II.2})$$

et

$$f = \frac{V_0 - (\theta_V - \theta_C)t}{V_0} \quad (\text{Eq. B-II.3})$$

En utilisant l'équation B-II.1 et avec les conditions initiales  $t = 0$ ,  $\delta_L = \delta_L^0$ , il vient :

$$\delta_L = \frac{f \exp\left[-\frac{\epsilon_V\theta_V + \epsilon_V\theta_C - \theta_C}{\epsilon_V + 1}(\theta_V - \theta_C)\right] \{\delta_L^0(\epsilon_V\theta_V + \theta_C\epsilon_V - \theta_C) + \theta_V\epsilon_V + \epsilon_V\theta_C\delta_C + \theta_C\delta_C\} - \theta_V\epsilon_V - \epsilon_V\theta_C\delta_C - \theta_C\delta_C}{\epsilon_V\theta_V + \theta_C\epsilon_V - \theta_C} \quad (\text{Eq. B-II.4})$$

Lorsque  $f$  tend vers zéro,  $\delta_L$  tend vers une valeur limite  $\delta_L^S$  et la composition isotopique du système n'évolue plus tandis que l'évaporation se poursuit :

$$\delta_L^S = \frac{-\theta_V\epsilon_V - \epsilon_V\theta_C\delta_C - \theta_C\delta_C}{\epsilon_V\theta_V + \theta_C\epsilon_V - \theta_V} \quad (\text{Eq. B-II.5})$$

Ces équations trouvent une traduction en donnée climatique.

Le flux de condensation  $\phi_C$  est proportionnel à la pression partielle de vapeur  $p$  :

$$\phi_C = mp \quad (\text{Eq. B-II.15})$$

à saturation  $\phi_C = mp_S \quad (\text{Eq. B-II.16})$

( $p_S$  = pression de vapeur saturante)

La saturation ( $p = p_S$ ) implique l'équilibre des flux :

$$\phi_V = \phi_C = mp_S \quad (\text{Eq. B-II.16})$$

soit  $\phi_C = \phi_V \frac{p}{p_S} \quad (\text{Eq. B-II.17})$

et finalement  $\phi_C = h\phi_V \quad (\text{Eq. B-II.18})$

Les équations (B-II.13) et (B-II.14) s'écrivent alors :

$$\delta_L = \frac{f \exp - \frac{\epsilon_V + h\epsilon_V - h}{(\epsilon_V + 1)(1-h)} \{ \delta_L^o (\epsilon_V + \epsilon h - h) + \epsilon_V + \epsilon_V h \delta_C + h \delta_C \} - \epsilon_V - \epsilon_V h \delta_C - h \delta_C}{\epsilon_V + \epsilon_V h - h} \quad (\text{Eq. B-II.19})$$

$$\delta_L^S = \frac{-\epsilon_V - \epsilon_V h \delta_C - h \delta_C}{\epsilon_V + h\epsilon_V - h} \quad (\text{Eq. B-II.20})$$

La composition isotopique d'une masse liquide en état d'évaporation à l'air libre atteint une valeur limite qui ne dépend que de l'humidité relative (normalisée à la température de la surface de l'eau), de la teneur de la vapeur atmosphérique en isotopes lourds, et du facteur de fractionnement à l'évaporation.

En combinant (B-II.19) et (B-II.20), on obtient :

$$\ln \frac{\delta_L - \delta_L^S}{\delta_L - \delta_L^S} = - \frac{\epsilon_V + h\epsilon_V - h}{(\epsilon_V + 1)(1-h)} \ln f \quad (\text{Eq. B-II.21})$$

qui donne évidemment l'équation (B-II.2), c'est-à-dire le modèle de Rayleigh pour  $h = 0$ .



Dans le cas d'une condensation avec fractionnement isotopique, on doit considérer l'expression :

$$\delta_C = \frac{\delta_A - \epsilon_C}{\epsilon_C + 1} \quad (\text{Eq. B-II.22})$$

qui exprime le fait que la composition isotopique du condensat  $\delta_C$  diffère de celle de la vapeur atmosphérique  $\delta_A$  :

il vient pour les équations d'état stationnaire (B-II.14 et B-II.20) :

$$\delta_L^S = \frac{-(\delta_A - \epsilon_C) (\epsilon_V \theta_C + \theta_C) - \theta_V \epsilon_V (\epsilon_C + 1)}{(\epsilon_C + 1) (\theta_V \epsilon_V + \epsilon_V \theta_C - \theta_C)} \quad (\text{Eq. B-II.23})$$

ou

$$\delta_L^S = \frac{-(\delta_A - \epsilon_C) (\epsilon_V h + h) - \epsilon_V (\epsilon_C + 1)}{(\epsilon_C + 1) (\epsilon_V + h \epsilon_V - h)} \quad (\text{Eq. B-II.24})$$

Bassin à niveau constant.

Pas de fractionnement à la condensation :  $\delta_C = \delta_A$

Le bilan de conservation des isotopes s'écrit :

$$(\theta_i \delta_i - \theta_V \delta_V + \theta_C \delta_C - \theta_E \delta_E) dt = V_0 d\delta_L \quad (\text{Eq. B-II.25})$$

qui s'intègre avec les mêmes conventions que précédemment :

$$\delta_L = -\frac{1}{\theta_V} \left\{ \exp - \frac{(\epsilon_V + 1) \theta_V t}{V_0} (-\theta_V \delta_i + \epsilon_V \theta_i \delta_i + \theta_i \delta_i + \theta_V \epsilon_V - \theta_E \delta_E \epsilon_V - \theta_E \delta_E + \theta_C \delta_C \epsilon_V - \epsilon_V \theta_i \delta_i - \theta_i \delta_i - \theta_V \epsilon_V + \theta_E \delta_E \epsilon_V + \theta_E \delta_E - \theta_C \delta_C \epsilon_V - \theta_C \delta_C) \right\} \quad (\text{Eq. B-II.26})$$

L'état stationnaire est obtenu pour un temps suffisamment long :

$$\delta_L^S = \frac{\theta_E \delta_E \epsilon_V + \theta_E \delta_E - \theta_C \delta_C \epsilon_V - \theta_C \delta_C - \epsilon_V \theta_i \delta_i - \theta_i \delta_i - \theta_V \epsilon_V}{-\theta_V} \quad (\text{Eq. B-II.27})$$

Si le système est bien homogène, on a  $\delta_E = \delta_L^S$  et :

$$\delta_L^S = \frac{(\epsilon_V + 1) (\theta_C \delta_C + \theta_i \delta_i) + \theta_V \epsilon_V}{(\epsilon_V + 1) \theta_E + \theta_V} \quad (\text{Eq. B-II.28})$$

En introduisant l'humidité relative (Eq. B-II.18) ainsi que la fraction  $k$  de l'apport qui se trouve évaporée (évaporation nette) soit :

$$k = \frac{\phi_V - \phi_C}{\phi_i} \quad (\text{Eq. B-II.29})$$

il vient :

$$\delta_L^S = \frac{(\epsilon_V + 1)\{kh\delta_C + (1 - h)\delta_i\} + \epsilon_V k}{(\epsilon_V + 1)\{-k(1 - h) + 1 - h\} + k}$$

ou, en considérant (cas de l'oxygène 18)  $\epsilon_V \ll 1$  :

$$\delta_L^S \approx \frac{kh\delta_C + (1 - h)\delta_i + \epsilon_V k}{1 - h + hk} \quad (\text{Eq. B-II.30})$$

La composition isotopique d'un bassin à niveau constant, qui s'évapore à l'air libre, atteint une valeur limite qui dépend de l'humidité relative, de la composition isotopique de la vapeur atmosphérique et du facteur de fractionnement à l'évaporation, comme dans le cas d'un bassin à réduction de volume. Mais en plus, la teneur en isotopes lourds finale d'un bassin à niveau constant dépend aussi de la composition isotopique de l'eau affluente, et du taux d'évaporation réelle.

- Fractionnement à la condensation :  $\delta_C = \frac{\delta_A - \epsilon_C}{\epsilon_C + 1}$

L'équation (II.27) de l'état stationnaire devient :

$$\delta_L^S = \frac{\phi_C(\delta_A - \epsilon_C)(1 + \epsilon_V) + (\epsilon_V \phi_i \delta_i + \phi_i \delta_i + \phi_V \epsilon_V - \phi_E \delta_E \epsilon_V - \phi_E \delta_E)}{\phi_V(\epsilon_C + 1)} \quad (\text{Eq. B-II.31})$$

ou, avec l'hypothèse d'homogénéisation :

$$\delta_L^S = \frac{\phi_C(\delta_A - \epsilon_C)(1 + \epsilon_V) + (\epsilon_V \phi_i \delta_i + \phi_i \delta_i + \phi_V \epsilon_V)(\epsilon_C + 1)}{\phi_V + \phi_E \epsilon_V + \phi_E} \quad (\text{Eq. B-II.32})$$

Dans le cas de l'oxygène 18,  $\epsilon_C$  et  $\epsilon_V \ll 1$  :

$$\delta_L^S \approx \frac{\phi_i \delta_i + \phi_V \epsilon_V + \phi_C (\delta_A - \epsilon_C)}{\phi_V + \phi_E} \quad (\text{Eq. B-II.3.})$$

$$\delta_L^S \approx \frac{kh(\delta_A - \epsilon_C) + (1-h)\delta_i + \epsilon_V k}{1-h+hk} \quad (\text{Eq. B-II.3.})$$

### II.2.3 - Influence des sels dissous.

#### II.2.3.1 - Solutions saturées : activité X = constante.

Le flux d'évaporation  $\phi_V$  d'une solution est lié au flux d'évaporation du solvant pur  $\phi_V^o$  par l'intermédiaire de l'activité du solvant :

$$\phi_V = X \phi_V^o \quad (\text{Eq. B-II.3.})$$

#### Bassin à réduction de volume.

- Pas de fractionnement à la condensation.

L'équation (B-II.10) s'intègre en introduisant l'équation (B-II.34) ainsi que la relation :

$$\phi_C = h \phi_V^o \quad (\text{Eq. B-II.3.})$$

Il vient pour l'état stationnaire :

$$\delta_L^S = \frac{X \epsilon_V + \epsilon_V h \delta_C + h \delta_C}{h - \epsilon_V X - h \epsilon_V} \quad (\text{Eq. B-II.3.})$$

qui donne évidemment la B-II.10 pour  $X = 1$  (eau distillée).

- Fractionnement à la condensation.

$$\delta_L^S = \frac{-(\delta_A - \epsilon_C)h(\epsilon_V + 1) - X \epsilon_V (\epsilon_C + 1)}{(\epsilon_C + 1)\{X \epsilon_V + h(\epsilon_V - 1)\}} \quad (\text{Eq. B-II.3.})$$

Bassin à niveau constant.

- Pas de fractionnement à la condensation.

L'équation de bilan (B-II.25) combinée avec les relations (B-II.34) et (B-II.35) s'intègre comme précédemment et conduit à une relation d'état stationnaire :

$$\delta_L^S = \frac{(\epsilon_V + 1)(\theta_i \delta_i + \theta_C \delta_C) + \theta_V X \epsilon_V}{X \theta_V^0 + \theta_E (1 + \epsilon_V)} \quad (\text{Eq. B-II.37})$$

qui est équivalente de la B-II.28 si l'on fait  $X = 1$ , ou :

$$\delta_L^S = \frac{(\epsilon_V + 1)\{(X-h)\delta_i + hk\delta_C\} + Xk\epsilon_V}{Xk + (X-h-Xk+hk)(1+\epsilon_V)} \quad (\text{Eq. B-II.38})$$

qui s'écrit sous une forme approchée en considérant  $\epsilon_V \ll 1$  :

$$\delta_L^S \approx \frac{(X-h)\delta_i + hk\delta_C + Xk\epsilon_V}{X - h + hk} \quad (\text{Eq. B-II.39})$$

qui est équivalent à la relation B-II.30 si l'on fait  $X = 1$ .

- Fractionnement à la condensation.

$$\delta_L^S = \frac{(\epsilon_C + 1)\{(\epsilon_V + 1)(X-h)\delta_i + kX\epsilon_V\} + kh(\delta_A - \epsilon_C)(\epsilon_V + 1)}{kX + (\epsilon_V + 1)(X-h) - Xk + hk} \quad (\text{Eq. B-II.40})$$

soit, avec  $\epsilon_V$  et  $\epsilon_C \ll 1$  :

$$\delta_L^S \approx \frac{(X-h)\delta_i + kX\epsilon_V + kh(\delta_A - \epsilon_C)}{X - h + hk} \quad (\text{Eq. B-II.41})$$

qui est équivalente à la relation B-II.33 si l'on fait  $X = 1$ .

II.2.3.2 - Solutions non saturées : X variable.

La seule façon actuellement connue de poursuivre le calcul est d'estimer (GONFIANTINI, 1965) que l'activité du liquide varie comme sa fraction molaire à partir d'un état initial  $X_0$  qui correspond au début du processus d'évaporation :



soit :

$$X = \frac{fX_0}{1 - X_0(1 - f)} \quad (\text{Eq. B-II.})$$

En introduisant cette relation dans les équations de bilan il est possible de parvenir à une solution pour  $\delta_L$ .

Cela ne présente pas pour l'instant de grand intérêt, et ceci pour deux raisons :

- Les approximations nécessaires à la résolution de l'équation différentielle deviennent lourdes.

- L'hypothèse de départ (équ. B-II.42) apparaît assez grossière puisque l'on sait à l'heure actuelle (BERNER, 1971) que, pour les fortes concentrations, l'activité du solvant est loin de se comporter comme sa fraction molaire, en particulier dans le cas de solutions contenant des ions divalents comme c'est généralement la règle pour les saumures naturelles.

#### II.2.4 - Domaines de validité des modèles.

Les modèles simples dans lesquels l'échange entre la vapeur et la surface liquide ne se produit pas, ne sont guère concevables dans la nature où la vapeur est toujours disponible dans l'atmosphère, ne serait-ce que celle qui s'échappe du liquide. En fait, les modèles avec et sans échange ne sont présentés de façon distincte que pour les besoins des calculs. Lorsque l'humidité relative devient faible, le comportement isotopique du système en état d'évaporation se rapproche de l'allure exponentielle caractéristique d'un phénomène de distillation de RAYLEIGH (fig. B-12). Les modèles sans échange ne sont que des cas limites des modèles d'échange.

Les modèles d'échange avec l'atmosphère qui considèrent que l'activité du liquide reste assimilable à 1, sont applicables avec une bonne approximation à la plupart des eaux naturelles continentales, y compris dans les bassins à réduction de volume. Les études expérimentales (GONFIANTINI, 1965) montrent que l'influence des sels dissous sur les variations de teneur en isotopes lourds, est faible. Pour des salur

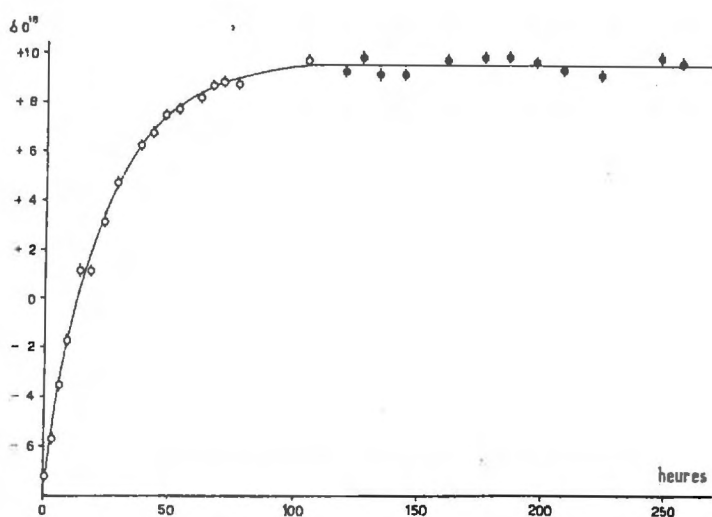


Fig. B-13. Etat stationnaire d'un bassin à niveau maintenu  
(cf. B-II.34).

Expérience de laboratoire. Un bassin contenant environ 3 litres de solution est réglé à niveau constant par un système de trop-plein. L'évaporation est provoquée par un épiradiateur. Après 100 heures de fonctionnement, la teneur en  $^{18}\text{O}$  est stable, le bassin est en état isotopique stationnaire. D'après GONFIANTINI et FONTES (1963).

de 70 à 80 ‰, la solution présente un comportement isotopique pratiquement semblable à celui de l'eau distillée. Ceci n'est toutefois vrai pour les solutions à forces ioniques minimales compte tenu de leur mobilité, c'est-à-dire de solutions de type chloruré-sodique.

L'examen des modèles concernant les saumures montrent que, dans les mêmes conditions climatiques, l'enrichissement isotopique à l'évaporation sera plus faible en présence de sels. La comparaison des équations homologues B-II.30 et B-II.39 révèle en effet que l'activité inférieure à 1 intervient au numérateur de l'expression de  $\delta_L$ .

Il faut ajouter que les modèles proposés ci-dessus correspondent à des comportements isotopiques intégrés sur de longues périodes de façon à pouvoir remplacer les variables, telles que  $\delta_C$ ,  $\delta_i$  et  $h$ , par leur valeur moyenne. Enfin le paramètre  $\epsilon$  représente l'ensemble du fractionnement isotopique (équilibre + effet cinétique) dans les conditions naturelles. Plusieurs modèles d'évaporation isotopique ont été exposés par différents auteurs : CRAIG et GORDON, 1965; FONTES et GONFIANTINI, 1967; GAT, 1970; MERLIVAT, 1970; ZIMMERMAN et EHHALT, 1970. Les raffinements portent en général sur l'estimation des vitesses respectives de diffusion des isotopes lourds et légers dans les premières couches d'air au voisinage de la surface liquide.

### II.3. - Exemples d'application.

#### II.3.1 - Bassin expérimental à niveau maintenu (GONFIANTINI et FONTES, 1963).

L'enrichissement en oxygène 18 se stabilise à 17 ‰ après 100 heures de fonctionnement (fig. B-13).

Le calcul du taux d'évaporation net s'écrit (Eq. B-II.30)

$$k = \frac{(\delta_L^S - \delta_i) (h - 1)}{h (\delta_L^S - \delta_C) - \epsilon_V}$$

En normalisant les paramètres à  $h = 75 \%$ ,  $\delta_C = -20 \%$ ,  $\epsilon = 15 \%$ , le taux net d'évaporation s'inscrit à  $70 \%$ , valeur proche de la valeur observée ( $75 \pm 5 \%$ ).

II.3.2 - Lac Léman (BLAVOUX et FONTES, inédit).

Les termes du bilan sont :

Apports	$\emptyset \text{ m}^3/\text{s}$ (BLAVOUX et al. 1961)	$\delta^{18}$ moyennes	Mode d'obtention
Rhône affluent	181	- 14.7	Moyenne annuelle
Autres affluents	48	- 11.1	Dranse
Précipitations	19	- 9.3	Station de Thonon
Sources sous-lacustres	11	- 11.1	Sous-écoulement de la Dranse

d'où :  $\bar{\delta}_i = -13.4$  (valeur calculée pour 1963).

Autres valeurs variables moyennes (d'après FONTES et GONFIANTINI, 1970) :

$\delta_L^{18} \%$	$\delta_C^{18} \%$	h	$\epsilon_V \approx \delta_L - \delta_V \%$
- 12.31 ± 0.1	- 21.5	0.92	9.15

L'humidité relative moyenne est calculée pour une cote repérée à 0.20 m de la surface liquide à la température interannuelle moyenne de l'eau en surface.

En supposant le lac en état stationnaire, soit avec  $\delta_L = \delta_L^S$ , l'équation B-II.30 indique :

$$k = \frac{(\delta_L^S - \delta) (h - 1)}{h(\delta_L^S - \delta_C) - \epsilon} = 12,5 \%$$



Le taux d'évaporation net calculé sur la base du bilan isotopique s'inscrit à 12,5 % de la somme des apports, soit en négligeant la condensation devant les apports liquides :

32,5 m<sup>3</sup>/s d'évaporation

Confronté aux mesures déduites des relevés de bac d'évaporation qui indiquent environ 16 m<sup>3</sup>/s (BLAVOUX et al., 1961), le taux d'évaporation isotopique apparaît trop élevé.

La composition isotopique moyenne des entrées est probablement sous-estimée. Avec  $\bar{\delta}_i = -13.0$ , on calcule une valeur de  $k \approx 7\%$  probablement assez proche de la réalité. Cette possibilité d'ajustement témoigne de l'incertitude sur la méthode, lorsque l'enrichissement est aussi faible que celui du Léman (de l'ordre de 1 ‰). Une tentative assez similaire d'estimation de l'évaporation nette sur le lac Neusiedl en Autriche, soit sous un climat assez voisin de celui du Léman (ZIMMERMAN et EHHALT, 1970), conduit ces auteurs à admettre une erreur relative de 50 % sur les chiffres calculés. Cependant, compte tenu de l'incertitude générale qui préside aux estimations du terme évaporatoire l'approche isotopique exposée plus haut peut se révéler intéressante à condition de mesurer les paramètres de  $k$  avec une fréquence suffisante pour évaluer avec précision les moyennes pondérées des apports.

Pour les régions arides et subarides où l'enrichissement isotopique est important, la précision doit pouvoir être améliorée à environ 10 %. La méthode devient alors très utilisable si l'on peut disposer d'une collecte suffisante de prélèvements.

II.3.3.- Bassin saharien de la vallée de la Saoura (FONTES et GONFIANTINI, 1967, *op.cit.*).

La guelta de la Gara Diba (Béni-Abbès) est alimentée par la crue de l'oued puis s'assèche en 4 mois. L'évolution de la teneur en isotopes lourds au cours du temps correspond au modèle de l'équation (B-II.13), c'est-à-dire que l'activité du liquide est prise comme égale

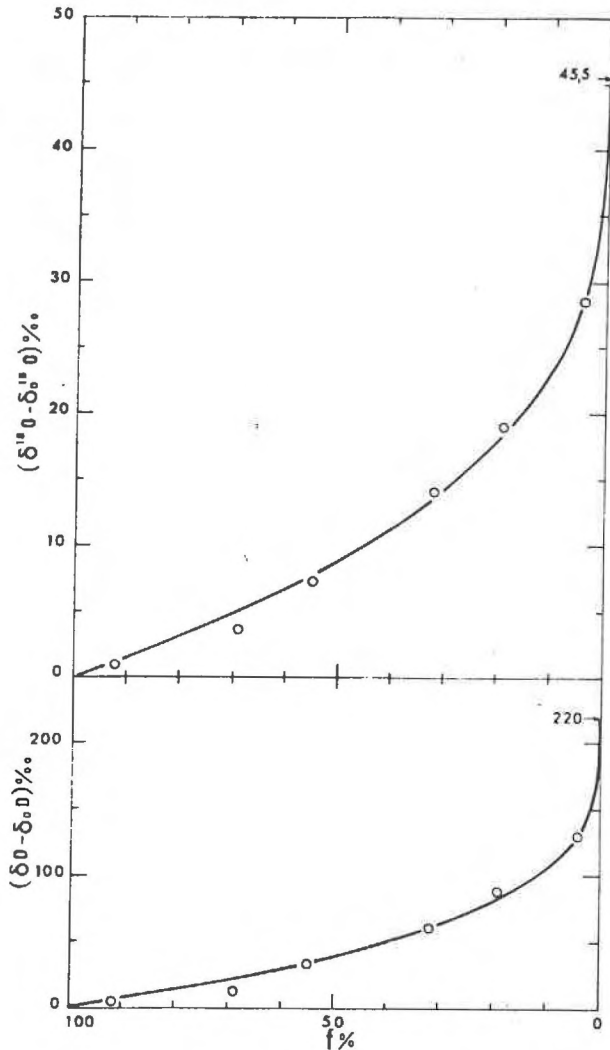


Fig. B-14. Evolution de la composition isotopique d'un bassin naturel à réduction de volume : Guelta de la Gara Diba (Nord-Ouest saharien).

Sous le climat aride de la région, le comportement isotopique de la solution en cours d'évaporation évoque l'enrichissement exponentiel provoqué par un modèle de distillation. En réalité, l'enrichissement obéit à une loi complexe dont le modèle théorique (cf. B-II.3.3) rend parfaitement compte. La courbe est livrée par le modèle, les points sont expérimentaux. La fraction  $f$  de liquide restant est calculée sur la base de la conservation du sodium et du potassium. D'après FONTES et GONFIANTINI (1967).

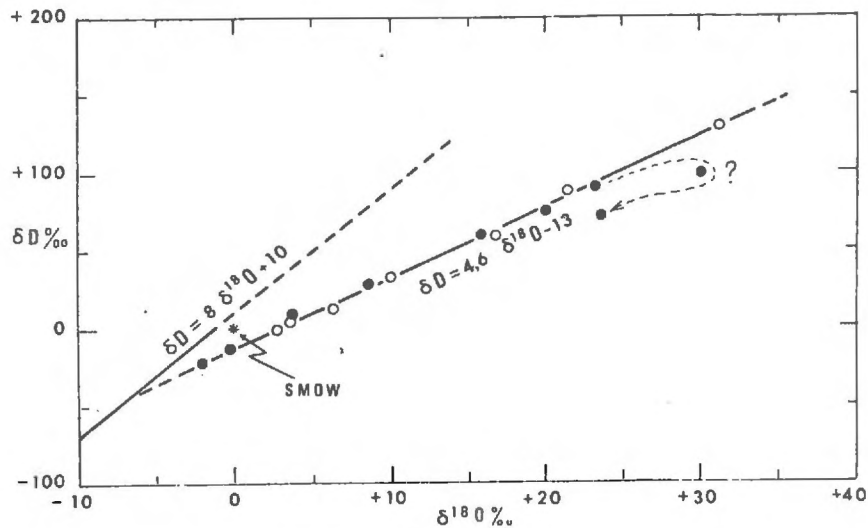


Fig. B-15. Teneurs conjuguées en  $^2\text{H}$  et  $^{18}\text{O}$  au cours de l'évaporation de deux bassins sahariens.

Cercles ouverts : Guelta de la Gara Diba à Béni-Abbès.  
Cercles pleins :: lac de la Sebka el Melah (lac terminal des crues exceptionnelles de l'oued Saoura).

Les points représentatifs de l'évolution des deux bassins s'alignent sur une même droite d'évaporation dont la pente est fonction des conditions climatiques moyennes de la région. L'intersection de cette droite d'évaporation avec la droite des eaux météoriques d'équation  $\delta^2\text{H} = 8\delta^{18}\text{O} + 10$  représente la composition isotopique moyenne de la précipitation qui a engendré la crue responsable de la mise en eau des bassins, soit  $\delta^{18}\text{O}$  (eau de crue avant évaporation) = - 6,8 ‰.

Les points correspondant à l'évolution ultime des saumûres de la Sebka el Melah dévient du comportement général sous l'effet de la variation d'activité du liquide.

D'après FONTES et GONFIANTINI (1967).

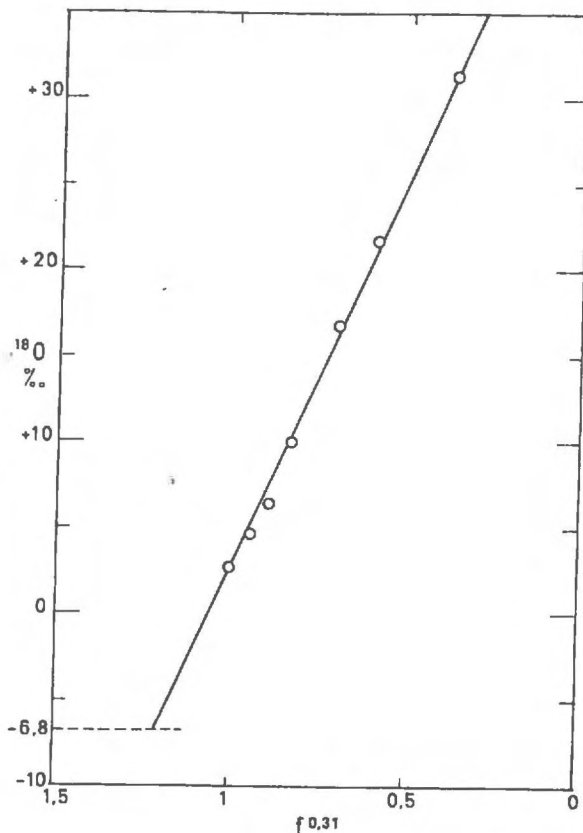


Fig. B-16. Reconstitution des conditions d'alimentation du bassin de la Guelta de la Gara Diba (Béni-Abbès).

Si l'on reporte la composition isotopique du liquide en fonction de la fraction restante affectée du coefficient exponentiel déterminé par application du modèle (cf. B-II.3.3) soit  $f \exp. 0,31$ , on obtient une droite. Pour la valeur de la composition isotopique de la crue avant évaporation  $\delta_0^{18O} = -6,8 \text{ ‰}$  (cf. B-II.3.3 et fig. B-15), on détermine  $f_0 = 1,85$ . Lorsque la crue a empli le bassin (début des mesures, fraction  $f = 1$ ), elle était en réalité déjà réduite par évaporation de :  $1 - f/f_0 = 46 \text{ ‰}$  de son volume initial. La concentration  $C_0$  avant évaporation s'écrit :  $C_0 = Cf/f_0$ .

La charge saline indépendante de toute évaporation est d'environ 1300 mg/l. C'est l'érosion chimique spécifique intégrée sur la totalité de la durée de la crue. Précisons que cette donnée ne peut être estimée par une autre méthode. D'après FONTES et GONFIANTINI (1967).



à 1 dans toute la gamme de salure, essentiellement chlorurée sodique (0,48 à 12,4 g de sodium par litre).

La fraction restante de liquide est calculée sur la base de la conservation du sodium. La courbe d'évolution de la teneur en isotopes (fig. B-14) s'ajuste de façon très satisfaisante au modèle en considérant que  $h$  et  $\epsilon$  sont assimilables à leurs valeurs moyennes. La composition isotopique de la vapeur  $\delta_C$  est prise comme étant celle de la vapeur  $\delta_A$ .

L'équation finale de bilan est alors, avec l'approximation classique ( $\delta \ll 1$ ) :

$$\delta_L - \delta_L^0 \approx \frac{h (\delta_A - \delta_L^0) - \epsilon}{h + \epsilon} \{1 - f^{(h + \epsilon)/(1 - h)}\}$$

Le calcul de meilleur accord (IBM 7090) donne :

$$\text{oxygène 18} \quad (\delta_L - \delta_L^0) \% = 45,5 (1 - f^{0.31})$$

$$\text{deuterium} \quad (\delta_L - \delta_L^0) \% = 220 (1 - f^{0.28})$$

On en tire en négligeant  $\epsilon_V$  devant  $h$  :

$$h \approx 24 \%$$

L'étude isotopique propose ici une estimation de l'humidité relative moyenne rapportée à la température de surface du liquide. L'accord avec les relevés est parfait :

$$h = 25 \%$$

D'autre part, dans le diagramme  $\delta^2\text{H}; \delta^{18}\text{O}$  (fig. B-15), la droite d'évaporation recoupe la droite des précipitations pour une valeur de  $\delta^{18}\text{O} = -6.8 \%$  qui est donc celle des eaux de crue avant évaporation.

Reportée dans un diagramme  $\delta^{18}\text{O}; f^{0.31}$ , l'intersection donne (fig. B-16) :

$$f = 1,85$$

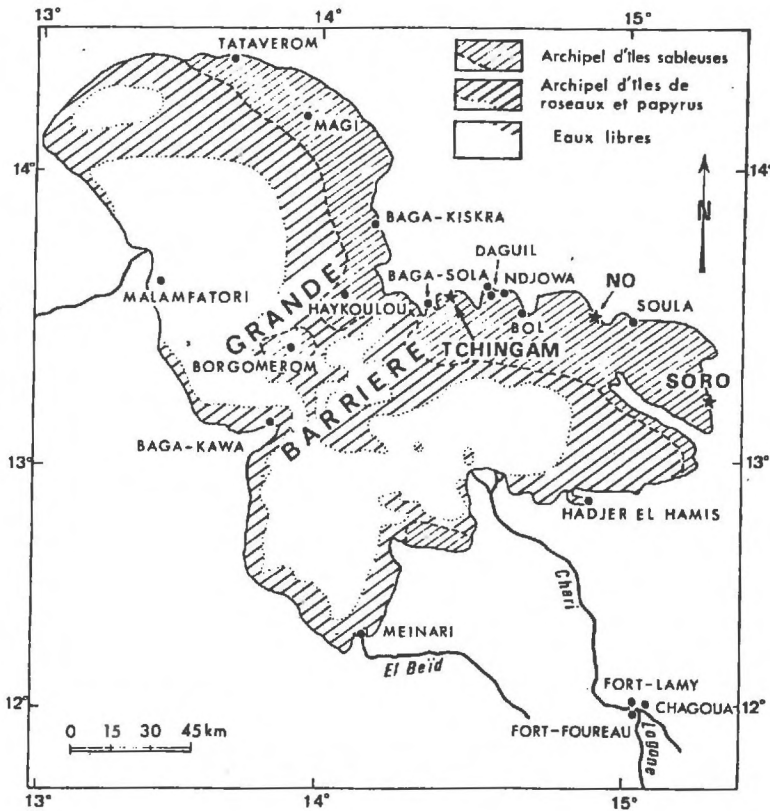


Fig. B-17. *Le lac Tchad.*

Le plan d'eau sans émissaire, d'environ 20000 km<sup>2</sup>, est maintenu par la crue du Chari-Logone et accessoirement par les précipitations locales et l'apport de la Komadougou venue du Nigéria. Le lac, largement encombré d'ilôts-bancs et de radeaux naturels végétaux, est divisé en deux ensembles, nord et sud, par la Grande Barrière qui est une zone de hauts-fonds, partiellement émergés et colonisés par les végétaux. D'après FONTES et al. (1970).

On en tire deux valeurs qui concernent l'histoire de la crue :

- évaporation préalable à l'alimentation du bassin évaporitique = 46 %.

- salinité initiale des eaux de surface (avant toute évaporation) = 1300 mg.

Aucune de ces données ne pouvait être estimée autrement. L'étude isotopique fait ici la part de la charge saline due à l'évaporation et de celle qui s'est trouvée dissoute par simple érosion chimique.

#### II.3.4 - Système du lac Tchad (fig. B-17).

On connaît sa complexité et son paradoxe : les eaux affluentes, qui sont à 88 % apportées par le Chari, sont très douces, avec environ 40 mg/l de résidu sec moyen. La salure globale des eaux du lac n'excède pas 400 mg (ROCHE, 1973), ce qui est en contradiction apparente avec les faits suivants :

- le lac ne possède pas d'émissaire régulier de surface.
- l'évaporation est de l'ordre de 2,15 m/an.
- les mesures faites depuis un siècle montrent que cette salure reste approximativement constante. Faune et flore des temps actuels et historiques suggèrent que ce régime dure depuis des siècles

Cet équilibre ne peut donc se maintenir que par évacuation des sels en régime interannuel permanent. La seule possibilité est de faire intervenir les nappes (cf. C-IV.2). Et si des fuites ont lieu par les nappes souterraines, aucun ion ne peut être considéré *a priori* comme piégé définitivement dans le lac. De plus, les dimensions elles-mêmes du lac, avec une surface de l'ordre de 20000 km<sup>2</sup>, impliquent une homogénéisation réduite des eaux malgré leur faible profondeur (2 à 5 m). Les salures et les teneurs en <sup>18</sup>O concordent pour montrer que, tout en s'évaporant, les masses d'eau subissent un cycle de circulation complexe avec chocs élastiques, sous "l'effet piston" de l'onde annuelle de crue

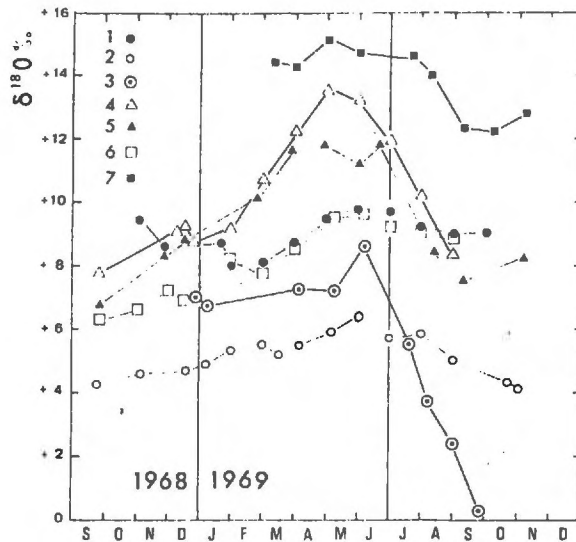


Fig. B-18. Evolution de la teneur en isotopes lourds des eaux du lac Tchad au cours du temps en différentes stations.

Sous l'effet de l'intense évaporation (environ 2,15 m/an) régionale, les eaux s'enrichissent en oxygène 18. Mais la composition isotopique n'est pas homogène. Malgré la faible profondeur (2 à 5 m), les eaux sont mal brassées et circulent par "effet piston" sous l'action motrice initiale de l'onde de crue du Chari-Logone (ROCHE, 1973). Les masses d'eau subissent un enrichissement en isotopes lourds qui dépend de leur temps de séjour dans le lac. Cet enrichissement varie d'une station à l'autre. Il est maximum pour les stations où passent les eaux les plus anciennes.

L'ensemble est en état sensiblement stationnaire cyclique et témoigne que le lac Tchad se comporte en partie comme une série de lacs élémentaires à temps de renouvellement différents.

Localisation : Baga-Kiskra (1), Bol (2), Borgomerom (3), Hadjer el Hamis (4), N'Djowa (5), Soula (6), Tataverom (7). Cf. fig. B-17. D'après FONTES et al. (1970).



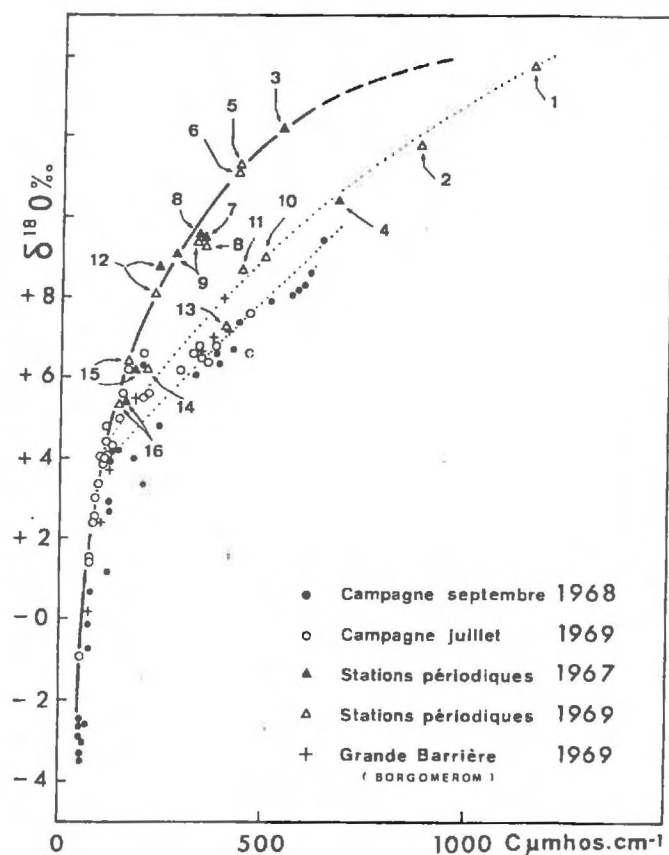


Fig. B-19. Relation entre la composition isotopique et la conductivité dans les eaux du lac Tchad.

L'allure générale de la courbe montre que les eaux tendent, dans leur ensemble, vers un état isotopique stationnaire. Cependant le diagramme, qui traduit l'évolution de la composition isotopique en fonction de la fraction restante de liquide, permet de distinguer le comportement du bassin méridional de celui du bassin nord. Au Sud, les eaux obéissent à un mécanisme d'enrichissement isotopique contrarié par l'échange avec la vapeur atmosphérique (courbe supérieure à concavité vers le bas). Au Nord, les points représentatifs se répartissent sur une droite qui joindrait les eaux de la Grande Barrière à celles des zones les plus évaporées. Alors que l'évaporation est le phénomène prédominant au Sud, c'est le mélange imparfait qui règle la composition isotopique dans le bassin nord. C'est donc dans ce bassin septentrional qu'il faudra rechercher d'éventuelles pertes liquides. D'après FONTES et al. (1970)

du Chari (ROCHE, 1973). Il est donc délicat de relier les teneurs en sels et en isotopes lourds aux fractions restantes de liquides autrement que par l'examen des tendances.

L'état stationnaire (fig. B-18) semble établi en chaque station de prélèvement périodique. Il est simplement contrarié par l'apport des précipitations estivales et surtout par le passage des eaux déplacées par l'onde de crue. L'ensemble du système tend lui-même vers un état stationnaire (fig. B-19) défini par  $\delta_L^S \approx + 14 \%$  (en oxygène 18) pour une entrée moyenne  $\delta_i$  voisine de  $- 3 \%$ . (FONTES et al., 1970).

Les équations de bilan, appliquées avec les paramètres  $\delta_c$  et  $h$  relevés à N'Djaména donnent des réponses impossibles. La vapeur qui règle l'état stationnaire par échange avec la surface n'est point uniquement celle de l'atmosphère mais comporte une large fraction de vapeur lacustre.

L'évolution comparée des teneurs en  $^{18}O$  et en sels exprimée par la conductivité met en évidence un comportement différent des eaux dans les deux sous-bassins du lac séparés par la grande barrière. Au Sud, le phénomène dominant est l'évaporation, tandis qu'au Nord c'est le mélange. Le lac Tchad est fait de deux lacs : un lac méridional qui s'enrichit en sels et en isotopes lourds avant de se déverser dans le lac septentrional sans mécanisme de reflux. C'est donc au Nord qu'il faut rechercher le mécanisme de maintien de la charge saline à un niveau anormalement bas.

### II.3.5 - Salures.

#### II.3.5.1 - Marais salants d'Aigues-Mortes (FONTES, 1966 et inédit).

Sur les installations de la Compagnie des Salins du Midi à Aigues-Mortes, les eaux chargées en sels ont été prélevées, avec une fréquence hebdomadaire, en 16 stations réparties entre l'afflux des



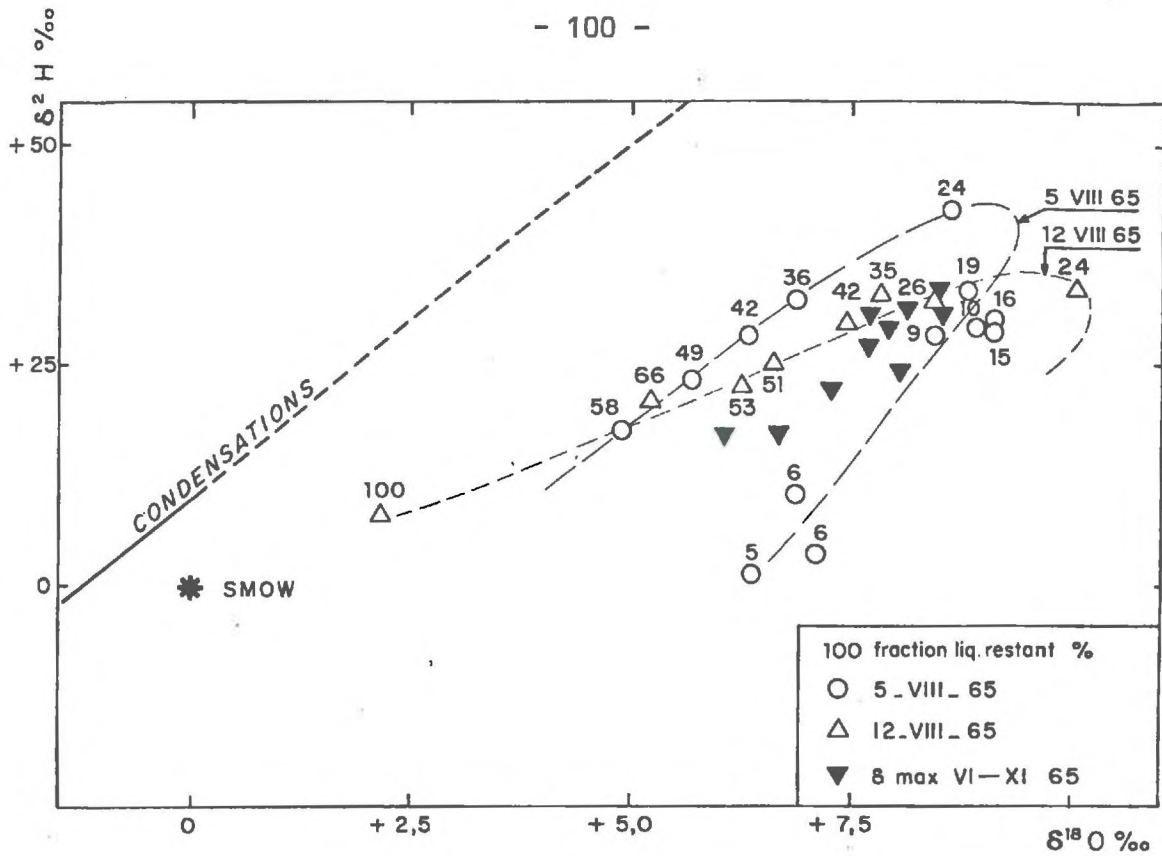


Fig. B-20. Evolution de la composition isotopique de l'eau de mer sous l'effet de l'évaporation (marais salants d'Aigues-Mortes).

Entre la prise d'eau à la mer et la précipitation de la halite finissante, les solutions s'enrichissent en isotopes lourds, atteignent une teneur maximale et montrent ensuite une diminution des concentrations en  $^{18}\text{O}$  et  $^2\text{H}$ . Le maximum correspond environ au gros de la précipitation du gypse, la baisse des teneurs accompagne la précipitation de la halite. Au cours de la période de fonctionnement du système (mai à septembre), les prélèvements hebdomadaires aux stations fixes ont montré que l'état stationnaire était atteint en tous points. A titre d'exemple, les deux séries de prélèvements qui correspondent à l'enrichissement saisonnier maximal (5-VIII-65 et 12-VIII-65) sont ici reportés. Le système se comporte comme une série de bassins communicants en équilibre avec l'atmosphère. Les variations de teneur en vapeur atmosphérique règlent l'enrichissement. Ceci est illustré par les déplacements du point représentatif de la teneur maximale en isotopes lourds pour chaque série de prélèvements (triangles pleins) au cours de la période d'observation.

Le phénomène de baisse des teneurs en isotopes lourds qui accompagne la saturation en halite correspond à la prépondérance d'un deuxième effet qui joue sur le comportement isotopique d'une solution saline en état d'évaporation : la variation de l'activité du liquide pur (GONFIANTINI, 1965). D'après FONTES (1965 et résultats inédits).



eaux marines dans les bassins (partènements) et la dernière des tables salantes où s'accumule la halite. Dans le même temps, les précipitations et des échantillons de vapeur atmosphérique étaient également recueillis. L'ensemble de la collection porte sur la saison active des installations : juin à septembre 1965.

Les résultats (fig. B-20).

Chaque série de prélèvements montre la même tendance. La teneur en  $^{18}\text{O}$  augmente, passe par un maximum pour une réduction de volume voisine de 4/5 (calculée sur la base de la conservation du sodium au-dessous de la saturation en NaCl), puis décroît dans les fortes concentrations. A ceci se superpose une légère évolution saisonnière des teneurs en isotopes qui augmentent de mai à août puis décroissent à nouveau jusqu'en septembre.

Interprétation.

Le système se présente simultanément comme un bassin à niveau constant (en chaque station) et comme un bassin à réduction de volume (sur l'ensemble des stations depuis la prise à la mer jusqu'aux tables salantes). L'ensemble est donc soumis à deux types d'états stationnaires. En chaque station, la teneur en isotopes lourds évolue légèrement en fonction des fluctuations des paramètres qui régissent l'état stationnaire, c'est-à-dire avant tout de l'humidité relative. Au coeur de la saison sèche, on relève en chaque point une valeur maximale de  $\delta_L^S$ . Les teneurs en isotopes lourds de fin d'évolution évaporatoire, par exemple les tables salantes, dépendent des paramètres de l'état stationnaire (Eq. B-II.36).

Avec  $X \approx 0,8$  (saturation en NaCl),  $h \approx 85\%$  (humidité relative moyenne relevée pendant la période d'évaporation),  $\delta_A \approx -12$  (moyenne de 4 mesures) et  $\epsilon_V \approx -14$  (ajusté en considérant que toute la vapeur vient de la mer ouverte, soit  $\epsilon_V \approx \delta_L - \delta_V$ ), il vient :

$$\delta_L^S \approx + 1.3 \%. \text{ (oxygène } 18)$$



Le calcul a nécessité de fortes approximations. De plus, l'activité de l'eau de la saumure n'est pas réellement constante à saturation en NaCl puisque les teneurs en potassium et magnésium continuent à croître. On doit donc présenter le résultat comme un ordre de grandeur indicatif de la teneur limite en oxygène 18 d'un bassin évaporitique marin qui approche de la siccité (environ 95 % de réduction de volume), sous le climat estival du Sud de la France.

L'influence de la salure sur l'évolution de la composition isotopique du liquide apparaît également dans le diagramme  $\delta^{18}\text{O}$ ;  $\delta^2\text{H}$  (fig. B-20) où la courbe représentative n'est plus une droite mais une figure complexe qui passe par un maximum puis revient vers les valeurs de l'état stationnaire conditionné par les paramètres rappelés plus haut.

#### II.3.5.2 - Sebkha el Melah (Sahara Nord-Occident FONTES et GONFIANTINI, 1967).

C'est le bassin collecteur terminal des plus fortes crues de l'oued Saoura (CONRAD, 1969). En dehors des périodes de hautes eaux la cuvette est occupée par une croûte saline qui est partiellement mobilisée par les crues. Les eaux évoluent donc très vite vers la saturation en NaCl. L'enrichissement isotopique en fonction de la fraction restante de liquide est moins rapide et moins intense que celui des bassins moins salés sous le même climat (Guelta de la Gara Diba, cf. II Ceci confirme en nature les expériences de laboratoire (GONFIANTINI, 1

Là encore, dans le diagramme  $\delta^2\text{H}$ ;  $\delta^{18}\text{O}$ , les dernières valeurs qui correspondent à une réduction à moins de 1 % du volume liquide initial, montrent un comportement régressif après passage par un maximum. Les points précédents montrent un alignement remarquable sur un segment de droite. Le comportement est ici beaucoup plus régulier que dans les marais salants pour les raisons suivantes :

- La salure est pratiquement due au seul NaCl jusqu'à une réduction de volume d'environ 95 %. L'évolution des activités est donc proche de celle des fractions molaires.

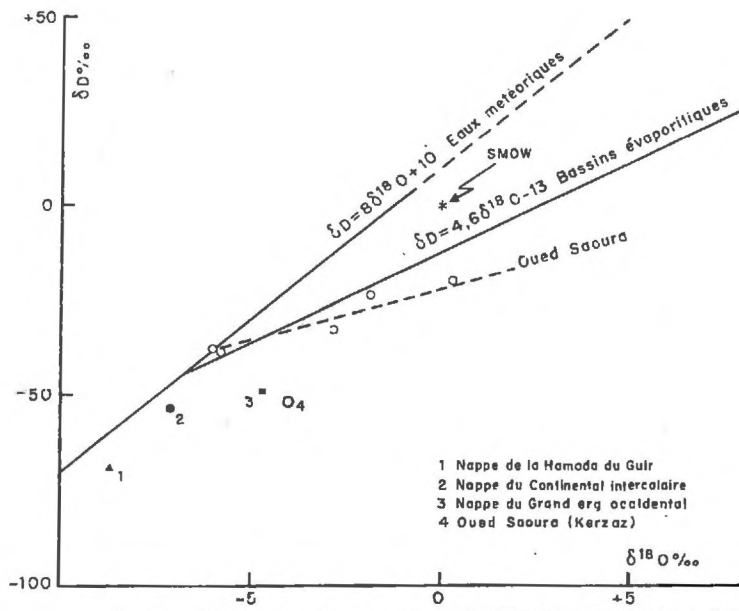
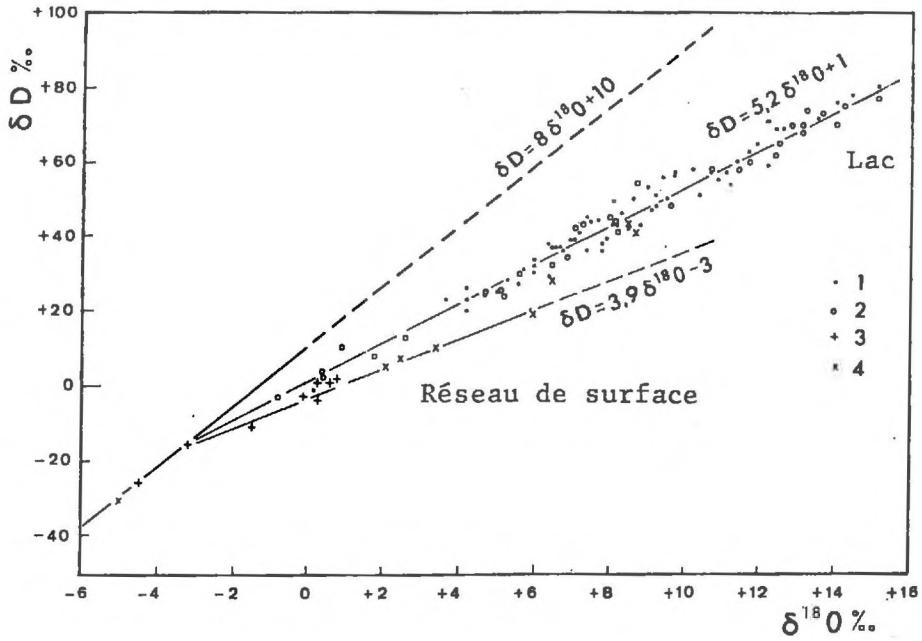


Fig. B-21. Différence de comportement isotopique à l'évaporation entre les eaux courantes et les étendues stagnantes.

Aussi bien dans le cas du lac Tchad que dans celui des bassins sahariens, la pente de la droite d'évaporation est légèrement plus faible pour les eaux courantes tributaires des bassins. Cet effet, qui est probablement lié à la différence de surface spécifique de contact entre l'eau et l'atmosphère, n'a pas reçu de confirmation théorique. D'après FONTES et al. (1970), CONRAD et FONTES (1970), FONTES et GONFIANTINI (1967).

- Les paramètres climatiques montrent des fluctuations régulières et les valeurs moyennes peuvent donc être considérées comme représentatives pour la durée totale du phénomène (8 mois).

Par ailleurs, il apparaît dans l'étude de cet exemple que pour les solutions chlorurées sodiques, les modèles d'évaporation peuvent considérer  $X \approx 1$  jusqu'à des teneurs de l'ordre de 80 g/l de NaCl.

#### II.3.6 - Eaux courantes et étendues stagnantes.

Aussi bien dans le cas du Sahara (CONRAD et FONTES, 1970) que dans la région du lac Tchad (FONTES et al., 1970), les eaux courantes en état d'évaporation montrent des relations  $\delta^2\text{H}$ ;  $\delta^{18}\text{O}$  dont la pente est plus faible que celle qui caractérise les étendues d'eau immobiles ou peu circulantes soumises aux mêmes conditions climatiques (fig. B-21). Cet effet rend peut-être compte d'une plus grande vitesse d'évaporation et d'échange pour l'eau circulante dont la surface spécifique ( $\text{cm}^2/\text{g}$ ) de contact avec l'atmosphère est supérieure à celle des eaux des bassins.

#### II.3.7 - Eaux des végétaux (BRICOUT et al., 1972 1974; LESAINTE et al., 1974).

L'examen des compositions isotopiques des distillats d'organes végétaux (fruits, feuilles et tiges) conduit aux conclusions suivantes .

- Il se produit dans les végétaux un enrichissement isotopique par rapport à l'eau d'alimentation conformément aux observations initiales sur la question (GONFIANTINI et al., 1965).

- Cet effet n'est pas dû à une quelconque intervention biologique au niveau de l'absorption de l'eau du sol. En effet, la sève brute de la vigne recueillie à la faveur d'une section du collet montre une très bonne identité avec la composition isotopique de l'eau de la nappe :



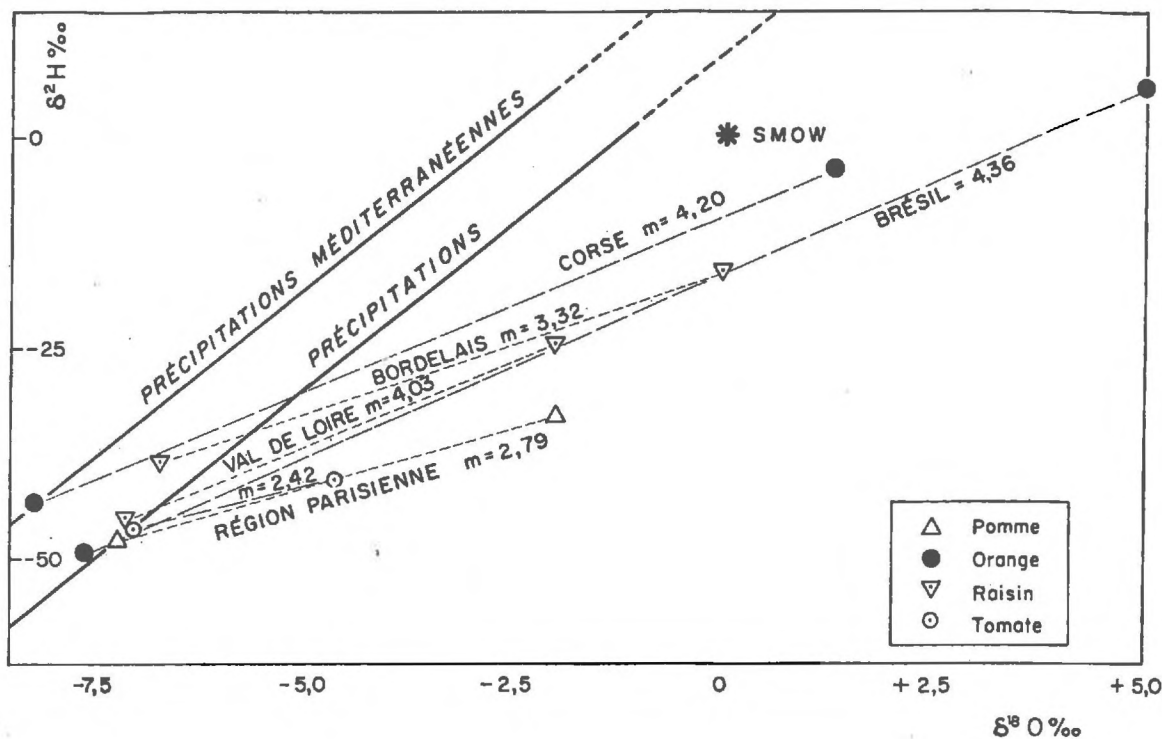


Fig. B-22. *Composition isotopique de l'eau des végétaux.*

Les végétaux présentent un comportement similaire de celui des surfaces d'eau libre en état d'évaporation. Etant donné que l'intersection de la droite d'évaporation avec la droite des eaux météoriques donne une valeur de la composition isotopique moyenne des eaux d'alimentation du bassin évaporitique (ici, la nappe), on voit se dessiner les contours d'une nouvelle méthode de prospection des teneurs en isotopes lourds des nappes libres par analyse de l'eau des végétaux choisis pour la profondeur atteinte par leur système racinaire. De plus, on conçoit que la présence d'un stade évaporitique à enrichissement en isotopes lourds dans le cycle de l'évapotranspiration conduira, lorsque l'état stationnaire sera atteint, à une vapeur évapotranspirée à composition isotopique constante. On peut prévoir que l'évapotranspiration ne modifiera guère la teneur en isotopes lourds de la nappe.

Enfin, et fort accessoirement pour notre propos, la composition isotopique des eaux des fruits doit refléter celle de la nappe qui est elle-même soumise aux conditions climatiques locales. Les jus de fruits seront donc tracés en fonction de leur origine géographique; cela peut se révéler intéressant pour l'étude de l'origine des jus, fermentés ou non, d'origine inconnue ou incertaine.



Sève brute :	$\delta^{2}\text{H} = -43,4 \text{ ‰}$	$\delta^{18}\text{O} = -6,8 \text{ ‰}$
Eau de la nappe :	$\delta^{2}\text{H} = -45,4 \text{ ‰}$	$\delta^{18}\text{O} = -7,1 \text{ ‰}$

Une telle propriété autorise d'ailleurs la perspective d'une technique commode d'échantillonnage des eaux des nappes phréatiques en vue de la détermination de leur composition isotopique.

- Cet enrichissement en isotopes lourds est du même type que celui qui intervient dans les eaux libres en voie d'évaporation.

- Dans le diagramme  $\delta^{2}\text{H}$  ;  $\delta^{18}\text{O}$  (fig. B.22), les pentes apparaissent dans l'ensemble plus faibles que pour les bassins évaporitiques. On retrouve là encore, comme pour les cours d'eau, un effet attribuable au rapport : surface disponible à l'évaporation/masse totale de liquide (cf. B-II.36).

- Les teneurs en isotopes lourds des organes supérieurs des végétaux, et en particulier des feuilles, montrent que, tout en atteignant un état stationnaire, l'enrichissement fluctue considérablement au cours d'une période de 24 h sous l'effet des grandes variations climatiques nyctémérales (BRICOUT et al., 1974 ; LESAIN et al., 1974). La valeur  $\delta_{\text{L}}^{\text{S}}$  de l'eau dans la feuille est extrêmement sensible aux variations d'humidité relative et de température dont dépend le facteur de fractionnement  $\epsilon_{\text{V}}$ .

Il apparaît donc que les modèles d'évaporation peuvent être utilisés sur les végétaux et que les paramètres ainsi déterminés  $\epsilon_{\text{V}}$  et  $\delta_{\text{C}}$  permettent alors de remonter à des estimations de l'évaporation sur surfaces libres.

### II.3.8 - Eaux des sols.

A priori, il semblerait que le modèle le plus simple d'évaporation, c'est-à-dire sans échange avec la vapeur, puisse s'appliquer à l'eau d'une nappe qui s'évapore à travers un sol (ZIMMERMAN et al., 1967). En considérant que le toit de la nappe représente un bassin à niveau maintenu en état d'évaporation, la relation (B-II.9) donne :

$$\delta_{\text{L}}^{\text{S}} \approx \delta_{\text{i}} + \epsilon \frac{\theta_{\text{V}}}{\theta_{\text{i}}}$$

Comme le niveau ne change pas, on écrit  $\theta_V = \theta_i$  et finalement la composition isotopique atteint une valeur d'état stationnaire :

$$\delta_L^S \approx \delta_i + \epsilon$$

Des expériences sur colonnes de sédiments plongeant dans des bacs recouverts d'huile de façon à ménager seulement l'évaporation à travers les colonnes ont été conduites à N'djaména (FONTES et GAC, inédit).

L'évaporation était compensée par un réajustement quotidien du niveau du bac par addition de la même eau que celle du début des expériences. Après un transit variable (de 0,5 à 3 fois le volume initial du bac) dans les colonnes de hauteurs différentes, 10, 20 et 50 cm, il apparaît que la composition isotopique de l'eau des bacs n'avait pratiquement pas changé. Seule l'eau du sol est soumise à un enrichissement isotopique à l'évaporation sans qu'il se produise de diffusion de cet enrichissement vers la nappe. L'enrichissement est limité par le facteur de fractionnement à l'évaporation. A cet instant la vapeur qui s'échappe du sol a la composition isotopique :

$$\delta_V = \delta_L^S - \epsilon$$

soit,

$$\delta_V = \delta_i + \epsilon - \epsilon = \delta_i$$

Le système est stable puisque la teneur en isotopes lourds de la vapeur est alors celle de l'eau de la nappe qui alimente le système.

#### II.4. - Conclusion à l'étude de l'évaporation.

On savait l'évaporation complexe et difficile à évaluer, comme en témoignent les multiples formules empiriques d'estimation des quantités d'eau évaporées ou évapotranspirées. Il est normal qu'il en soit de même au niveau du comportement des molécules isotopiques. La