



**HAL**  
open science

# Fonctionnement hydrogéologique et processus de transport dans les aquifères karstiques du Massif du Jura

Cybèle Cholet

## ► To cite this version:

Cybèle Cholet. Fonctionnement hydrogéologique et processus de transport dans les aquifères karstiques du Massif du Jura. Hydrologie. Université Bourgogne Franche-Comté, 2017. Français. NNT : 2017UBFCD012 . tel-01617489v1

**HAL Id: tel-01617489**

**<https://hal.science/tel-01617489v1>**

Submitted on 16 Oct 2017 (v1), last revised 2 May 2018 (v2)

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# Fontionnement hydrogéologique et processus de transport dans les aquifères karstiques du Massif du Jura

—  
Cybèle Cholet

**Thèse de doctorat**  
**Spécialité Sciences de la Vie et de l'Environnement**

—  
Laboratoire Chrono-Environnement (UMR 6249 CNRS-UBFC)  
Bureau de Recherches Géologiques et Minières (BRGM)







# Thèse de Doctorat

Spécialité Sciences de la Vie et de l'Environnement

présentée par

**Cybèle CHOLET**

---

## Fonctionnement hydrogéologique et processus de transport dans les aquifères karstiques du Massif du Jura

---

Soutenue publiquement le 18 mai 2017 à Besançon, devant le jury composé de :

Nico GOLDSCHIEDER (Professeur, Karlsruhe Institute of Technology)	Rapporteur
Nicolas MASSEI (Professeur, Université de Rouen)	Rapporteur
Christelle BATIOU-GUILHE (MCF, Université de Montpellier)	Examinatrice
Nathalie DÖRFLIGER (Chercheuse HDR, BRGM)	Examinatrice
Hélène CELLE-JEANTON (Professeure, Université de Bourgogne Franche-Comté)	Examinatrice
Marc STEINMANN (MCF HDR, Université de Bourgogne Franche-Comté)	Directeur
Jean-Baptiste CHARLIER (Chercheur, BRGM)	Encadrant
Sophie DENIMAL (MCF, Université de Bourgogne Franche-Comté)	Encadrante

Laboratoire Chrono-Environnement (UMR 6249 CNRS-UBFC)

---

Bureau de Recherches Géologiques et Minières (BRGM)





---

# Table des matières

Remerciements . . . . .	vii
Résumé . . . . .	ix
Abstract . . . . .	xi
<b>I Introduction</b>	<b>1</b>
1. Problématique et état de l'art. . . . .	1
1.1. Contexte général . . . . .	1
1.2. Traceurs naturels et artificiels . . . . .	3
1.3. Rôle du transport particulaire . . . . .	4
1.3.1. Dynamiques dissous/colloïdes/particules . . . . .	4
1.3.2. Pertinence des ETM pour caractériser différents mécanismes de transport. . . . .	6
1.4. Processus hydrodynamiques et mécanismes de transport . . . . .	7
1.4.1. Approches de modélisation. . . . .	7
1.4.2. Modélisation des échanges au cours des crues . . . . .	8
2. Objectifs . . . . .	9
<b>II Sites &amp; Méthodes</b>	<b>11</b>
1. Massif du Jura. . . . .	12
2. Sites d'étude . . . . .	17
2.1. Système karstique de Fourbanne . . . . .	17
2.1.1. Recharge allochtone de la source de Fourbanne . . . . .	20
2.1.2. Réseau d'En-Versennes . . . . .	21
2.1.3. Source de Fourbanne . . . . .	22
2.2. Source du Dahon . . . . .	23
2.3. Système karstique du Grand Bief (Lods). . . . .	24
2.4. Source du Doubs . . . . .	29
3. Méthodes d'investigation hydrogéologique . . . . .	30
3.1. Suivi hydrochimique. . . . .	30
3.1.1. Description des prélèvements . . . . .	30
3.1.2. Plateforme analytique. . . . .	32
3.2. Suivi physico-chimique. . . . .	33
3.2.1. Dispositif de mesures . . . . .	33
3.2.2. Calibrations des mesures en continu. . . . .	34
3.3. Traçages artificiels . . . . .	39
3.4. Données complémentaires . . . . .	39
3.4.1. Données météorologiques . . . . .	39
3.4.2. Données lysimétriques . . . . .	41



4. Outils statistiques . . . . .	42
4.1. Analyses corrélatoires . . . . .	42
4.2. Analyses des débits classés . . . . .	43
4.3. Analyses en composantes principales . . . . .	43
4.4. Modèle de mélange EMMA . . . . .	44
<b>PARTIE 1 - Caractérisation hydrogéologique et comparaison inter-sites</b>	<b>47</b>
<b>III A l'échelle d'un cycle hydrologique</b>	<b>47</b>
1. Cadre hydrologique et climatique . . . . .	48
2. Comportement hydrodynamique . . . . .	50
2.1. Relations précipitation - débit . . . . .	50
3. Apport de la physico-chimie . . . . .	54
3.1. Distribution des paramètres . . . . .	54
3.2. Corrélogrammes croisés entre précipitation et physico-chimie . . . . .	57
4. Apport des analyses hydrochimiques . . . . .	61
4.1. Signatures hydrochimiques caractéristiques . . . . .	61
4.1.1. Éléments majeurs . . . . .	61
4.1.2. Éléments traces métalliques . . . . .	68
5. Discussion . . . . .	75
<b>IV A l'échelle de la crue</b>	<b>77</b>
1. Cadre hydrologique des crues étudiées . . . . .	78
2. Analyse d'une crue d'automne . . . . .	78
2.1. Dynamiques physico-chimiques . . . . .	78
2.1.1. Variabilité physico-chimiques . . . . .	78
2.1.2. Analyse corrélatrice . . . . .	80
2.2. Dynamiques hydrochimiques . . . . .	83
2.3. Modélisation des mélanges sur le système du Dahon . . . . .	85
3. Analyse de crues au cours d'étiages . . . . .	89
3.1. Dynamiques physico-chimiques et hydrochimiques . . . . .	89
3.1.1. Suivi de la crue de juin 2014 . . . . .	89
3.1.2. Suivi de la crue de juin 2015 . . . . .	91
3.2. Modélisation des mélanges sur le système de Fourbanne . . . . .	93
3.2.1. Sous-système amont . . . . .	94
3.2.2. Sous-système aval . . . . .	98
4. Discussion . . . . .	101
<b>PARTIE 2 - Nature et dynamique du transport particulaire au cours des crues</b>	<b>105</b>
<b>V Utilisation des ETM pour caractériser le transport particulaire</b>	<b>105</b>
Résumé . . . . .	106
Abstract . . . . .	106
1. Introduction . . . . .	107
2. Study site and methods . . . . .	108
2.1. Study site, field sampling and monitoring . . . . .	108
2.2. Analytical methods . . . . .	109
2.3. Presentation of Rare Earth Element data . . . . .	110

3. Results . . . . .	111
3.1. Physico-chemical parameters and major elements . . . . .	111
3.2. Trace elements . . . . .	112
3.3. Rare Earth Elements (REE) . . . . .	113
4. Discussion . . . . .	115
4.1. Contributions of pre-event and event water . . . . .	115
4.2. Origin of SPM and NPC hosted trace elements . . . . .	115
4.3. Origin of the chemical load of autochthonous SPM . . . . .	116
4.4. Trace element partitioning between "dissolved" and particulate fractions . . . . .	117
5. Conclusions . . . . .	118
<b>VI Influence du type de recharge sur les transferts dissous/particulaires</b>	<b>119</b>
1. Problématique et cadre d'application . . . . .	120
2. Protocole d'analyse de la fraction totale . . . . .	120
3. Bilan des transferts . . . . .	120
4. Dynamique dissous/particulaire . . . . .	122
5. Discussion . . . . .	125
<b>PARTIE 3 - Mécanismes de transport le long d'un conduit karstique</b>	<b>129</b>
<b>VII Modélisation des échanges latéraux au cours des crues</b>	<b>129</b>
Résumé . . . . .	130
Abstract . . . . .	131
1. Introduction . . . . .	132
2. Modelling approach . . . . .	134
2.1. Assessing lateral flows . . . . .	134
2.1.1. Diffusive wave model without lateral flows . . . . .	134
2.1.2. Diffusive wave model with lateral flows . . . . .	135
2.2. Framework . . . . .	138
3. Study site . . . . .	140
3.1. Field situation . . . . .	140
3.2. Field monitoring and data processing . . . . .	141
3.3. Model application to the study site . . . . .	142
3.3.1. Sensitivity analysis . . . . .	142
3.3.2. Parametrization strategy . . . . .	143
4. Results . . . . .	143
4.1. Simulation of lateral exchanges . . . . .	143
4.2. Variability of lateral exchanges . . . . .	145
4.2.1. Lateral exchanges for the base component . . . . .	145
4.2.2. Lateral exchanges for the flood component . . . . .	146
4.3. Transport dynamics along the conduit network . . . . .	146
4.3.1. Distribution of model parameters . . . . .	146
4.3.2. Assessment of the saturated level of the conduit network . . . . .	147
5. Discussion . . . . .	148
5.1. Modelling framework . . . . .	148
5.2. Functional scheme . . . . .	150



---

6. Conclusion . . . . .	152
7. Résultats complémentaires et perspectives . . . . .	153
7.1. Contribution des traceurs artificiels à la caractérisation des échanges latéraux . . . . .	153
7.2. Synthèses des traçages . . . . .	154
7.3. Discussions et perspectives . . . . .	156
<b>VIII Conclusions</b>	<b>159</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>163</b>
<b>Table des figures</b>	<b>181</b>
<b>Liste des tableaux</b>	<b>183</b>
<b>Liste des publications et communications</b>	<b>185</b>
<b>ANNEXES</b>	<b>189</b>
<b>A Évolutions physico-chimiques du 15/09/2014 au 01/12/2014</b>	<b>189</b>
<b>B Évolutions physico-chimiques au cours des crues de juin 2014 et juin 2015</b>	<b>195</b>
<b>C Dynamiques des ETM entre les fractions filtrées et particulières</b>	<b>201</b>
<b>D Notations du Chapitre VII</b>	<b>203</b>

# Remerciements

Cette thèse est le résultat d'un travail de trois ans et demi à l'Université de Bourgogne Franche-Comté dans le laboratoire Chrono-Environnement et en collaboration avec le BRGM (Bureau de Recherches Géologiques et Minières). Elle a été réalisée grâce aux financements respectifs du BRGM et de la Région Franche-Comté.

Je tiens avant tout à remercier Marc Steinmann, Jean-Baptiste Charlier et Sophie Denimal pour m'avoir fait confiance et donner la possibilité de réaliser cette thèse avec une large palette d'outils. Ça n'a pas toujours été facile, mais j'ai pris beaucoup de plaisir à concilier ces nombreuses approches méthodologiques sur le terrain, ces analyses variées en laboratoire et la mise en œuvre de différentes démarches de modélisation. Modéliser ses propres jeux de données n'est pas toujours évident ni possible en thèse cependant c'est aussi une chance que j'ai eue et qui m'a beaucoup appris. Merci à Marc de m'avoir confié cet important dispositif de mesures et de m'avoir laissé libre d'orienter ma thèse vers ce qui m'intéressait le plus. Merci également de m'avoir fait découvrir le monde de la géochimie ainsi que donné la possibilité de me rendre à de nombreuses rencontres scientifiques nationales et internationales tout au long de ma thèse. Merci à Jean-Baptiste pour son enthousiasme et son dynamisme. Je le remercie vivement pour son accompagnement constant dans mes différentes réflexions. Même s'il se trouvait à des kilomètres, il a su me motiver, m'aider et m'orienter quand cela était nécessaire tout au long de la thèse. J'espère que je ne l'ai pas trop assommé avec mes nombreuses remises en questions hydrogéologiques. Enfin, merci à Sophie pour sa confiance et ces nombreux encouragements. J'espère grandement que ce projet d'observatoire hydrogéologique persistera et continuera à se développer dans la région.

Je remercie vivement Nico Goldscheider et Nicolas Massei pour avoir rapporté mon travail avec intérêt. Merci à Christelle Batiot, Nathalie Dörfliger et Hélène Celle-Jeanton pour leurs participations à mon jury de thèse en tant qu'examinatrices et aux réflexions qu'elles m'ont apporté dans mon travail.

J'ai eu l'opportunité d'effectuer plusieurs séjours au BRGM à Montpellier. Je remercie vivement l'ensemble de l'équipe pour leur accueil. J'espère qu'ils continueront à pouvoir se procurer du comté de qualité par d'autres collaborations fructueuses dans le Massif du Jura. Je remercie particulièrement Jean-Christophe Maréchal pour m'avoir initié à la méthode EMMA et l'intérêt qu'il a porté à mon travail, ainsi que Bernard Ladouche pour son écoute et ses conseils notamment en hydrochimie. J'en profite également pour remercier Clément Roques qui, par l'intermédiaire de Jean-Christophe, m'a mis à disposition son code pour l'application de la méthode EMMA et que j'ai pu utiliser dans le cadre de ma thèse.

Je tiens à remercier chaleureusement Roger Moussa pour l'intérêt et l'enthousiasme qu'il a portés à mon travail, sa disponibilité et ses encouragements.

Un grand merci à Denis Motte du ASDC (Association Spéléologique du Doubs Central) pour sa disponibilité et ses accompagnements réguliers dans la grotte d'En-Versennes. Merci de nous faire découvrir ce monde passionnant de la spéléologie et de consacrer toute cette énergie pour le préserver. Merci également à Jacques Prost (propriétaire du Moulin de Fourbanne), à la famille Côte (gérante de la pisciculture de Lods), ainsi qu'aux mairies d'Epenoy et de Verne pour avoir accepté l'installation de nos appareils sur leurs propriétés.

Ce travail n'aurait jamais pu avoir lieu sans l'aide extrêmement précieuse de Bruno Régent, technicien légendaire et enchanteur du laboratoire de Chrono-Environnement. Je le remercie chaleureusement. Ce fut un grand plaisir de travailler avec lui et un honneur d'être la dernière thésarde à collaborer avec lui avant son départ en retraite.

Un grand merci à Christophe Loup pour son aide et sa disponibilité pour les analyses de mes nombreux échantillons ainsi qu'aux découvertes musicales de rock indépendant que j'ai pu faire parfois grâce à lui pendant mes analyses.

Je remercie également Nadia Crini et Caroline Amiot pour les analyses ICP-MS et ICP-AES qu'elles ont réalisé sur mes échantillons.

J'ai eu le plaisir de réaliser ce travail dans le laboratoire Chrono-Environnement et je tiens à remercier l'ensemble du personnel. Merci notamment à Sylvie Costille et Yvon Thoriot pour leurs accompagnements dans la gestion administrative, et à Charles-Henri Falconnet et Jean-Daniel Tissot pour la gestion informatique. Merci aux hydrobiologistes et pédologues du laboratoire : Pierre-Marie Badot, François DeGiorgi, Eric Lucot, Etienne Chanez, Audrey Bolard et Axelle Chiffre pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail et pour les études complémentaires qu'ils ont réalisé sur certains des bassins versants étudiés dans ma thèse. Je remercie notamment Etienne et Audrey pour m'avoir initiée à la pédologie et aux nombreuses journées qu'ils ont passées à cartographier les sols et prélever l'eau des lysimètres sur le plateau d'Ornans.

Je tiens à remercier particulièrement Aurélien Vallet pour avoir toujours été à l'écoute, attentif et de bon conseil. Un grand merci également à ma binôme Pauline Jeanneret pour tout, sa bonne humeur, son humour et son soutien. Merci à Coline Druart, à Rémi Magott, Jean-Charles Poilvet, Vincent Trincal, Maxime Vieville, Fanny Duprat-Oualid, Thibault Moulin, Céline Maicher, Fabien Borderie, Dominique Rieffel, Maxime Mermet, Julie Albaric, Thibaut Powolny, Hélène Masclaux, Michael Coeurdassier, Javier Fernandez-de-Simon, Fatna Kourim, Anne-Sophie Tabaud, Aurélien Eglinger, Flavien Choulet, Nicolas Carry pour toutes ces pauses cafés bien nécessaires, ces nombreuses discussions et bons moments passés ensemble. Merci aux collègues du 4<sup>ème</sup> avec qui j'ai pu me défouler aux fléchettes dans un cadre agréable pendant la rédaction de ce manuscrit. Enfin un grand merci à l'ensemble de mes collègues doctorants, post-doctorants et permanents du laboratoire qui de près ou de loin m'ont accompagné dans ce projet par des réflexions scientifiques variées mais aussi à travers tout les bons moments conviviaux et chaleureux que j'ai pu partager avec eux.

Je souhaite aussi saluer chaleureusement l'ensemble du CHYN (Centre d'Hydrogéologie et de Géothermie) à Neuchâtel, où j'ai eu la chance de découvrir l'hydrogéologie et de m'y former pendant plusieurs années. Je remercie particulièrement Philippe Renard qui par son enthousiasme a initié ma curiosité pour la recherche et sans qui je n'aurais probablement jamais commencé de thèse. Merci notamment à Andrea Borghi, Damian Glenz, Cécile Vuilleumier, Lorianne Thüler, Damien Poffet, Guillaume Bertrand et Claire Carlier. Je remercie également Pierik Falco pour sa photo utilisée pour la 1<sup>ère</sup> de couverture.

Merci à mes amis proches pour leurs présences, leurs joies de vivre et avec qui j'ai pu m'aérer l'esprit régulièrement via nos expéditions à la montagne ou nos sorties musicales. Merci à Léo Quetglas pour m'avoir mis à disposition ses talents de graphiste pour la 1<sup>ère</sup> de couverture. Merci à mes parents qui m'ont toujours accompagnée et encouragée dans mes divers projets et ont su me rendre curieuse du monde qui m'entoure. A mon frère, pour son soutien permanent et les découvertes qu'ils me fait faire depuis toujours. Merci à Bruno pour sa présence, sa curiosité et tout l'amour qu'il me donne.

# Résumé

La compréhension du fonctionnement des aquifères karstiques est un enjeu considérable au vu des structures complexes de ces réservoirs. La forte hétérogénéité des écoulements induit une grande vulnérabilité de ces milieux et des comportements variés au cours des crues en lien avec différents processus de recharge. Dans le Massif du Jura, les aquifères karstiques constituent la principale ressource en eau potable et posent la question de leur rôle dans la dégradation de la qualité de l'eau observée depuis plusieurs décennies. Cette thèse propose différentes approches complémentaires pour mieux comprendre les dynamiques de crues dans ces aquifères sous diverses conditions hydrologiques. Plusieurs systèmes karstiques du Massif du Jura, présentant des dimensions variables et dominés par des mécanismes de recharges distincts, sont caractérisés à partir de suivis physico-chimiques et hydrochimiques détaillés.

Tout d'abord, les différents systèmes sont comparés à l'échelle du cycle hydrologique et à l'échelle saisonnière afin d'identifier les processus de recharge dominants (infiltrations localisées et/ou diffuses) ainsi que les signatures hydrochimiques caractéristiques (arrivées allochtones, autochtones et/ou anthropiques). Une étude comparative de deux systèmes met en avant la forte variabilité saisonnière de la réponse hydrochimique sur un système marqué par une recharge localisée importante. Les différents systèmes sont ensuite analysés à une échelle de temps plus fine afin de mieux comprendre les dynamiques de crues. Une crue intense d'automne a été ainsi comparée à de plus petites crues précédées par des périodes d'étiages importantes et marquées par des signatures hydrochimiques anthropiques significatives. A partir de ces résultats, la méthode EMMA (End-Member Mixing Analysis) est appliquée afin d'établir les principaux pôles hydrochimiques responsables des contributions caractéristiques des différents systèmes.

Ensuite, au vu du transport important de matières en suspension au cours des crues dans ces aquifères, une partie de ce travail vise à mieux comprendre le rôle et l'impact de ces matières sur le transport dissous et colloïdal. Les éléments traces métalliques (ETM) sont utilisés afin de caractériser l'origine et la dynamique des transferts. Ils apparaissent alors comme des outils pertinents pour identifier des phénomènes de dépôts et de remobilisation de particules dans le système. Ces dynamiques s'observent à la fois sur le système de Fourbanne marqué par une infiltration localisée importante et sur le petit système du Dahon, caractérisé par une infiltration diffuse.

Finalement, afin de mieux comprendre la variabilité spatio-temporelle des interactions qui ont lieu au cours des crues le long du conduit karstique, une nouvelle approche de modélisation est définie. Elle propose l'utilisation des équations de l'onde diffusante et d'advection-diffusion avec la même résolution mathématique (solution analytique d'Hayami (1951)) en supposant une distribution uniforme des échanges le long du conduit. A partir d'une modélisation inverse, elle permet alors d'identifier et d'estimer les échanges en termes de flux hydriques et de flux massiques entre deux stations de mesure. Cette méthodologie est appliquée sur le système de Fourbanne le long de deux tronçons caractérisant (1) la zone non-saturée et (2) zone non-saturée et saturée. L'analyse de plusieurs crues permet d'observer des dynamiques d'échanges variées sur les deux tronçons. Elle permet ainsi d'établir un schéma de fonctionnement du système soulignant des interactions importantes dans la zone saturée et également le rôle de la zone non-saturée pour le stockage dans le système karstique.

Ce travail de thèse propose donc un ensemble d'outils riches et complémentaires pour mieux comprendre les dynamiques de crues et montre l'importance de coupler l'analyse des processus hydrodynamiques et hydrochimiques afin de mieux déchiffrer le fonctionnement de ces aquifères.



# Abstract

The understanding of karst aquifer functioning is a major issue, given the complex structures of these reservoirs. The high heterogeneity of the flows induces a high vulnerability of these media and implies distinct behaviours during floods because of various infiltration processes. In the Jura Mountains, karst aquifers constitute the main source of water drinking supply and raise the question of their role in the degradation of water quality observed for several decades. This work uses complementary approaches to better understand the dynamics of floods in aquifers under various hydrological conditions. Several karst systems of the Jura Mountains, varying in size and characterized by distinct recharge processes, are investigated by detailed physico-chemical and hydrochemical monitoring.

First, the different systems are compared at the hydrological cycle scale and at the seasonal scale to identify the dominant recharge processes (localized and/or diffuse infiltrations) as well as the characteristic hydrochemical signatures (allochthonous, autochthonous and / or anthropogenic). A comparative study of two systems with distinct recharge processes highlights the high seasonal variability of the hydrochemical response. The different systems are then analysed on a finer time scale to shed light on flood dynamics. An intense autumn flood was thus compared to smaller floods preceded by periods of significant low flow and marked by significant anthropogenic hydrochemical signatures. The EMMA (End-Member Mixing Analysis) method is applied to these results in order to establish the main hydrochemical end-members responsible for the characteristic contributions of the different systems.

Then, considering the important transport of suspended matter during floods in these aquifers, part of this work aims to better understand the role and impact of these materials on dissolved and colloidal transport. Metal trace elements (ETM) are used to characterize the origin and transfer dynamics. These are relevant tools to identify the processes of storage and remobilization of the particles in the system. These dynamics are observed both on the Fourbanne system with an important localized infiltration, and on the small Dahon system, characterized by diffuse infiltration.

Finally, in order to shed light on the spatio-temporal variability of the interactions that occur along the karst network during floods, a new modelling approach is defined. It is based upon the use of the diffusive wave and advection-diffusion equations with the same mathematical resolution (Hayami's analytical solution (1951)) assuming a uniform distribution of the exchanges along the reach. An inverse modelling approach allows to identify and estimate the exchanges in terms of water flows and solute between two measurement stations. This methodology is applied to the Fourbanne system on two sections characterizing (1) the unsaturated zone and (2) unsaturated and saturated zone. The analysis of several floods highlights the different exchange dynamics on the two sections. It thus makes it possible to establish a functioning scheme of the system, bringing to light the important interactions in the saturated zone and also the storage role of the unsaturated zone in the karst system.

This work offers a set of rich and complementary tools to better characterize the dynamics of floods and shows the importance of coupling the analysis of the hydrodynamic and hydrochemical processes to better decipher the functioning of these aquifers.

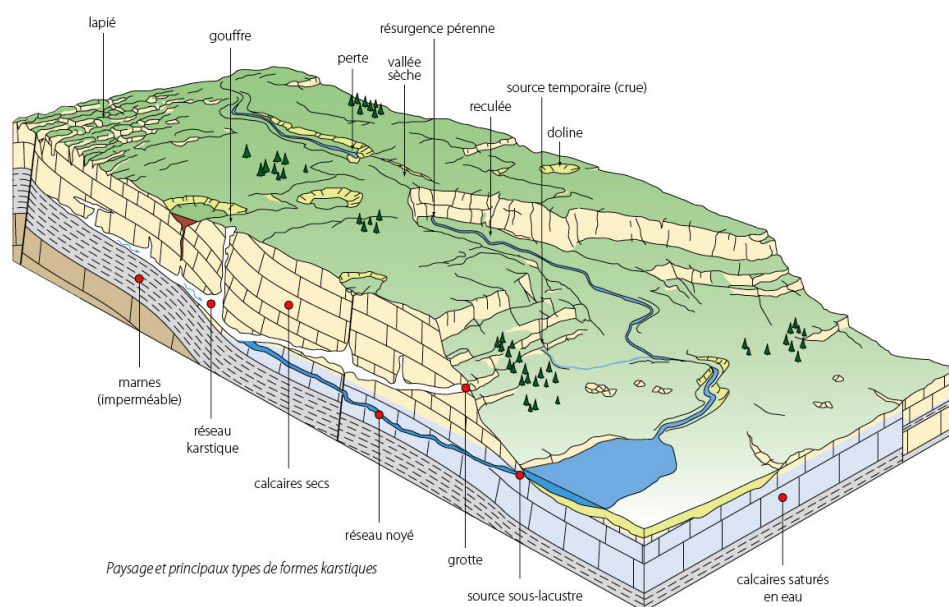


# Introduction

## 1. Problématique et état de l'art

### 1.1. Contexte général

Le karst est le résultat de processus de dissolution au sein des roches carbonatées. L'eau s'infiltrée chargée en dioxyde de carbone ( $\text{CO}_2$ ) et s'écoule à travers les fractures et les zones de faiblesses de la roche. Par son passage, elle dissout la roche progressivement (Ford and Williams, 2013) et forme ainsi des zones d'écoulements préférentielles. Elle engendre alors des vides de quelques centimètres à plusieurs mètres de diamètres rendant ce type d'aquifère très hétérogène. Ces structures fortement perméables se distinguent alors de la matrice carbonatée et fracturée qui l'entoure et induisent une forte vulnérabilité de ces milieux face aux pressions anthropiques.



**FIGURE I.1** – Schéma conceptuel du milieu karstique des plateaux du massif du Jura (Bichet and Campy, 2008)

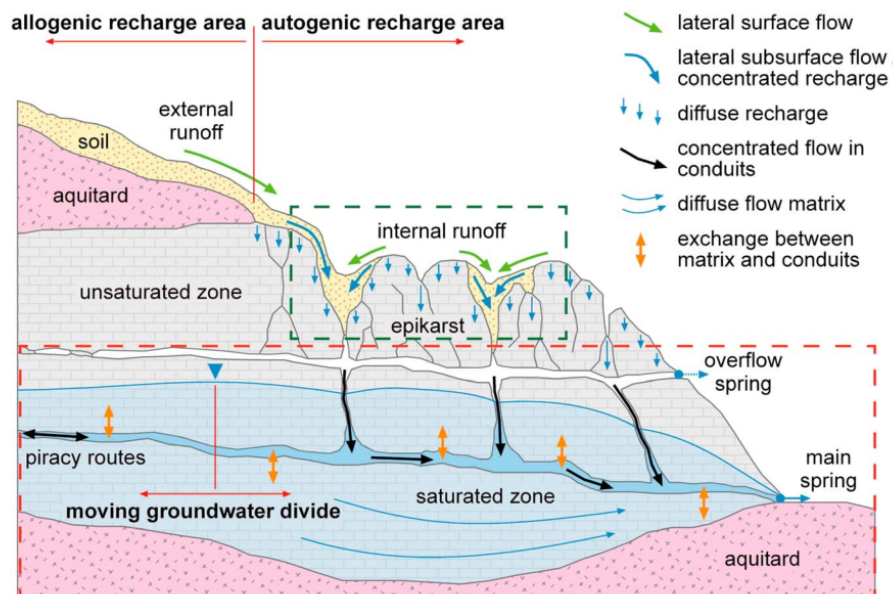
Le massif du Jura est formé de roches carbonatées abritant des aquifères karstiques. 80% des captages pour l'alimentation en eau potable de la région Franche-Comté prélèvent de l'eau issue des aquifères karstiques (Bakalowicz, 1999). Ils constituent donc une ressource majeure qui nécessite une connaissance approfondie de ces écoulements de la surface du bassin jusqu'aux exutoires. Pour mieux préserver cette ressource, l'identification des processus de recharge et de transfert



ainsi que des mécanismes de stockage dans la zone saturée comme dans la zone non-saturée est prépondérante (figure I.1).

En relation avec le degré de karstification et la hiérarchisation du réseau de drainage, les écoulements dans les aquifères karstiques se définissent par des écoulements rapides dans le réseau de drainage et des écoulements plus lents dans la matrice calcaire fracturée (White, 1969; Atkinson, 1977). Les processus de recharge en surface se distinguent essentiellement en deux types liés à la géologie et la géomorphologie du bassin : (i) l'infiltration localisées ou l'eau s'infiltré localement au niveau de pertes, liée des formations peu perméables en surface et induisant des apports allochtones, et (ii) l'infiltration diffuse plus homogène en surface.

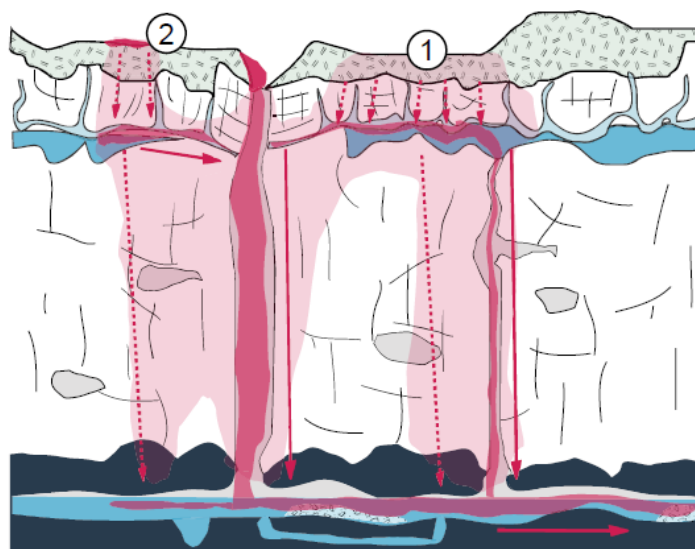
Dans l'aquifère, on distingue ensuite la zone épikarstique, la zone non-saturée et la zone saturée (figure I.2). La première constitue la zone superficielle du réservoir caractérisée par des processus biogéochimiques et de dissolution plus importants en raison de sa proximité avec le sol (Blavoux and Mudry, 1986) et peut traduire la présence d'un aquifère perché avec une capacité de stockage importante (Klimchouk, 2004; Perrin et al., 2003). Sous-jacente, la zone non-saturée est définie comme une zone d'infiltration caractérisée par des vitesses d'écoulements très hétérogènes avec des vitesses de transit très rapides dans les conduits et beaucoup plus lentes dans la matrice fracturée (Bakalowicz, 1982; Einsiedl, 2005). Elle peut jouer un rôle conséquent en tant que réservoir (Mudry, 1987; Emblanch et al., 1998; Batiot, 2002; Mudarra and Andreo, 2011). Enfin, la zone saturée constitue la zone noyée du réservoir aquifère avec d'une part le conduit très perméable et d'autre part la matrice fracturée définie comme volume peu perméable mais présentant une capacité de stockage conséquente (Blavoux and Mudry, 1983; Kiraly, 1998).



**FIGURE I.2** – Modèle conceptuel des écoulements dans les aquifères karstiques (d'après Hartmann et al. (2014)). Les pointillés vert foncés et rouges correspondent respectivement aux interactions sol/épikarst et aux sous-systèmes des écoulements souterrains.

## 1.2. Traceurs naturels et artificiels

Les différents mécanismes de recharge, ainsi que les interactions eau-sol et eau-roche vont induire des signatures hydrochimiques propres à chaque système karstique. Différents marqueurs naturels permettent d'identifier ces interactions avec le sol (Batiot et al., 2003; Quiers et al., 2014; Tissier et al., 2013), la matrice calcaire (Shuster and White, 1971; Mudry et al., 2002), ou encore d'autres lithologies par exemple marneuses ou évaporitiques (Bicalho et al., 2012). L'étude des contaminations géogènes ou anthropiques donne des clefs supplémentaires pour caractériser et identifier des processus de recharge localisée au niveau de pertes (Mahler et al., 2000) et/ou plus diffuse par la matrice fracturée (Einsiedl et al., 2010) comme illustré dans la figure I.3. Ces contaminations sont souvent induites au cours d'évènements de crues par des phénomènes de dilution ou de mobilisation de contaminations dans le système (Huebsch et al., 2014) mais s'observent également de manières plus diffuses par les apports plus lents de la matrice fissurée (Einsiedl et al., 2010; Goldscheider, 2008).



**FIGURE I.3** – Transport et stockage de contaminations dissoute dans le système karstique par (1) des infiltrations diffuses et (2) des infiltrations localisées (d'après Savoy (2007))

L'identification de certaines signatures hydrochimiques et/ou physico-chimiques permet de caractériser et de quantifier des origines spécifiques. La méthode EMMA (End-Member Mixing Analysis) est largement utilisée pour caractériser des mélanges en hydrologie de petits bassins versants (Christophersen and Hooper, 1992; Hooper, 2003). Elle est également utilisée en hydrogéologie pour caractériser les mélanges existants dans les aquifères (Lee and Krothe, 2001; Burns et al., 2001; Maréchal et al., 2011; Roques et al., 2014) et à partir d'une large gamme de traceurs (Doucette and Peterson, 2014; Meyerhoff et al., 2014). Ainsi en supposant que l'eau souterraine prélevée à un point spécifique correspond au mélange de deux ou plusieurs sources, il est possible d'estimer des proportions de mélanges à partir d'analyses de la composition chimique de l'eau. On peut alors comparer les mélanges existants sous différentes conditions hydrologiques à l'échelle pluri-annuelles (Ali et al., 2010) mais également à l'échelle d'évènements de crues (Doctor et al., 2006). En milieu karstique, la méthode est appliquée par exemple par Long and Valder (2011) qui identifient les apports d'une source artésienne sur une large structure hydrogéologique régionale. Elle est également appliquée au cours d'évènements de crues afin d'estimer les proportions de la recharge allochtone et autochtone, mais également d'apports anthropiques en provenance de l'épikarst (Doctor et al., 2006).

Les traçages artificiels sont utilisés afin de mettre en évidence des connexions entre des zones d'infiltrations et des exutoires bien précis, de définir plus précisément la zone d'alimentation d'un exutoire karstique mais donnent également de nombreuses informations complémentaires pour caractériser les processus de transport existants dans ces réservoirs. Les vitesses d'écoulement et les phénomènes de dispersion sont extrêmement variables dans l'espace entre les zones non-saturées et saturées (Lauber et al., 2014) et dans le temps en fonction des conditions hydrologiques (Duran et al., 2016). Ils donnent alors de nouveaux indices pour caractériser la structure d'un système (Smart, 1988). Il est finalement possible d'estimer la hiérarchisation et le degré de connexion du réseau de drainage ainsi que d'évaluer les phénomènes de stockage dans le système (Hauns et al., 2001; Massei et al., 2006; Geyer et al., 2007). De plus, en combinant l'utilisation simultanée de traçage naturel et artificiel, il est possible de mieux comprendre les dynamiques d'écoulements et de stockage dans l'aquifère (Einsiedl, 2005; Mudarra et al., 2014).



**FIGURE I.4** – Injection d'un traceur artificiel à la perte de la Verne dans le système de Fourbanne.

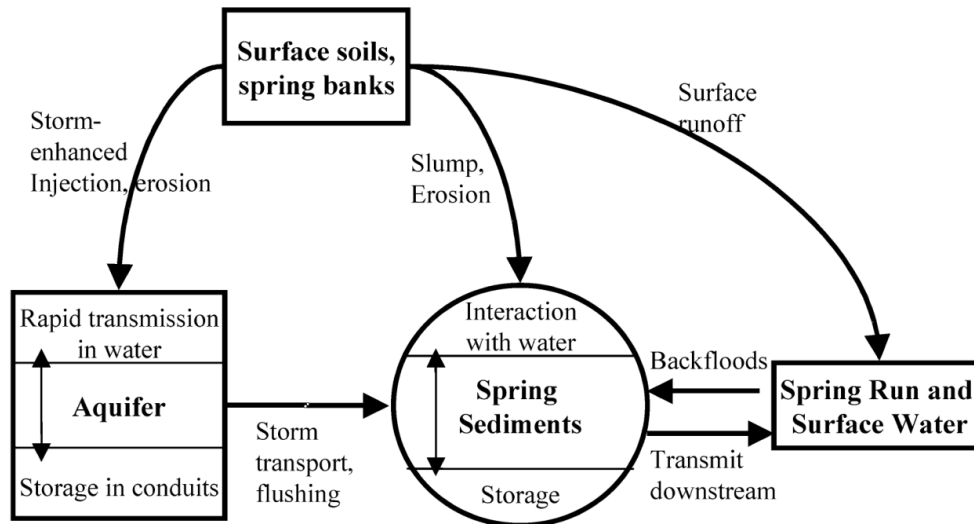
Finalement, l'ensemble de ces outils aide à comprendre et à déchiffrer la variabilité des réponses de ces systèmes. Les conditions hydrologiques et autres conditions aux limites vont contrôler les processus de transport (Göppert and Goldscheider, 2008; Morales et al., 2010; Doummar et al., 2012; Duran et al., 2016) et vont fortement influencer sur les signatures hydrochimiques et physico-chimiques. On identifie des phénomènes de mobilisation de contaminants au cours des crues (Vesper and White, 2003; Huebsch et al., 2014), l'interaction entre les différents compartiments d'un système (Perrin et al., 2007; Charmoille et al., 2009; Charlier et al., 2012; Binet et al., 2017) ainsi que des phénomènes de stockage (Einsiedl et al., 2010; Perrin et al., 2003; Binet et al., 2017).

### 1.3. Rôle du transport particulaire

#### 1.3.1. Dynamiques dissous/colloïdes/particules

Contrairement aux aquifères poreux, les aquifères karstiques font l'objet de transport de matières en suspension conséquents (Mahler et al., 1999; Massei et al., 2003; Pronk et al., 2007). On distingue généralement deux origines potentielles de ces matières en suspension au cours des crues. D'une part, elles correspondent à des arrivées liées à des infiltrations localisées et transférées directement dans le système. D'autre part, elles sont induites par des phénomènes de remobilisation dans le réseau. Ces dernières peuvent être liées à des dépôts antérieurs de matières allochtones (Sauter, 1992; Herman et al., 2008; Pronk et al., 2007) ou des matières autochtones produites par érosion interne (Reed et al., 2010). Sur des systèmes à recharge allochtone importante la

difficulté est souvent de différencier la turbidité liée à la recharge allochtone de celle induite par la remobilisation interne en lien avec l'augmentation des débits au cours des crues (Massei et al., 2003; Pronk et al., 2007).



**FIGURE I.5** – Modèle conceptuel des origines et des processus physiques contrôlant la composition chimique des sédiments prélevés à la source (d'après Vesper and White (2004))

Ces particules jouent un rôle déterminant dans le transport de contaminants dans les eaux souterraines (figure I.5). Elles sont notamment associées à des phénomènes de contaminations bactériennes (Dussart-Baptista et al., 2003; Pronk et al., 2006). Ces particules sont également à l'origine du transport d'éléments trace métalliques par complexation avec la matière organique (Hartland et al., 2012) ou encore par adsorption sur des particules inorganiques comme les argiles (Vesper and White, 2003). Ces contaminants adsorbés sur les particules peuvent être alors stockés dans le système puis remobilisés pendant les crues (Vesper and White, 2004). De plus, les processus de transport des éléments adsorbés sur les particules sont rendus davantage complexe avec l'augmentation du transport des matières en suspension et de l'évolution de la composition de ces particules/sédiments au cours des crues (Atteia and Kozel, 1997; Mahler and Lynch, 1999; Vesper and White, 2004). Les phénomènes de sorptions ou de complexations vont alors dépendre de la composition même des matériaux mais aussi de leur granulométrie et des conditions redox du milieu.

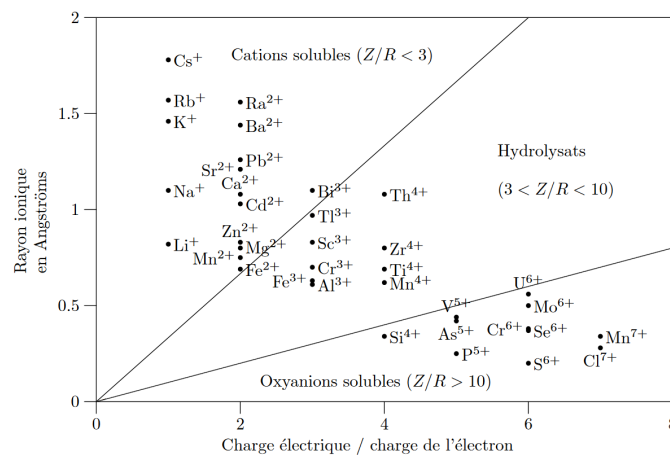
Les transferts de contaminants par la matière en suspension peuvent avoir un impact sur la dégradation écologique des cours d'eau alimentés par des bassins karstiques. Dans le massif du Jura, on retrouve par exemple des contaminations en HAP adsorbés sur les matières en suspension et les sédiments dans les cours d'eau qui pourraient notamment être associés à l'épandage de boue d'épuration sur ces bassins (Chiffre et al., 2016).

L'étude simultanée des différents types de traceurs donne des informations intéressantes pour mieux caractériser les processus de transports dans un conduit karstique (Geyer et al., 2007; Göppert and Goldscheider, 2008; Luhmann et al., 2012). Ainsi le transport d'éléments dissous et particulaire montre des dynamiques différentes. Göppert and Goldscheider (2008) identifient en basses eaux des vitesses de transit plus rapides pour les colloïdes/particules que les éléments dissous, mais des vitesses similaires en hautes eaux. Goldscheider et al. (2008) expérimentent éga-

lement l'injection simultanée de boue et d'urane, et observent une augmentation des concentrations et de la turbidité simultanément. Toutefois l'arrivée de pic de turbidité ainsi que la décroissance apparaît plus rapide pour la turbidité. Cette différence pourrait s'expliquer alors par le transport des particules au milieu des zones d'écoulements préférentielles avec des vitesses moyennes plus élevées (Goldscheider et al., 2008). Luhmann et al. (2012) observent également ce type de comportements avec l'arrivée dans un premier temps du pic de la matière en suspension, puis simultanément l'arrivée de traceurs dissous conservatifs (urane, chlorure et deutérium) et finalement la température avec un effet retard important. Ils interprètent ce phénomène de déphasage par deux hypothèses dépendantes de la vitesse d'écoulement et de la géométrie du conduit. Une vitesse d'écoulement faible induirait une augmentation du dépôt le long de la zone d'écoulement et donc un artefact sur le pic de matières en suspension (Luhmann et al., 2012). En revanche si les vitesses d'écoulements ne diminuent pas, ces arrivées pourraient être induites par les phénomènes de transport préférentiels des sédiments (Goldscheider et al., 2008).

### 1.3.2. Pertinence des ETM pour caractériser différents mécanismes de transport

Les éléments traces métalliques (ETM) sont présents à l'état naturel dans les roches (Dematteis, 1995) et le sol (Baize, 1997). Ils sont également associés à des pollutions anthropiques (Bradl, 2005) suite aux épandages (fertilisants, boues de stations d'épuration), à des dépôts de contaminations atmosphériques (Hernandez et al., 2003; Diaz-de Quijano et al., 2016) ou encore au lessivage de décharges (officielles ou sauvages).



**FIGURE I.6** – Formes des éléments chargés positivement en solution dans l'eau selon leur charge électrique  $Z$  et leur rayon ionique  $R$  (d'après Dewolf and Bourrié (2008)).

Ces éléments traces métalliques présentent des comportements distincts en fonction de leur potentiel ionique. Leur mobilité dans le milieu va dépendre du pH et des conditions redox. Afin de classer ces éléments selon leur propriétés physico-chimiques, Goldschmidt (1954) propose de classer les cations et les métaux traces selon leur potentiel ionique qui correspond au rapport entre la charge électrique de l'ion et son rayon ionique ( $Z/R$ ) comme illustré dans la figure I.6. On distingue alors trois grands groupes :

- les cations solubles dans l'eau quel que soit le pH ( $Z/R < 3$ ) ;
- les hydrolysats, éléments intermédiaires caractérisés par des phénomènes de spéciation complexes en fonction des conditions d'oxydo-réduction et de pH du milieu ( $3 < Z/R < 10$ ) ;

— les oxyanions, éléments solubles sous forme d'oxydes ou d'hydroxydes ( $Z/R > 10$ ).

Dans les aquifères karstiques, le transport des éléments traces métalliques est complexe au vu de leurs comportements distincts, des phénomènes de complexation avec la matière organique (Hartland et al., 2012) ou encore des phénomènes d'adsorption sur des particules inorganiques comme les argiles (Vesper and White, 2003). Le transport de ces éléments est dépendant de la taille des particules mais également de leurs compositions. Des événements de crues vont donc induire une mobilisation de ces éléments en raison des variations hydrodynamiques mais également de l'évolution des conditions chimiques dans les différents compartiments du système. Cette mobilisation est observée de manière importante à la fois dans les conduits et à la fois dans la matrice calcaire fracturée (McCarthy and Shevenell, 1998; Vesper and White, 2003; Hartland et al., 2012).

Ils apparaissent alors comme des traceurs pertinents pour différencier des mécanismes de recharge - localisée et/ou diffuse - de par la taille des particules mais également en fonction du type d'élément présent. Ceux-ci caractérisent alors des origines distinctes - autochtone et/ou allochtone - et différencient également les apports géogènes ou anthropiques (épandages, pollutions atmosphériques, etc).

## 1.4. Processus hydrodynamiques et mécanismes de transport

### 1.4.1. Approches de modélisation

L'ensemble des mécanismes présentés précédemment sont fortement dépendants des conditions hydrologiques présentes dans le système. Les interactions et les échanges entre différents compartiments de ces aquifères hétérogènes sont mises en évidence par de nombreuses approches (Einsiedl et al., 2010; Binet et al., 2017). Ces processus de transfert hydrodynamiques et les mécanismes de transport sont cependant complexes et induisent une forte non-stationnarité et non-linéarité des réponses au cours d'un cycle hydrologique.

Les processus de transport sont déterminés par la variabilité spatiale du réseau karstique induisant le passage d'écoulements à surface libre à des écoulements sous-pression (Covington et al., 2011). Ils sont également à l'origine d'échanges complexes entre les conduits et la matrice fracturée (Martin and Dean, 2001) avec des phénomènes d'inversion de gradients entre ces deux milieux (Atkinson, 1977; Jeannin, 1996; Bailly et al., 2009). L'identification de la variabilité spatio-temporelle de ces échanges hydrodynamiques semble donc nécessaire pour mieux comprendre les processus de transport existants au cours des crues. De ce fait, l'utilisation combinée des signatures hydrochimiques et hydrodynamiques semble pertinente pour mieux comprendre les processus dominants de ces systèmes (Charlier et al., 2012; Hartmann et al., 2013; Arfib and Charlier, 2016).

Pour une meilleure compréhension des mécanismes de transport et de stockage dans les aquifères karstiques, différentes approches de modélisation hydrogéologique sont utilisées. Ces modèles permettent de représenter et de conceptualiser de manière simplifiée les processus de transfert afin de répondre à une problématique donnée. Ils donnent la possibilité de regrouper plusieurs types de paramètres et de variables au sein d'un même ensemble fonctionnel dans le but de tester des hypothèses (validation d'un schéma de fonctionnement, prévision, test de scénarios). La complexité des aquifères karstiques décrite précédemment est mise en évidence lors de la conceptualisation et la modélisation de ces systèmes.

Différentes typologies de modèles hydrogéologiques existent selon que l'on se base sur la spatialisaiton des processus (globale vs. distribuée) ou sur la complexité des équations implémentées

dans le modèle (empirique vs. mécaniste). En retenant la première typologie, la famille des modèles globaux s'intéresse aux relations entrée-sortie, et donc à la réponse hydrogéologique des systèmes. Ils regroupent d'une part les approches empiriques ou « boîte noire », ne faisant intervenir aucun processus physique tout en permettant d'analyser les relations entre 2 variables (Mangin, 1984; Padilla and Pulido-Bosch, 1995; Pinault et al., 2001; Labat et al., 2000; Dörfli-ger et al., 2009; Charlier et al., 2015), et les approches conceptuelles ou « boîtes grises » qui considèrent le système comme un assemblage de réservoirs interconnectés (Rimmer and Salingar, 2006; Geyer et al., 2008; Jukić and Denić-Jukić, 2009; Moussu et al., 2011; Charlier et al., 2012; Hartmann et al., 2013). Ces derniers sont des modèles mathématiques généralement simples, utilisés comme des modèles de bilan. Ils permettent d'évaluer une certaine complexité des processus si l'on considère que chaque réservoir correspond à un compartiment de l'aquifère (sol/épikarst, zone non saturée, zone saturée, etc.), ou si l'on couple le modèle de transfert avec un modèle de mélange pour intégrer le transport de soluté (Charlier et al., 2012; Hartmann et al., 2013; Arfib and Charlier, 2016).

La famille des modèles distribués s'intéresse à la spatialisation des processus et de ce fait utilise généralement une approche mécaniste basée sur des phénomènes physiques. Ils nécessitent souvent de posséder de nombreuses données et connaissances du système. Les calculs sont plus lourds et généralement difficiles à faire converger. Parmi les nombreuses approches appliquées aux systèmes karstiques, on peut citer les modèles de milieu poreux équivalent (Teutsch and Sauter, 1998; Kiraly, 2003), ou les modèles prenant en compte le réseau de conduits (Bailly et al., 2009; Chen and Goldscheider, 2014; Reimann et al., 2011). L'enjeu des approches distribuées est de réussir à représenter l'importante hétérogénéité spatiale de ces milieux (Ghasemizadeh et al., 2012), ce qui implique également de tenir compte d'une forte hétérogénéité des écoulements (laminaire et turbulents, à surface libre et en charge) et des processus de transport.

Aucune de ces approches globale et distribuée n'est idéale et une famille de modèles intermédiaire consiste alors en une approche simplifiée de la spatialisation d'un système tout en s'appuyant sur des processus physiques. Ces modèles peuvent être définis par une approche semi-distribuée pour caractériser le fonctionnement de certains compartiments des systèmes karstiques pour lesquels des données et/ou des connaissances plus fines sont disponibles.

#### 1.4.2. Modélisation des échanges au cours des crues

Pour mieux comprendre les mécanismes de transport au cours des crues, il est donc nécessaire de prendre en compte la variabilité spatiale et temporelle des échanges entre les conduits et la matrice calcaire fracturée.

En hydrologie, les traceurs naturels et artificiels sont largement utilisés pour mieux comprendre la variabilité spatiale des échanges (pertes et apports) et des interactions entre les écoulements de surface et les écoulements souterrains. Ruehl et al. (2006) montrent l'importance de ces échanges et des phénomènes de stockages existants le long d'un cours d'eau. Payn et al. (2009) démontrent la variabilité de ces échanges en fonction du contexte géomorphologique et identifient simultanément des pertes et des apports. La simulation de ces échanges est possible à partir de modèles 1D de simulation numérique à différences finies (Runkel and Chapra, 1993; Runkel, 1998). Ce même type de modèle est appliqué dans les conduits karstiques afin de caractériser les interactions existantes entre les conduits et la matrice dans la zone non-saturée ainsi que dans la zone saturée (Dewaide et al., 2016) et illustre notamment l'importance des interactions entre les compartiments. Ces modèles sont cependant élaborés pour simuler le transport en régime permanent et ne sont donc pas adaptés pour caractériser l'évolution temporelle des échanges conduits/matrice



au cours des crues lorsque l'on passe en régime transitoire.

Les équations de Saint-Venant décrivent l'écoulement en régime transitoire d'un fluide à surface libre (Saint-Venant, 1871) et sont utilisées pour simuler les processus hydrodynamiques dans les conduits karstiques. En négligeant les termes d'accélération de ces équations, le système de Saint-Venant se réduit à une équation parabolique et aboutie à l'équation de l'onde diffusante qui apparaît alors comme simplification appropriée pour simuler les écoulements (Moussa and Bocquillon, 1996; Fan and Li, 2006; Wang et al., 2014). L'équation combine alors un paramètre advectif (célérité) et diffusif (diffusivité). Afin de mieux caractériser les interactions entre le conduit et la matrice calcaire fracturée au cours des événements de crue, il est important de pouvoir identifier et estimer la distribution temporelle et spatiale des échanges latéraux existants le long du conduit.

En se basant sur les hypothèses de Hayami (1951) et en considérant une distribution latérale uniforme le long d'un tronçon, Moussa (1996) propose une solution analytique de l'onde diffusante permettant de simuler la variabilité temporelle des échanges latéraux le long d'un tronçon. Ainsi en connaissant l'hydrogramme amont et l'hydrogramme aval d'un tronçon, il est possible de simuler les échanges (pertes latérales, apports latéraux ou encore les deux successivement). Cette méthodologie est largement appliquée pour la modélisation des écoulements de surface (Moussa, 1996) et a été appliquée récemment avec succès sur de larges bassins karstiques (Charlier et al., 2015) afin d'évaluer la variabilité spatiale et temporelle des cours d'eau avec les unités karstiques latérales.

Au vu des différents mécanismes présentés précédemment, l'utilisation de l'onde diffusante pour caractériser les échanges hydrodynamiques entre le conduit et la matrice au cours de la crue semble donc pertinente. De plus, afin de mieux comprendre et décrire ces échanges, il semble également nécessaire d'y associer l'analyse de la variabilité hydrochimique au cours des crues.

## 2. Objectifs

Ce travail de thèse vise à mieux comprendre les processus de recharge et de transport dans les aquifères karstiques et repose sur plusieurs axes de recherche :

- Quelle est la variabilité spatiale et temporelle des réponses hydrogéologiques de systèmes karstiques marqués par des processus de recharge contrastés ?
- Comment cette réponse hydrogéologique est influencée par le transport particulaire ? Quel rôle joue la fraction particulaire dans le transport chimique et notamment des ETM au cours des crues, et comment ceux-ci peuvent-ils être utilisés pour mieux comprendre les processus de recharge ?
- Lors de la recharge, quelle est la variabilité spatiale et temporelle des processus de transport au sein du système ? Comment caractériser les échanges latéraux existants le long du réseau de conduit au cours des crues en terme de flux hydriques et flux massiques ?

A la suite de cette introduction, le chapitre "Sites et Méthodes" expose dans un premier temps les différents sites d'étude de cette thèse, localisés dans le Massif du Jura, et présente les différents outils hydrochimiques, statistiques et modélisation utilisés.



L'ensemble des résultats s'organisent ensuite en 3 parties :

#### PARTIE 1 : CARACTÉRISATION HYDROGÉOLOGIQUE ET COMPARAISON INTER-SITES

Dans cette partie, nous cherchons à mieux comprendre et comparer le fonctionnement des différents systèmes karstiques étudiés. Dans un premier temps, les mécanismes de recharge à l'échelle saisonnière et les signatures physico-chimiques/hydrochimiques de chacun de ces systèmes sont caractérisés. Une étude comparative sur deux systèmes possédant des mécanismes de recharge distincts : (i) une recharge localisée importante et (ii) par une recharge principalement diffuse ; met en avant la forte variabilité saisonnière de la réponse hydrochimique de ces systèmes. Dans un deuxième temps, les processus de transport dissous au cours de plusieurs épisodes de crues sont analysés. L'ensemble des résultats permet alors d'établir les principaux pôles hydrochimiques responsables des principales contributions caractéristiques.

#### PARTIE 2 : NATURE ET DYNAMIQUE DU TRANSPORT PARTICULAIRE AU COURS DES CRUES

Nous tentons ici de mieux comprendre le rôle et l'importance de la fraction particulaire dans le transport des éléments traces métalliques (ETM). Deux types de crues sont analysées sur des systèmes marqués par des processus de recharges distincts. L'utilisation des ETM comme traceurs pour mieux comprendre simultanément l'origine et la dynamique du transport dissous, colloïdal et particulaire est alors proposée. La quantification des flux exportés permet de discuter de l'importance relative de ces fractions lors des crues.

#### PARTIE 3 : MÉCANISMES DE TRANSPORT LE LONG D'UN CONDUIT KARSTIQUE

Afin de mieux comprendre les échanges latéraux existants au cours des crues entre le conduit et la matrice, une nouvelle méthodologie est proposée. Celle-ci repose sur une approche de modélisation inverse de l'onde diffusante qui permet de simuler les échanges latéraux au cours d'une crue. La méthodologie proposée combine les équations de l'onde diffusante et d'advection-diffusion avec la même résolution mathématique et donne alors la possibilité de caractériser les échanges à la fois en termes de flux hydriques et de flux massiques. A partir de stations de mesures installées le long du conduit, il est possible de différencier la variabilité des échanges dans la zone non-saturée et saturée. Cette approche permet alors de caractériser la variabilité spatiale et temporelle du fonctionnement d'un système karstique marqué par une recharge localisée importante sous des conditions hydrologiques variées.

---

## Sites & Méthodes

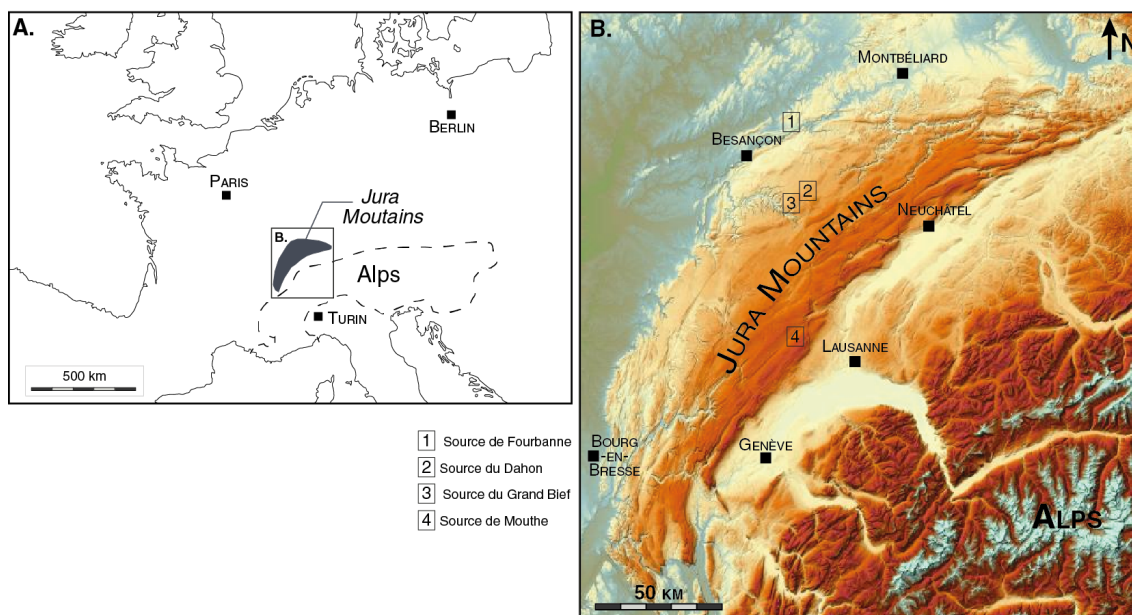
### Structure

1. Massif du Jura . . . . .	12
2. Sites d'étude . . . . .	17
2.1. Système karstique de Fourbanne . . . . .	17
2.2. Source du Dahon . . . . .	23
2.3. Système karstique du Grand Bief (Lods) . . . . .	24
2.4. Source du Doubs . . . . .	29
3. Méthodes d'investigation hydrogéologique . . . . .	30
3.1. Suivi hydrochimique . . . . .	30
3.2. Suivi physico-chimique . . . . .	33
3.3. Traçages artificiels . . . . .	39
3.4. Données complémentaires . . . . .	39
4. Outils statistiques . . . . .	42
4.1. Analyses corrélatoires . . . . .	42
4.2. Analyses des débits classés . . . . .	43
4.3. Analyses en composantes principales . . . . .	43
4.4. Modèle de mélange EMMA . . . . .	44

# 1. Massif du Jura

## Contexte géographique et géologique

Le Massif du Jura est une chaîne montagneuse de décollement qui résulte d'une poussée à distance provoquée par la formation des Alpes. Les terrains sédimentaires déposés au cours de l'ère secondaire ont alors été décollés du socle au niveau des séries évaporitiques du Trias, puis déformés et plissés. Le massif apparaît sous forme de croissant d'orientation générale nord-est / sud-ouest qui s'étend sur plus de 350 km pour une largeur variant de quelques kilomètres à 65 km entre Besançon et Neuchâtel (figure II.1). Son relief augmente progressivement du nord-ouest au sud-est, passant par une succession de plateaux jusqu'à des altitudes maximales de 1500 à 1700 m dans la Haute Chaîne plissée, puis décroît de manière plus abrupte sur son versant suisse.

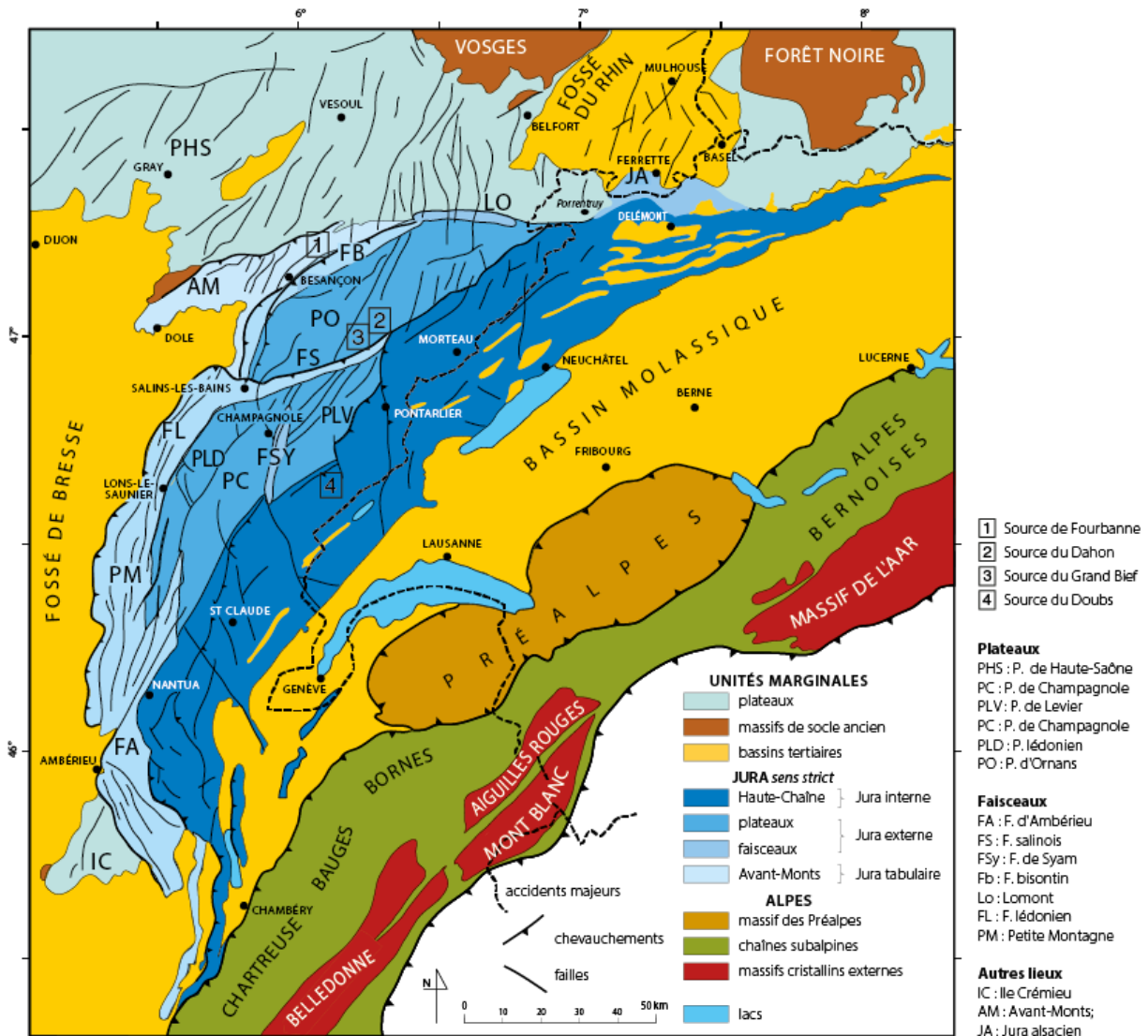


**FIGURE II.1** – Localisation géographique (A) et carte du relief IGN avec la localisation des sites d'étude (B)

La chaîne jurassienne est entourée de dépressions sédimentaires tertiaires et quaternaires avec le fossé rhénan au nord, le fossé de la Bresse à l'ouest et le bassin molassique du plateau suisse au sud-est. Elle est composée de trois principales unités (Sommaruga, 1997) :

- le Jura interne, consistant en une succession de plis bien développés et caractérisés par de nombreux chevauchements et décrochements, également appelé la Haute-Chaîne.
- le Jura externe, composé de plateaux constitués de couches sub-horizontales et séparés par des faisceaux. Les faisceaux sont des zones accidentées fortement plissées et faillées et marquent des changements d'altitude entre les différents plateaux.
- le Jura tabulaire, correspondant à des couches horizontales avec notamment les plateaux de l'île Cremieux, les Avants-Monts et les plateaux de Haute-Saône.

Les systèmes karstiques étudiés dans le cadre de ce projet de thèse se répartissent dans ces trois grandes unités structurales (figure II.2). Le système karstique de la source de Fourbanne se situe dans le Jura tabulaire dans la zone des Avants-Monts, les systèmes de la source du Dahon et du Grand Bief dans le Jura externe localisés respectivement sur le plateau d'Ornans et au contact avec le faisceau salinois, enfin celui de la source du Doubs dans le Jura interne.

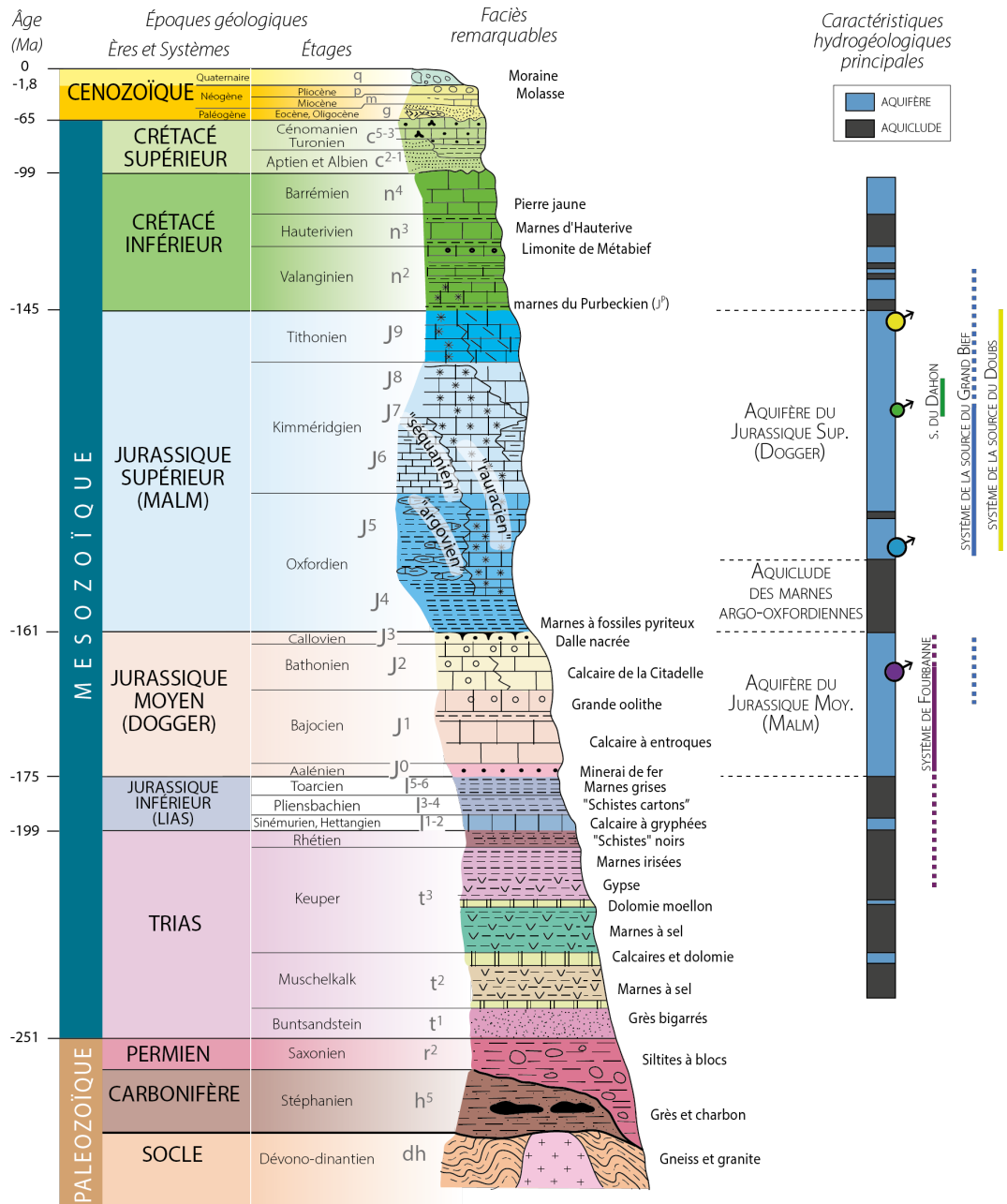


**FIGURE II.2** – Schéma de la structure des principales unités géologiques du Massif du Jura tiré de Bichet and Campy (2008) d’après Sommaruga (1997)

Les terrains du Massif du Jura correspondent essentiellement aux dépôts du Mésozoïque (datant de -251 à -65 millions d’années) en particulier dans les séries du Jurassique et du Crétacé et de manière plus superficielle aux dépôts plus récents du Cénozoïque. D’après Sommaruga (1997), les terrains du Mésozoïque se sont déplacés et déformés sur les formations évaporitiques à la base du Trias et n’impliqueraient pas le socle plus ancien.

L’ensemble de la série stratigraphique présente dans le Massif du Jura est illustrée dans la figure II.3 et permet d’identifier les principaux aquifères et aquicludes du massif, représentés à droite de la figure. On distingue notamment les grandes séries calcaires dans le Jurassique moyen (ou Dogger) et supérieur (ou Malm) décrivant les deux principaux aquifères importants séparés par l’imposante série marneuse argo-oxfordienne jouant le rôle d’aquiclude. Ces deux grands aquifères sont séparés des couches évaporitiques du Trias par les dépôts marneux du Jurassique inférieur (ou Lias).

Le système de Fourbanne est localisé dans le Jurassique moyen quand ceux des sources du Dahon, du Grand Bief et du Doubs appartiennent correspondent au Jurassique supérieur.



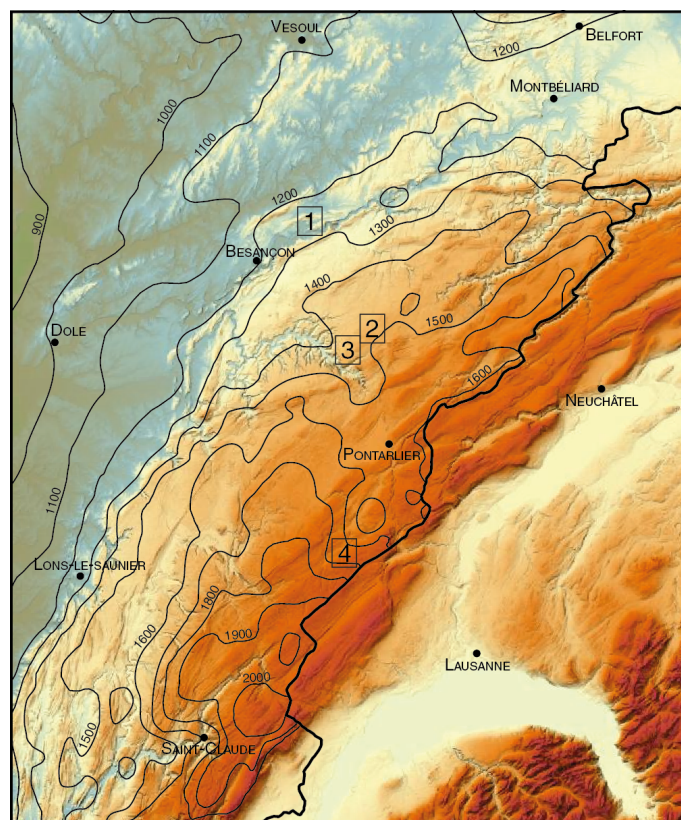
**FIGURE II.3** – Série stratigraphique caractéristique du Massif du Jura modifiée d'après Bichet and Campy (2008) en lien avec les principales caractéristiques hydrogéologiques et la localisation des systèmes karstiques étudiés

### Contexte climatique

La région du Massif du Jura est caractérisée par un climat tempéré à influence océanique, continentale et montagnard (Vermot-Desroches, 2015). L'influence océanique est induite par des perturbations météorologiques arrivant notamment de l'Atlantique. Sa distance avec l'océan implique cependant de fortes amplitudes de températures avec l'observation de vagues de froid et de chaleur, lui donnant ainsi son caractère continental. Enfin, du fait de son relief, le massif présente un climat montagnard qui s'accroît avec l'altitude, avec des températures plus froides entraînant un enneigement important dans les zones de hautes altitudes.



La figure II.4 présente la répartition de la moyenne des précipitations annuelles en fonction du relief dans le Massif Jurassien français à partir des données Météo France sur la période 1981-2010. Les précipitations annuelles varient autour de 1200 mm aux basses altitudes, augmentent progressivement jusqu'à 1600-1700 mm dans la Haute-Chaîne, et atteignent localement jusqu'à 2000 mm dans les environs de Saint-Claude. En distinguant les précipitations pluvieuses et neigeuses, Charlier et al. (2014) ont montré que le régime des pluies est relativement homogène sur l'ensemble des plateaux et que les précipitations plus importantes dans la Haute-Chaîne seraient contrôlées par les précipitations neigeuses.



**FIGURE II.4** – Carte des précipitations annuelles moyennes sur la période 1981-2010 en fonction du relief (modifiée d'après Vermot-Desroches (2015)). Données disponibles uniquement coté français.

L'impact du changement climatique dans le Massif du Jura est étudié par Vermot-Desroches (2015), qui a analysé les mesures météorologiques réalisées à Besançon depuis 1885. Il observe une évolution du climat dans la région avec une augmentation de la tendance océanique impliquant notamment un cumul des précipitations inter-annuelles qui tend à devenir plus régulier. Il observe également l'augmentation des températures moyennes annuelles, mais aussi et particulièrement des températures minimales et constate que les moyennes des températures aujourd'hui à Besançon sont similaires à celles mesurées à Lyon en 1900. Enfin, il met en avant que le nombre de jours de canicule en été est en forte augmentation et qu'au vu du cinquième rapport du GIEC (GIEC, 2014), on peut s'attendre à une augmentation du nombre de jours de sécheresse dans la région (Vermot-Desroches, 2015).

Ces évolutions climatiques impactent le fonctionnement hydrogéologique des aquifères karstiques dans le massif, avec des conséquences mises en évidence récemment dans différentes études (Tissier, 2012; Mudry et al., 2015; Jeannin et al., 2016; Caballero et al., 2016).

## Karst jurassien

Mieux comprendre le fonctionnement hydrogéologique des aquifères karstiques du Massif du Jura nécessite donc de faire le lien entre les structures géologiques déformées et faillées, les successions lithologiques du Mésozoïque caractérisées par différents réservoirs carbonatés interstratifiées, par de nombreux niveaux marneux plus ou moins épais et homogènes, mais également à travers les structures karstiques complexes liées aux processus de dissolution induisant des écoulements préférentiels dans les aquifères. La figure I.1 illustre les différentes structures caractéristiques des formations karstiques observées dans le Massif du Jura.

Marsaud (1996) distingue deux types de systèmes karstiques : les systèmes vauclusiens qui décrivent un réseau de drainage développé en profondeur sous le niveau de l'exutoire, et les systèmes jurassiens qui s'organisent à une altitude proche du niveau de l'exutoire. Cette différenciation a probablement été établie en considérant les systèmes jurassiens des plateaux où les couches tabulaires peuvent favoriser ce type d'aquifère avec une faible épaisseur de la zone saturée. Cependant, on remarque que le terme "jurassien" ne semble pas toujours adapté notamment dans le cas des exutoires karstiques localisés dans les zones de faisceaux ou dans la Haute-Chaine plissée présentant un réseau de drainage conséquent dans la zone saturée. Ainsi, trois des quatre systèmes karstiques étudiés dans ce projet de thèse présentent des exutoires caractérisés par des conduits karstiques plongeant en profondeur dans la zone saturée de ces systèmes et indiquant un réseau karstique noyé conséquent.

En terme de cavités recensées sur le territoire, le GIPEK (Groupement pour l'Inventaire, la Protection et l'Étude du Karst du Massif Jurassien) en recense plus de 6000 rien que pour le département du Doubs dont 28% correspondraient à des grottes, 34% à des gouffres, 14% à des pertes et 19% à des émergences (GIPEK, 2012).



**FIGURE II.5** – Hétérogénéité des profondeurs de sol au contact de la roche carbonatée (Photo E. Lucot)

Il est intéressant également de noter les particularités des sols, majoritairement de type sol bruns dans le Massif du Jura, qui montrent des profondeurs très hétérogènes (figure II.5 Bruckert and Gaiffe, 1985). Ainsi les dolines peuvent présenter des sols relativement profonds (supérieurs à 90 cm) quand les plateaux calcaires du massif dénotent des profondeurs particulièrement faibles (de quelques centimètres). L'occupation des sols doit donc être prise en compte pour mieux comprendre la vulnérabilité de ces systèmes ainsi que les transferts liés à ces couches superficielles. Elle est dominée dans le Massif du Jura par les espaces naturels et agricoles, en particulier l'élevage bovin laitier. On note que près de 45% de la surface du massif est occupée par des espaces forestiers, 26% par des prairies permanentes et 18% par des cultures et prairies temporaires (SOes and AEE, 2009). L'identification des pressions anthropiques sur les bassins est donc nécessaire et importante dans l'étude de ces milieux puisqu'elles peuvent avoir un impact sur le type d'écoulement en surface (imperméabilisation des sols) mais également en terme de qualité de l'eau avec des rejets domestiques, industriels et/ou agricoles.

## 2. Sites d'étude

Cette section décrit maintenant avec une résolution plus précise les différents systèmes karstiques étudiés et localisés sur les figures II.2 et II.3. Le tableau suivant résume les grandes caractéristiques de chacun de ces systèmes. Les différents sites sont localisés sur des zones géomorphologiques bien distinctes dans le Massif du Jura et se différencient en terme d'altitude, de structure géologique, de lithologie mais également en terme de dimension de la zone d'alimentation des sources.

**TABLE II.1** – Tableau de synthèse des différentes sources étudiées

source	<b>Fourbanne</b>	<b>Dahon</b>	<b>Grand Bief</b>	<b>Doubs</b>
localisation	Avants-Monts (Jura tabulaire)	Plateau d'Ornans (Jura externe)	Plateau d'Ornans et Faisceau salinois (Jura externe)	Haute-Chaine (Jura interne)
lithologie à la source	calcaires du Bajocien (Jurassique Moy.)	calcaires du Kimméridgien (Jurassique Sup.)	calcaires du Rauracien (Jurassique Sup.)	calcaires du Tithonien (Jurassique Sup.)
zone de recharge (km <sup>2</sup> )	≈30	≈1 – 2	≈35	≈50
altitude max (m)	400	750	920	1420
altitude de la source (m)	260	720	360	940
température moy. annuelle (°C )	10-11	9-10	9-10	6-7
précipitation annuelle (mm)	1200-1300	1400-1500	1400-1500	1600-1700
débit moyen (m <sup>3</sup> .s <sup>-1</sup> )	0.4	0.013	1.1	1.7

### 2.1. Système karstique de Fourbanne

La source de Fourbanne se situe à 20 km au Nord-Est de Besançon dans la vallée du Doubs. Son bassin, estimé à 30 km<sup>2</sup>, est localisé dans la structure géologique des Avants-Monts dans le Jura tabulaire (figure II.2). Cette zone est délimitée par le faisceau bisontin au sud et le chevauchement de l'Ognon au nord. Dans le secteur d'étude, elle est caractérisée essentiellement par des calcaires tabulaires du Jurassique Moyen, légèrement plissés et entrecoupés par un réseau de failles méridiennes nord-sud. Celles-ci font notamment apparaître à la surface les couches marneuses du Jurassique inférieur et parfois du Trias. Elles créent ainsi un contraste important en surface entre les zones peu perméables qui induisent un ruissellement en surface important, et les zones calcaires perméables identifiées par de nombreuses dolines apparentes (cf. photo II.6).

La zone de recharge de la source de Fourbanne est estimée à partir de l'étude des structures géologiques (figure II.8 Charmoille, 2005; BRGM, 22)) ainsi que plusieurs essais de traçage réalisés par les associations de spéléologues et plusieurs bureaux d'étude dans la région. Ces données sont illustrées dans la figure II.7(a), qui présente les principales informations nécessaires pour caractériser la zone de recharge de la source de Fourbanne.





**FIGURE II.6** – Nombreuses dolines présentes sur l’axe Fontenotte-Grosbois-Fourbanne (photo prise en amont et à proximité de la source de Fourbanne)

La zone de recharge est délimitée au nord par la topographie avec une ligne de crête dominant la vallée de l’Ognon et caractérisée par des couches calcaires du Bajocien inférieur présentant un léger pendage vers le sud. À l’est, une faille importante orientée nord-sud met en contact les terrains peu perméables du Trias et du Jurassique inférieur et sert donc de barrière hydraulique à l’est du bassin. Enfin au sud-est, le bassin est délimité par les crêtes du relief du Framont, correspondant à un anticlinal servant de barrière hydraulique en raison de son cœur marneux du Jurassique inférieur (Charmoille, 2005). La délimitation du bassin à l’ouest est moins évidente. Un traçage réalisé avec les étudiants en master de géologie appliquée à l’Université de Bourgogne Franche-Comté a notamment permis de mieux la contraindre. Ainsi 1 kg de fluorescéine a été injecté le 5 novembre 2014 à la perte Lucot, localisée à 1,5 km au Sud-Est du village de Tournans. Les résultats ne montrent aucun lien entre la perte Lucot et la source de Fourbanne. En revanche, les analyses de charbons actifs localisés aux sources de la Beune et de Joloin localisées à 1 et 1,5 km de la Bretenière, sont positives et indiquent un temps de transit inférieur à 3 jours. Des temps de transit précis n’ont cependant pas pu être mesurés. Ce nouveau traçage combiné aux analyses des coupes géologiques permet donc de mieux contraindre le bassin d’alimentation de la source de Fourbanne à l’ouest. Ainsi, d’une part, les couches géologiques entre le village de Fontenotte et de la Bretenière montrent un pendage orienté vers l’ouest, facilitant une partie des écoulements dans cette direction. D’autre part, le réseau de faille partant du village de Tournans en direction de Val-de-Roulans semble jouer le rôle de barrière hydraulique avec le bassin d’alimentation de Fourbanne. On peut donc considérer cette barrière comme limite ouest du bassin versant de Fourbanne.

La figure II.7(b) donne quelques informations complémentaires concernant l’occupation des sols sur le bassin de Fourbanne. On remarque assez nettement que les sous-bassins marneux sont largement occupés par des zones agricoles du fait de l’épaisseur des sols sur les formations plus argileuses, correspondant essentiellement à des cultures et prairies permanentes et temporaires. La partie calcaire du bassin présente une plus grande surface occupée par des forêts et des zones de cultures aux alentours des villages de Grosbois et Fourbanne.

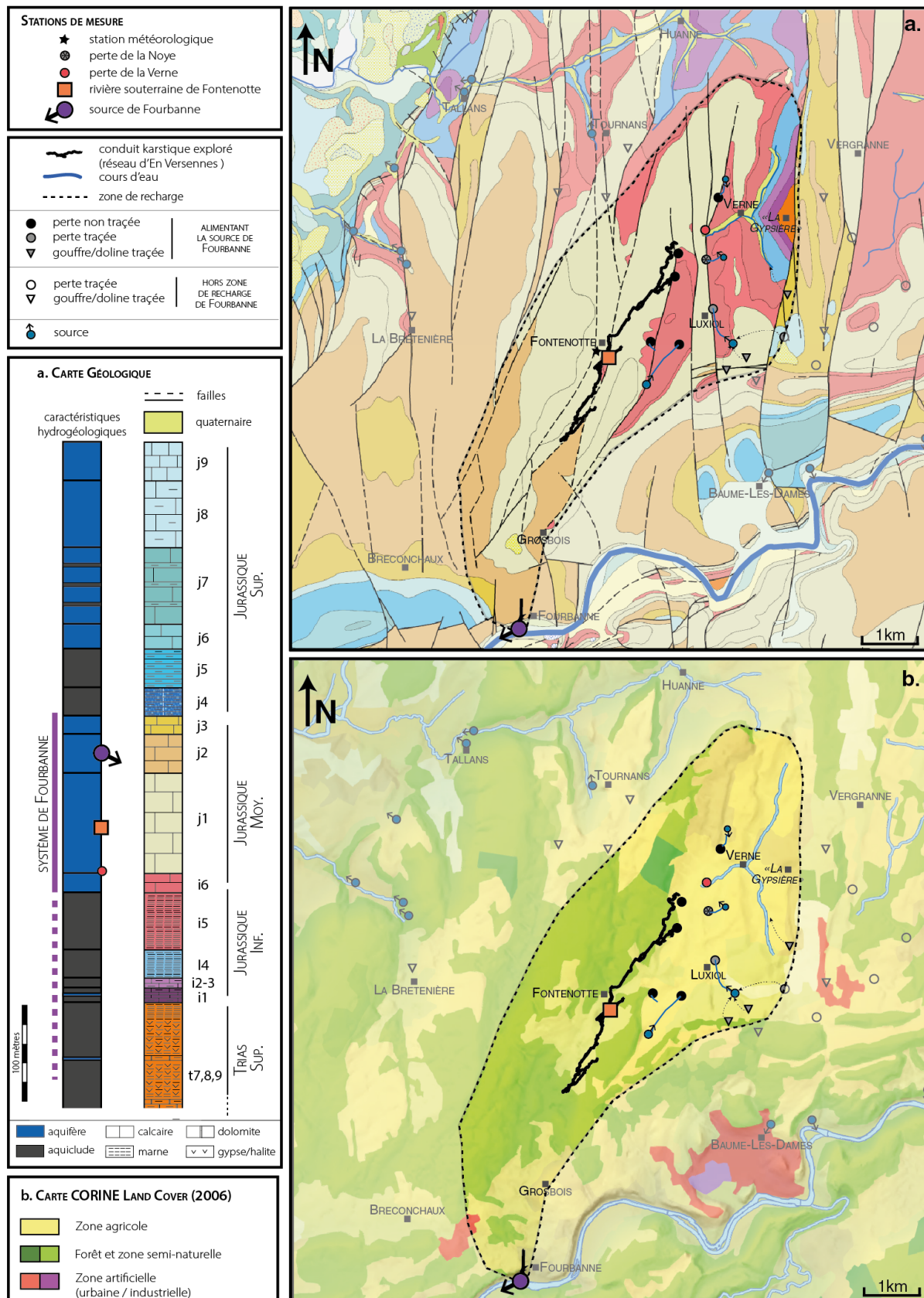


FIGURE II.7 – Description de la zone de recharge du système karstique de Fourbanne avec (a) la carte géologique et (b) la carte de l’occupation des sols.

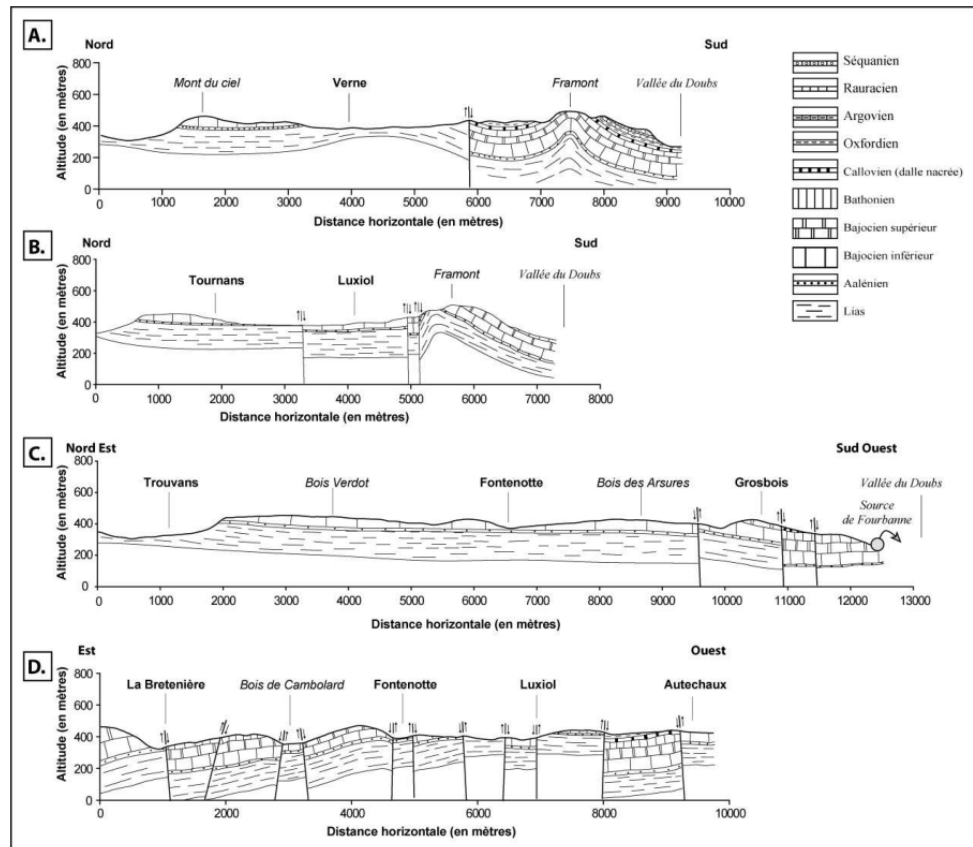


FIGURE II.8 – Coupes géologiques dans la région des Avant-Monts d'après Charmoille (2005)

### 2.1.1. Recharge allochtone de la source de Fourbanne

La zone de recharge alimentant la source de Fourbanne présente dans sa partie amont des sous-bassins marneux importants (environ 7 km<sup>2</sup>) induits essentiellement par les couches affleurantes du Jurassique inférieur mais également du Trias (à moins de 2 km à l'est du village de Verne, cf carte II.7). Ces bassins peu perméables créent un ruissellement en surface important qui est ensuite drainé plus en aval par plusieurs pertes, au contact avec les calcaires du Jurassique Moyen et/ou de zones faillées. Au total, 8 pertes sont localisées sur le bassin et créent ainsi une recharge allochtone importante du système de Fourbanne en rejoignant le réseau souterrain d'En-Versennes. La perte de la Verne est la perte principale du bassin et constitue une des stations de mesure de cette étude sur le système de Fourbanne. Elle draine un sous-bassin estimé entre 4 et 5 km<sup>2</sup> caractérisé par les marnes du Jurassique inférieur ainsi que les marnes à gypse du Trias supérieur.

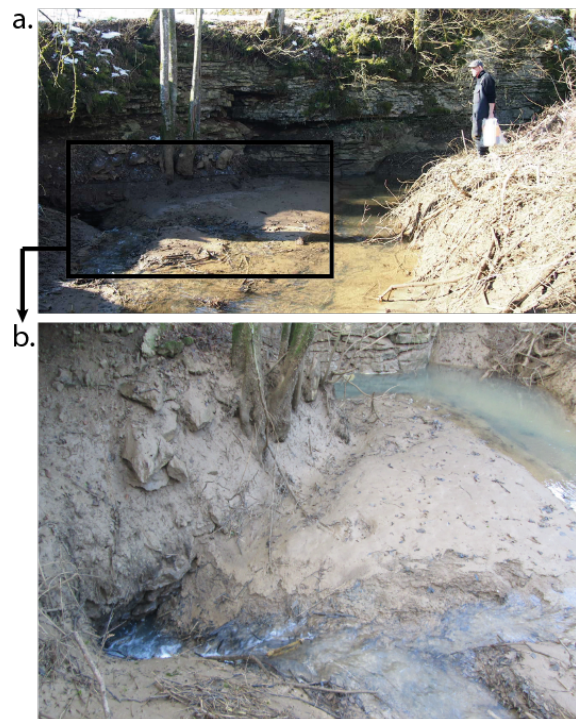
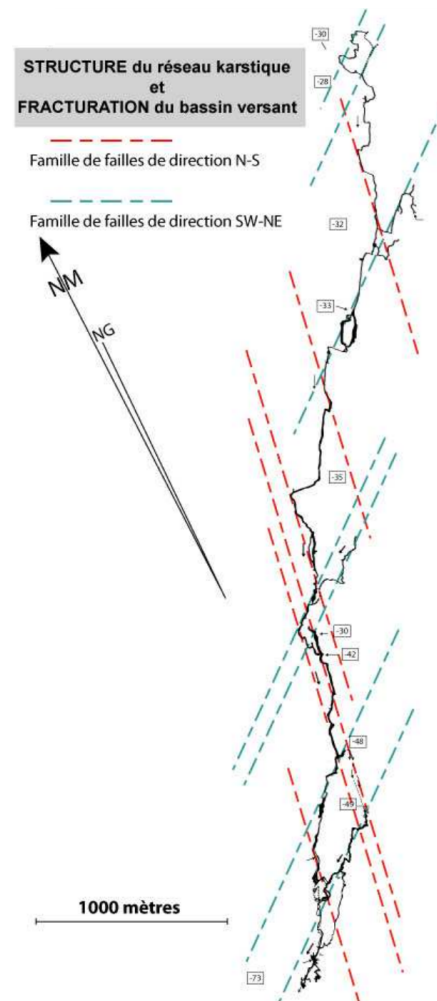


FIGURE II.9 – Perte de la Verne en basses eaux



On note d'ailleurs d'anciennes mines de gypse au lieu-dit nommé "La Gypsière" dans cette partie affleurante du Trias. Six autres pertes connues sont présentes sur le bassin de Fourbanne. Celles-ci drainent des zones où affluent essentiellement les marnes micacées du Toarcien dans le Jurassique inférieur. De plus, la perte de Luxiol draine des eaux provenant d'une source nommée "Source des Messieurs" récoltant elle-même les eaux d'infiltration d'une petite zone calcaire au Sud-Est de Luxiol. Enfin il est important de noter pour la suite de cette étude, la présence d'une station de lagunage récoltant les eaux des villages de Verne et Luxiol et localisée entre ces mêmes villages. La sortie de la station de lagunage est évacuée dans le petit ruisseau se perdant ensuite à la perte de la Noye. Ces rejets domestiques dilués dans les eaux du ruisseau donnent très probablement une signature hydrochimique particulière qui sera considérée dans la suite de cette étude.

Afin de caractériser cette recharge allochtone et d'avoir un suivi précis des eaux des sous-bassins marneux, la perte de la Verne a été équipée depuis janvier 2015 comme station de mesure pour un suivi physico-chimique en continu (débit (Q), conductivité électrique (EC) et température) et de prélèvements ponctuels. La perte de la Noye a également fait l'objet de prélèvements ponctuels.



**FIGURE II.10** – Relation entre la structure du réseau d'En-Versennes et la fracturation observée dans la zone des Avants-Monts d'après Charmoille (2005) et la topographie du réseau d'En-Versennes réalisée par l'ASDC (Association Spéléologique du Doubs Central)

### 2.1.2. Réseau d'En-Versennes

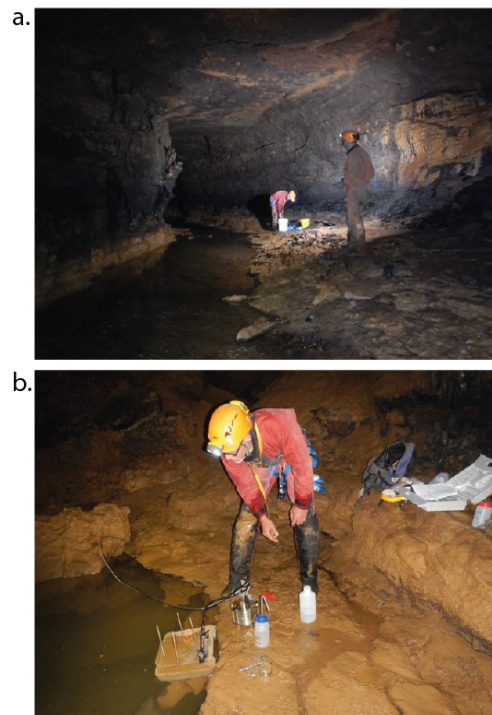
Ce réseau karstique, appelé réseau d'En-Versennes, est exploré et topographié par l'ASDC (Association Spéléologique du Doubs Central) sur plus de 8 km dans la zone non-saturée (cf. Fig. II.10). Il est accessible via les pertes d'En-Versennes et de la Vernoye.

Charmoille (2005) met en avant le lien entre la structure du réseau d'En-Versennes avec les deux familles principales de fracturation dans la zone de recharge : une famille de direction nord-sud et une de direction SW-NE. L'orientation principale du réseau exploré est de N20 à N30 (Charmoille, 2005). En revanche, l'aval du réseau reste inexploré sur une distance de 3 km à vol d'oiseau avant de rejoindre la source de Fourbanne. Au niveau de cette partie aval, il apparaît en surface une succession de dolines délimitant une longue dépression jusqu'à la source et qui semble en lien direct avec la continuité du réseau karstique en profondeur.

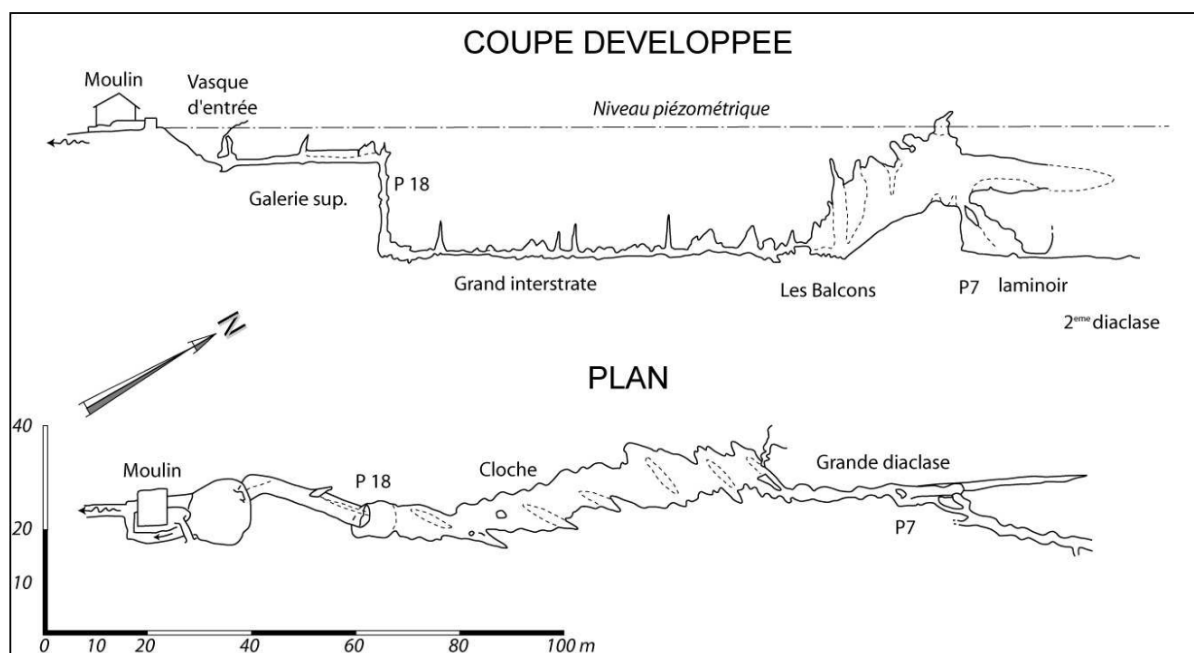
Un puits artificiel a été réalisé par l'association des spéléologues du Doubs Central nous donnant ainsi la possibilité d'accéder directement à la rivière souterraine d'En-Versennes (cf. photo II.11) au niveau du village de Fontenotte. Grâce à cet accès, la rivière souterraine de Fontenotte a été équipée de sondes de mesures physico-chimiques en continu et a pu faire l'objet ponctuellement d'un suivi hydrochimique au cours de crues.

### 2.1.3. Source de Fourbanne

L'exutoire de ce réseau correspond donc à la source de Fourbanne. Elle se présente sous la forme d'une vasque alimentée par un conduit karstique saturé plongeant en profondeur. La source a été explorée par des groupes de spéléoplongeurs qui ont progressé sur une longueur de 500 m (GIPEK, 2012). Grâce à ces explorations, nous savons que le conduit reste immergé sur toute cette longueur avec une profondeur maximale de 25 m. Le débit moyen mesuré sur notre chronique est de  $0.4 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  et peut atteindre des débits bien supérieurs à  $3 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ .



**FIGURE II.11** – Rivière souterraine dans le réseau d'En-Versennes vers Fontenotte (a) et maintenance puis étalonnage des équipements de la station de mesure (b).



**FIGURE II.12** – Profil topographique en coupe et en plan du conduit karstique alimentant la source de Fourbanne



**FIGURE II.13** – Source de Fourbanne en basses eaux en octobre 2013 (a) et au cours de la crue exceptionnelle de novembre 1999 (b; Photo J. Prost), et maintenance des équipements de la station de mesure (c).

## 2.2. Source du Dahon

La source du Dahon appelée aussi source d'En Analoz est située dans une petite reculée au pied d'une falaise boisée d'une trentaine de mètres de hauteur et partiellement masquée par des éboulis (figure II.14(a)). Elle se situe dans les calcaires du Kimméridgien inférieur et draine les eaux du plateau constitué de sols peu épais sur un petit impluvium délimité en partie par essais de traçage (Mudry, 1998). La source semble être liée à un niveau marno-calcaire, souvent glauconieux, localisé à la base du Kimméridgien et décrit comme relativement constant et puissant de 1 ou 2 mètres d'épaisseur (BRGM, 3424). Malgré son petit impluvium, la source est pérenne. Elle était déjà captée à l'époque gallo-romaine et est toujours utilisée comme captage pour l'alimentation en eau potable du village d'Epenoy. Le fond du captage regroupe de petites arrivées d'eau (figure II.14(b)) pour être ensuite canalisée plus en aval. Nos appareils de mesures sont installés directement en aval de ces arrivées d'eau.



**FIGURE II.14** – Captage de la source du Dahon (a) et fond du captage avec les arrivées d'eau (b)



Le bassin alimentant la source est difficile à délimiter précisément. À partir d'un modèle pluie-débit, le bilan au pas de temps journalier calculé à partir des chroniques de débit et les données de précipitations et d'ETP de Météo France, la surface du bassin est estimée entre 0,6 et 0,7 km<sup>2</sup>. Cependant le bassin d'alimentation pourrait apparaître plus grand et seulement une partie des eaux seraient alors restituée à la source quand une autre partie s'infiltrerait plus en profondeur. Plusieurs traçages aux alentours réalisés dans des dolines présentent une connexion avec le système des sources du Grand Bief et de la Truite d'Or ou encore le système Brême-Maine-Ecoutot correspondant à un vaste et complexe système karstique impliquant des circulations d'eaux souterraines plus profondes. Il semblerait donc que la source du Dahon corresponde à une source plus superficielle liée à des niveaux marno-calcaires à la base du Kimméridgien, drainant ainsi les eaux d'un petit bassin du plateau piégées dans les calcaires du Kimméridgien (figure II.15(a)). Cette hypothèse semble d'ailleurs cohérente avec des observations réalisées à Valdahon en 1992 lors d'un forage profond de 547 m traversant les couches du Kimméridgien jusqu'au Bajocien (soletco, 1992). Ce rapport décrit des "arrivées d'eau" et la présence de "mini-karst" lié à l'apparition de couches marneuses de faible épaisseur dans le Jurassique supérieur. La source pourrait donc s'apparenter à ce type de contexte sans toutefois exclure qu'une partie des eaux de ce petit aquifère puisse rejoindre des écoulements plus profonds.

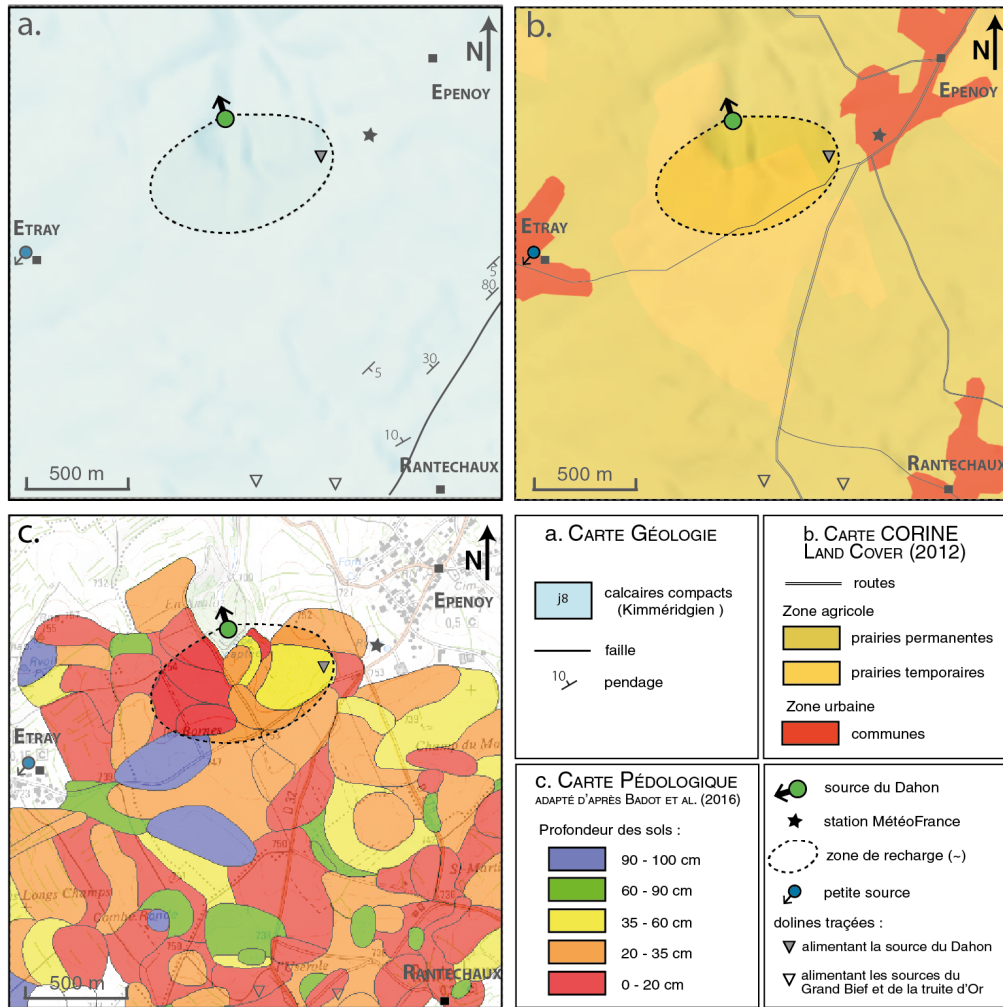
En terme d'occupation des sols, les données de *CORINE Land Cover* (SOes and AEE, 2009), illustrée dans la figure II.15(b), montrent que le bassin ainsi délimité est essentiellement occupé par des prairies permanentes et temporaires. En complément, il est intéressant de noter que la cartographie des profondeurs de sols dans ce secteur (Badot et al., 2016) décrit des profondeurs particulièrement faibles dans la zone de recharge alimentant la source du Dahon (figure II.15(c)). Ainsi environ 40% des sols présenteraient des profondeurs inférieures à 20 cm, 25% entre 20 et 35 cm et 25% entre 35 et 60 cm. Dans le cas où la zone de recharge serait sous-estimée, il apparaît que l'occupation du sol ne varierait pas énormément. Un impact de rejets domestiques liés au village d'Epenoy pourrait être éventuellement observé.

### 2.3. Système karstique du Grand Bief (Lods)

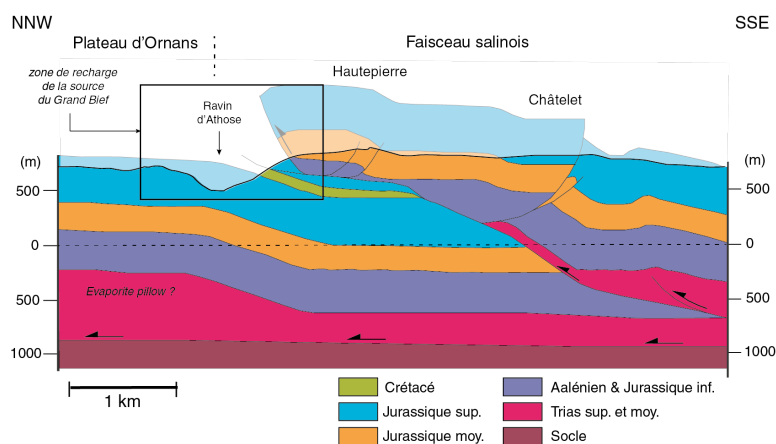
La source du Grand Bief se situe à 25 km au Sud-Est de Besançon sur la rive droite de la vallée de la Loue. La zone de recharge de la source s'étend suivant l'axe d'une dépression en bordure du plateau d'Ornans et est surplombée par la structure plissée et chevauchante du Faisceau Salinois (figures II.16(a) et II.18(a)). Elle correspond à une zone de recharge estimée à environ 35 km<sup>2</sup> avec comme exutoire principal la source du Grand Bief et présente également un exutoire secondaire dénommé la source de la Truite d'Or. Ces deux sources sont situées dans le village de Lods à 360 m d'altitude et distants de moins de 500 m l'une de l'autre. Quelques mètres au-dessus de la source du Grand Bief, deux sources temporaires apparaissent en période de hautes eaux apportant une contribution supplémentaire au débit global de la source du Grand Bief. La station de suivi de cette dernière se situe à l'aval de l'arrivée de ces sources temporaires.

Les connections hydrauliques entre ces exutoires et la zone de recharge qui s'étend sur plus de 11 km vers le NE sont relativement bien connues et documentées grâce aux nombreux essais de traçage réalisés sur le bassin. La délimitation de la zone de recharge est réalisée à partir de ces traçages et semble donc en lien avec de nombreux faciès géologiques, du lias au crétacé, de part la structure plissée et chevauchante induite par le passage du faisceau salinois.

Sommaruga (1997) décrit à partir des interprétations de profils sismiques, qu'un coussin évaporitique du Trias serait localisé au front de l'anticlinal de grande amplitude qu'est le faisceau salinois, à une profondeur d'environ 1 km.



**FIGURE II.15** – Description de la zone de recharge alimentant la source du Dahon avec (a) la carte géologique (BRGM, 3424), (b) l’occupation du sol d’après les données de Corine Land Cover 2012 (SOes and AEE, 2009) et (c) la carte pédologique décrivant les profondeurs des sols (Badot et al., 2016).

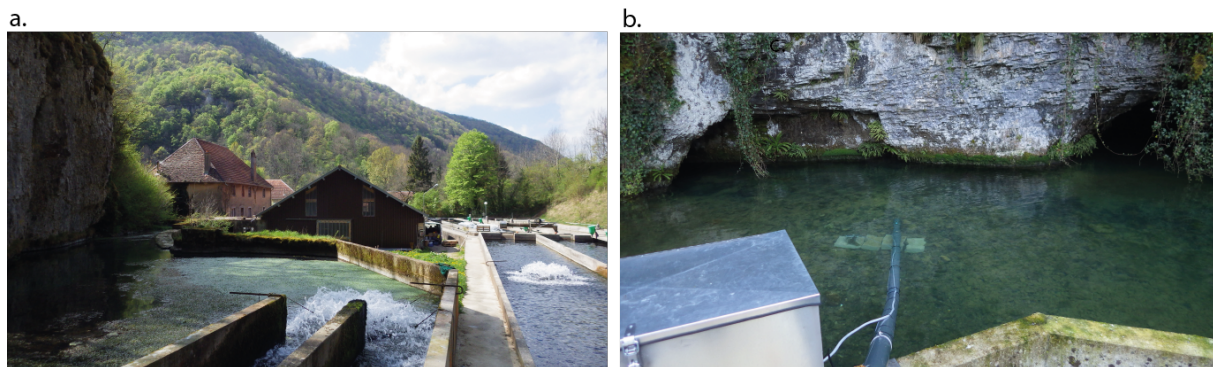


**FIGURE II.16** – Coupe géologique de la transition entre le plateau d’Ornans (NNW) et le faisceau salinois (SSE) au niveau du village de HautePierre (modifiée d’après Sommaruga (1997)), et localisation de la zone d’étude de la source du Grand Bief.



Le système du Grand Bief présente une recharge diffuse dominante sur l'ensemble du bassin. Quelques pertes sont cependant localisées. On en remarque en particulier à la base du Crétacé dans les calcaires du Valanginien. Ces pertes sont alimentées par de petites sources qui apparaissent au niveau du chevauchement au contact entre les calcaires du Jurassique supérieur et les marnes/marno-calcaires de l'Hauterivien inférieur (Crétacé). Elles alimentent notamment le ruisseau d'Athose qui se perd ensuite progressivement suivant les conditions hydrologiques dans la perte du moulin d'Athose ou même plus en aval dans une zone marécageuse située juste en amont du village de Lods et correspondant à un cône d'éboulement sur le flanc nord du ravin d'Athose. D'autres petites pertes sont présentes sur le bassin comme illustré dans la figure II.18.

L'épaisseur des couches calcaires sub-tabulaires au niveau du plateau d'Ornans jusqu'à la source de Lods est évalué entre 200 et 300 m. Un forage profond réalisé au niveau de Valdahon sur le plateau d'Ornans indique deux zones aquifères à différentes profondeurs dans l'aquifère du Malm : une à la base du séquanien supérieur et une autre en tête des marnes argovo-oxfordiennes correspondant au faciès à la base de la source du Grand Bief. Les sources du Grand Bief et de la truite d'or apparaissent plus précisément dans les niveaux supérieurs de l'Oxfordien (Jurassique supérieur) dans le faciès du Rauracien (j6) caractérisé essentiellement par des calcaires oolithiques et présentant à sa base quelques calcaires marneux feuilletés.



**FIGURE II.17** – Vue de la source sur la vallée de la Loue et la pisciculture (a) et station de mesure à la source du Grand Bief (b)

La source du Grand Bief draine la zone saturée du bassin et alimente une pisciculture située directement en aval de la source (figure II.17). Des tentatives de prospection de la part de spéléoplongeurs pour explorer la source du Grand Bief n'ont pas été concluantes. Le réseau est inaccessible en raison de deux petites diaclases ennoyées et pénétrables sur seulement quelques mètres (GIPEK, 2012). Les sondes de la station de mesure sont installées directement à la sortie de l'exutoire, récoltant à la fois les eaux de la source du Grand Bief mais également des sources temporaires canalisées. La mesure des hauteurs d'eau est réalisée plus en aval au niveau d'une section bien canalisée du cours d'eau (figure II.19). Aucune mesure n'a cependant pu être réalisée à la source de la Truite d'Or, rendant difficile une estimation précise de la superficie du bassin à partir de modèles pluie-débit. Au vu des structures géologiques complexes du bassin, la zone de recharge ainsi délimitée donne un bon aperçu du bassin alimentant les sources du Grand Bief et de la Truite d'Or. Cependant elle est conceptualisée de manière très simplifiée au vu de la structure complexe du réservoir karstique en profondeur en lien avec le faisceau salinois.

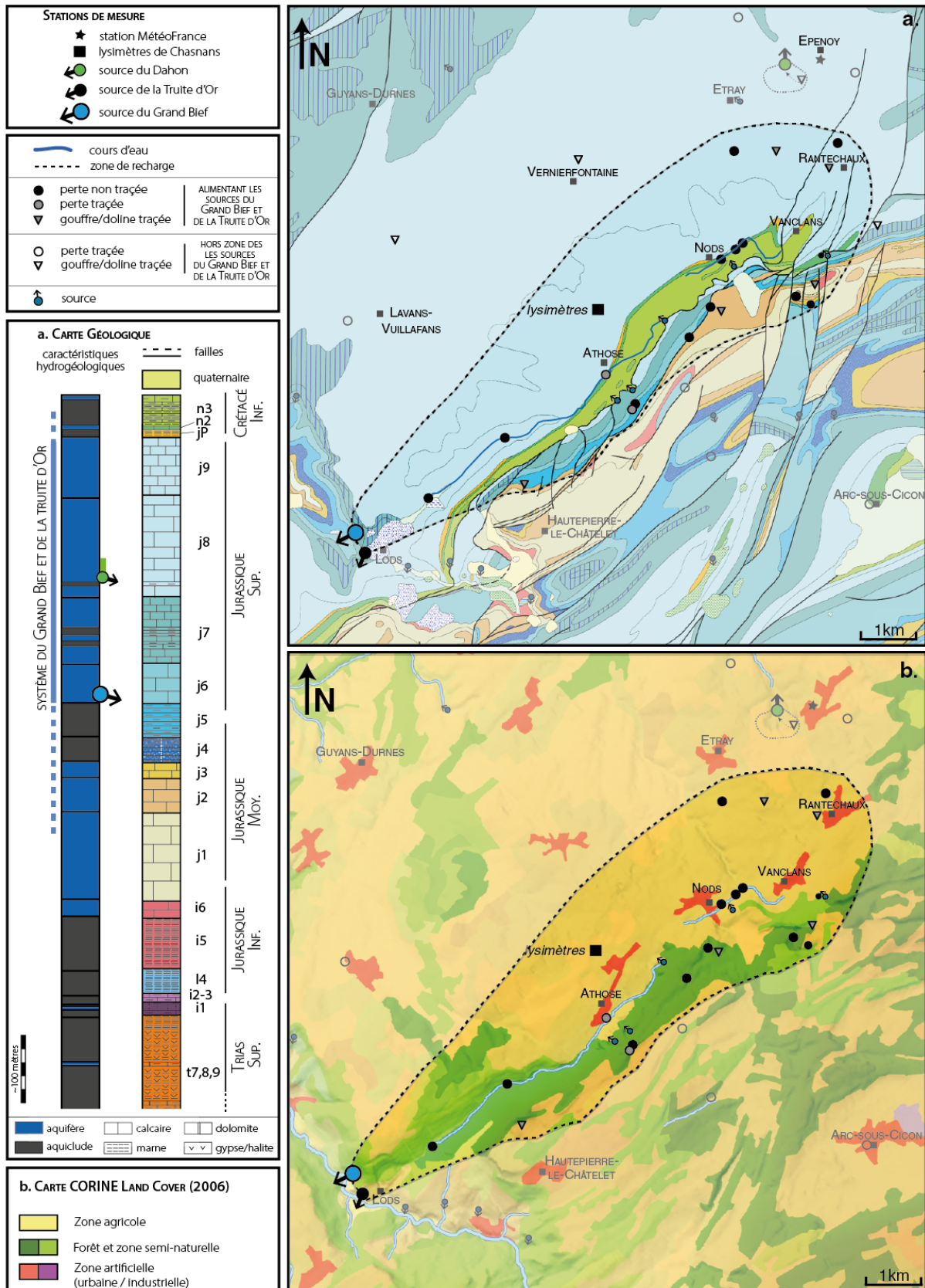


FIGURE II.18 – Description de la zone de recharge du système karstique de la source du Grand Bief avec (a) la carte géologique et (b) la carte de l'occupation des sols.

Une étude pédologique d'une grande partie du bassin alimentant la source du Grand Bief a été réalisée récemment par Badot et al. (2016). Elle décrit la couverture pédologique cartographiée du bassin comme étant majoritairement occupée par des sols brunifiés faiblement acides de profondeur faible à moyenne. Les profils de sols dominants correspondent à une texture limono-argileuse en surface avec une abondance moyenne de matière organique dans le 1<sup>er</sup> horizon avec la présence de cailloux et sans hydromorphie. Il est intéressant de noter que sur l'ensemble de la surface des sols agricoles cartographiés du bassin, 35% sont occupés par des sols de profondeur inférieure à 20 cm, 45% par des sols de profondeur comprise entre 20 et 60 cm et seulement 20% par des sols de profondeur supérieure à 60 cm (figure II.21). Il apparaît donc que les sols de la zone de recharge du Grand Bief sont en grande partie de faible profondeur.

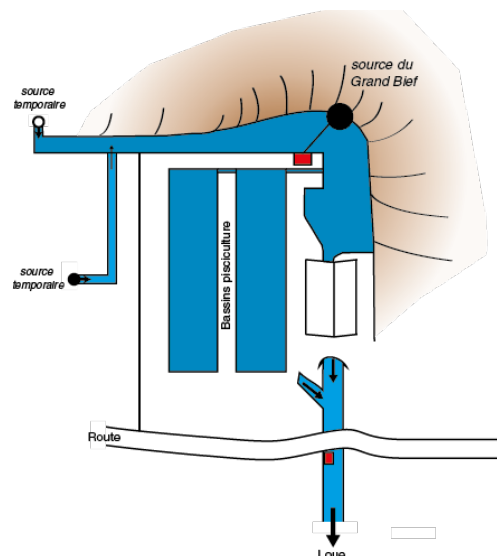


FIGURE II.19 – Schéma de la station de mesure à la source du Grand Bief

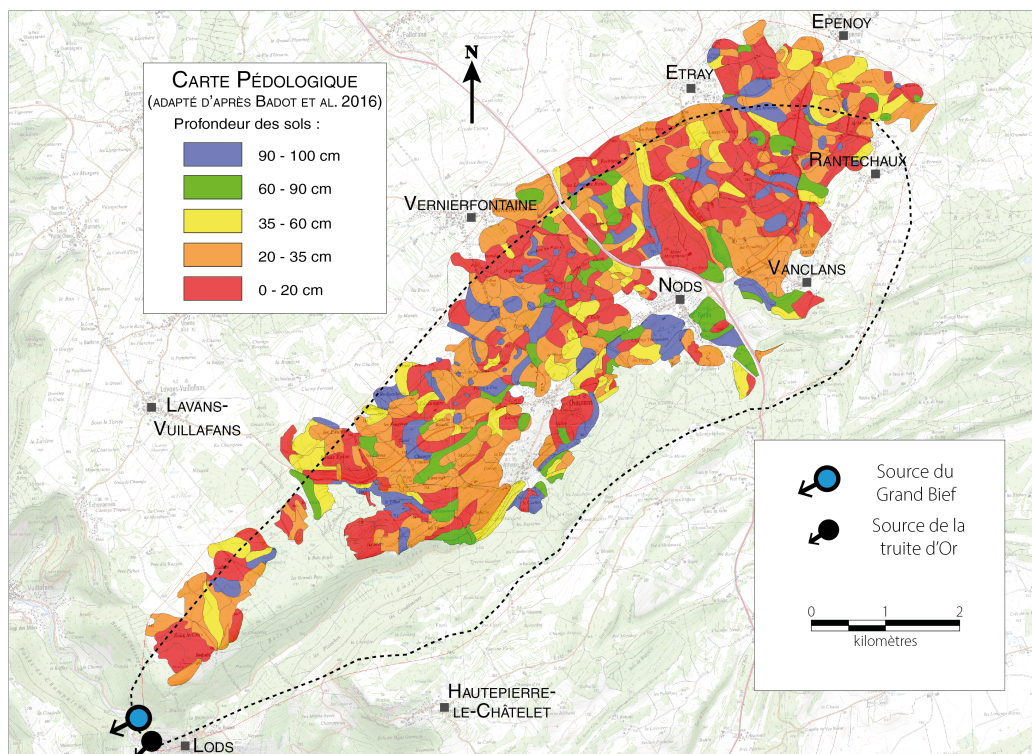


FIGURE II.20 – Carte décrivant la profondeur des sols sur les zones agricoles du bassin alimentant les sources du Grand Bief et de la truite d'Or (adaptée d'après Badot et al. (2016))



## 2.4. Source du Doubs

La source du Doubs apparaît au niveau du synclinal de Mouthe dans les calcaires du Tithonien dans le Jurassique supérieur. Son bassin d'alimentation est localisé au Sud de ce synclinal dans le Massif du Risoux. Ce massif correspond à un large anticlinal orienté nord-est / sud-ouest, délimité au sud par le synclinal de la vallée de Joux et au nord par le synclinal de Mouthe. Il présente une structure complexe révélée par un forage profond réalisé en 1960 à proximité de Chapelle des Bois (Bichet and Campy, 2008), ainsi que l'interprétation de profils sismiques (Sommaruga, 1997) démontrant l'importance des chevauchements dans la Haute-Chaine et impliquant notamment le doublement de certaines séries sédimentaires du Mésozoïque en profondeur (Bitterli, 1972).

La source du Doubs draine les eaux souterraines présentes dans les calcaires du Jurassique supérieur et contraintes en profondeur par l'épaisse couche aquiclude des marnes argoviennes et oxfordiennes. Son bassin d'alimentation est estimé à 44 km<sup>2</sup> par Jeanblanc and G. (1971), entre 41 et 57 km<sup>2</sup> par le cabinet cabinet Reilé (2006) et à 51 km<sup>2</sup> par un modèle de bilan pluie-débit (Gouy, 2015).

La crête de l'anticlinal du Mont-Risoux délimite la frontière sud du bassin. Au nord, il est délimité par la couche au faciès marneux du Purbeckien, caractérisant la base du Crétacé. Les limites est et ouest sont plus difficiles à définir et sont déterminées sur la base des structures géologiques, de quelques données d'essais de traçage et en cohérence avec la surface du bassin estimée. Le massif du Risoux est décrit par Jeanblanc and G. (1971) comme très karstifié avec de nombreux gouffres et cavités sèches qui faciliteraient le passage des eaux de pluies en profondeur.

La source du Doubs draine la zone saturée via un conduit karstique très profond. L'exploration d'un spéléoplonneur anglais dénommé J. Volanthen en 2007 indiquerait un développement du conduit depuis la source d'au moins 450 m (GIPEK, 2012). En période de hautes eaux, deux sources temporaires du Cul du Bief localisées le long d'une faille constituent le trop plein de la source du Doubs. Ce phénomène a pu être identifié par traçage artificiel, réalisé par l'Université de Besançon (Jeanblanc and G., 1971) dans la zone amont du bassin et indique une restitution du traceur à la fois à la source du Doubs et à celles du Cul du Bief. Jeanblanc and G. (1971) identifie à partir de l'analyse des débits classés que la mise en charge du Cul du Bief a lieu quand la source du Doubs présente des débits supérieurs à 2.5 m<sup>3</sup>.s<sup>-1</sup>.

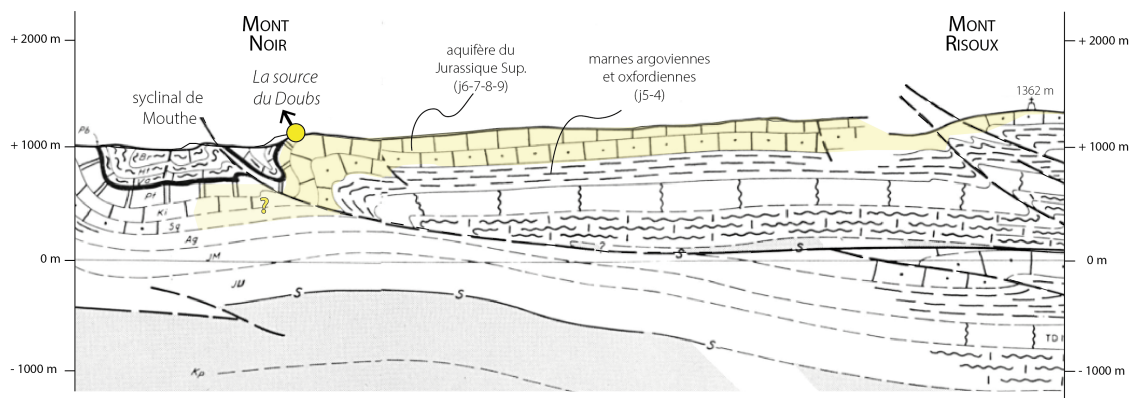


FIGURE II.21 – Coupe adaptée d'après Bitterli (1972)

### 3. Méthodes d'investigation hydrogéologique

Cette section a pour but de présenter les différentes mesures et analyses réalisées sur les stations décrites précédemment, avec d'une part les analyses hydrochimiques suivant le type de prélèvement et d'autre part la description des suivis physico-chimiques avec les méthodes de calibrations et de corrections des données ainsi que l'estimation des erreurs réalisées. Enfin, les données météorologiques et pédologiques utilisées dans ce projet de thèse sont brièvement décrites.

#### 3.1. Suivi hydrochimique

##### 3.1.1. Description des prélèvements

Différents types de prélèvements sont réalisés à des fréquences distinctes sur les stations de mesures suivies (tableau II.2) :

TABLE II.2 – Récapitulatif du type de prélèvements réalisé sur chaque site

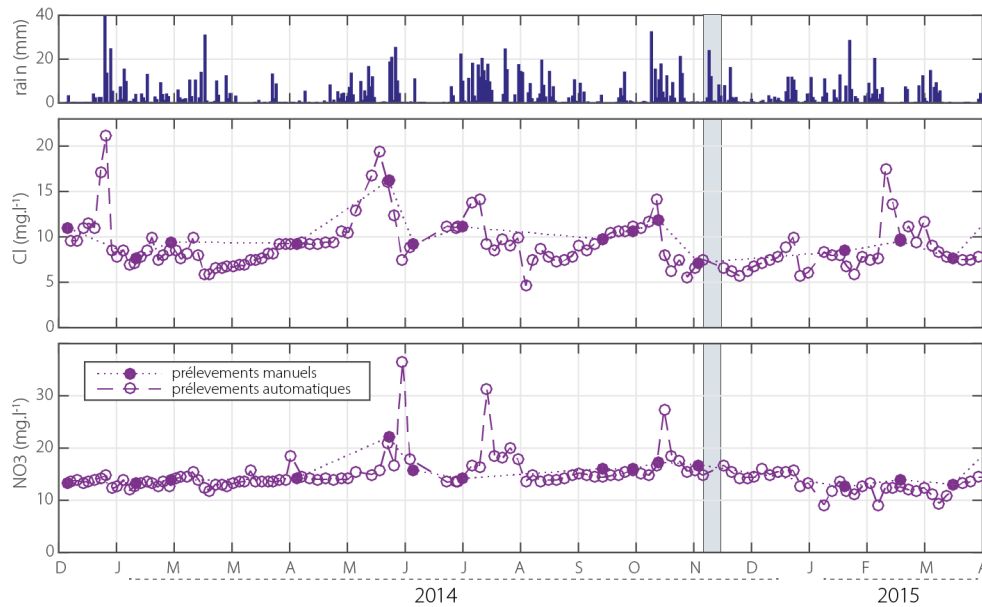
SITE D'ÉTUDE	Fourbanne			Epenoy	Lods	Mouthe
	perte de la Verne	rivière souterraine de Fontenotte	source de Fourbanne	source du Dahon	source du Grand Bief	source du Doubs
PRÉLÈVEMENTS MANUELS	x	x	x	x	x	x
PRÉLÈVEMENTS AUTOMATIQUES	-	-	x	-	x	-
PRÉLÈVEMENTS DE SUIVI DE CRUE	-	x	x	x	x	-

D'une part, des **prélèvements manuels** sont réalisés à chaque passage sur site afin d'analyser la composition en éléments majeurs, traces et carbone organique dissous (COD) des différentes stations de mesures. D'autre part, dans le but de suivre l'évolution des éléments majeurs plus en détails tout au long de l'année, un système de suivi est réalisé à l'aide de préleveurs automatiques installés en permanence à la source de Fourbanne et du Grand Bief. Ces **prélèvements automatiques** sont réalisés tout les 4 jours depuis décembre 2013. En raison du délai de stockage important de ces prélèvements sur le terrain avant l'analyse pouvant aller jusqu'à deux mois, seuls les éléments majeurs Mg, NO<sub>3</sub>, Cl, SO<sub>4</sub>, Na, K sont interprétés. Les estimations des erreurs réalisées sont calculées et quantifiées pour chaque élément dans la section suivante.

La figure II.22 illustre ces suivis avec l'évolution des concentrations de Cl et NO<sub>3</sub> à la source de Fourbanne. On note que malgré le pas de temps de 4 jours relativement large pour l'analyse des évolutions hydrochimiques en milieu karstique, il est possible d'observer des variations de concentrations importantes au cours de période de hautes eaux que nous ne n'aurions que très rarement analysés par nos seuls prélèvements manuels ponctuels. Cependant, il apparait clairement que pour caractériser l'évolution hydrochimique au cours d'une crue, il est nécessaire d'affiner la fréquence des prélèvements à des pas de temps beaucoup plus fins.

Ainsi **trois suivis de crues** ont été réalisés pour obtenir une résolution détaillée des évolutions hydrochimiques existantes au cours des crues sur certains des systèmes étudiés :

- une crue d'automne rapide et intense suivie aux sources de Fourbanne, du Dahon et du Grand Bief en novembre 2014 ;
- deux crues en période d'étiage suivies à la rivière souterraine de Fontenotte, et aux sources de Fourbanne et du Dahon en juin 2014 et juin 2015.



**FIGURE II.22** – Évolution des chlorures et nitrates entre décembre 2013 et avril 2015 à la source de Fourbanne. Les cercles pleins correspondent aux analyses des prélèvements manuels et les cercles vides correspondent aux analyses des prélèvements automatiques tout les 4 jours. L'encadré gris clair correspond à un suivi de crue réalisé à la source de Fourbanne en novembre 2014.

**TABLE II.3** – Campagne de suivi de crues

		fraction dissoute ( $<0.22\mu\text{m}$ )			fraction particulaire ( $>0.22\mu\text{m}$ )			fraction totale		
		majeurs	ETM	REE	majeurs	ETM	REE	majeurs	ETM	REE
crue 06-2014	Fontenotte	X	X	-	-	-	-	-	-	-
	Fourbanne	X	X	-	-	-	-	-	-	-
	Dahon	X	X	-	-	-	-	-	-	-
	Grand Bief	-	-	-	-	-	-	-	-	-
crue 11-2014	Fontenotte	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	Fourbanne	X	X	X	-	-	-	-	-	-
	Dahon	X	X	X	X	X	X	-	-	-
	Grand Bief	X	X	X	-	-	-	-	-	-
crue 06-2015	Fontenotte	X	X	X	-	-	-	X	X	X
	Fourbanne	X	X	X	-	-	-	X	X	X
	Dahon	X	X	X	-	-	-	X	X	X
	Grand Bief	-	-	-	-	-	-	-	-	-

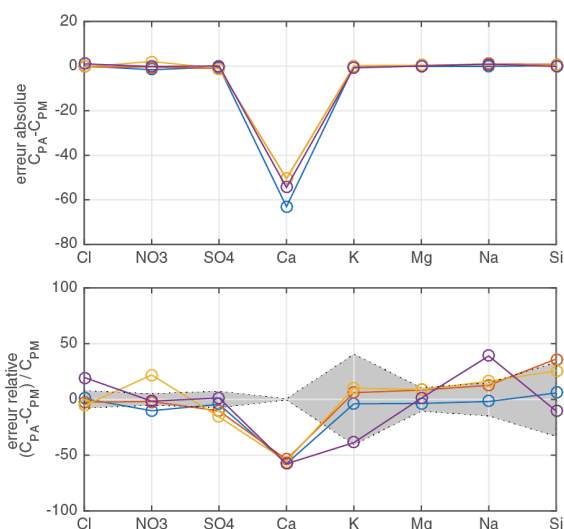
Le pas de temps de prélèvement initial choisi est de deux heures puis a été adapté progressivement au fur et à mesure des analyses incluant les éléments majeurs, certains éléments traces métalliques (incluant parfois les terres rares) et le carbone organique dissous (COD).

Afin de caractériser à la fois la fraction dissoute  $<0.22\mu\text{m}$  et la fraction particulaire, deux protocoles différents ont été mis en place pour l'analyse des particules en suspension. Des analyses sont réalisées après attaque acide  $\text{HNO}_3 + \text{HF}$  sur filtres pour les échantillons de la crue de novembre 2014 et sur les échantillons non filtrés pour la crue de juin 2015. L'ensemble des analyses est résumé dans le tableau II.3.

### 3.1.2. Plateforme analytique

L'ensemble des analyses ont été réalisées au laboratoire de Chrono-Environnement à l'Université de Bourgogne Franche-Comté. Les concentrations de  $\text{HCO}_3$  sont mesurées par titrage avec l'acide  $\text{H}_2\text{SO}_4$  (N/50) dans les 48h suivant le prélèvement avec une précision de  $\pm 10 \text{ g.l}^{-1}$ . Les anions  $\text{SO}_4$ ,  $\text{NO}_3$ ,  $\text{Cl}$ ,  $\text{PO}_4$ ,  $\text{Br}$  et  $\text{F}$  sont analysés par chromatographie à phase liquide haute performance (Dionex DX 100) avec une précision de  $\pm 0.5 \text{ mg.L}^{-1}$ . Les cations et éléments traces ont été analysés respectivement par ICP-AES (Thermo iCap 6500) et ICP-MS (Thermo Xseries 2), et enfin le carbone organique dissous (COD) par combustion catalytique (Vario TOC cube) avec une précision de  $\pm 0.5 \text{ mg.L}^{-1}$ . Les analyses des prélèvements manuels et de suivis de crues présentés dans cette étude sont contrôlés et validés seulement quand les balances ioniques sont inférieures ou égales à  $\pm 5\%$ . De ce fait, 5% des prélèvements manuels et de suivis de crues sont exclus pour l'interprétation. Le tableau II.4 résume le nombre de prélèvements retenus et interprétés pour les différentes stations de mesures.

Concernant les suivis réguliers (tous les 4 jours) par prélèvements automatiques, le contrôle de la qualité des analyses est plus délicat. La relève des préleveurs peut se faire jusqu'à 2 mois après leur mis en fonction, ce qui empêche l'analyse de  $\text{HCO}_3$  et l'identification d'erreurs analytiques à travers le calcul de la balance ionique. Dans le but de valider l'analyse des éléments majeurs sur ces prélèvements, le premier flacon du préleveur automatique est comparé avec un prélèvement manuel filtré et analysé directement après l'échantillonnage. Trois comparaisons sont réalisées et donne la possibilité d'estimer les erreurs moyennes par élément (figure II.23). L'erreur réalisée pour Ca est extrêmement importante en raison de phénomène de précipitation de calcite dans le flacon. Les autres éléments montrent des erreurs relativement acceptables mais nécessiteront cependant une vigilance supplémentaire lors de l'interprétation de ces concentrations.



**FIGURE II.23** – Quantification des erreurs absolue et relatives réalisées sur les analyses hydrochimiques des prélèvements automatiques. L'aire grisée correspond à une erreur de relative de  $0.5 \text{ mg.L}^{-1}$ .

**TABLE II.4** – Récapitulatif du nombre d'analyses après validation des données par type de prélèvements

	prélèvements manuels	prélèvements automatiques	suivi de crue juin 2014	suivi de crue novembre 2014	suivi de crue juin 2015
perte de la Noye	14	-	-	-	-
perte de la Verne	14	-	-	-	-
ZNS Fontenotte	5	-	37	-	49
source de Fourbanne	21	173	41	69	57
source du Dahon	11	-	24	68	49
source du Grand Bief	18	214	-	70	-
source du Doubs	11	-	-	-	-

## 3.2. Suivi physico-chimique

### 3.2.1. Dispositif de mesures

Un dispositif important a été mis en place à partir du décembre 2013 sur les différentes stations afin de suivre l'évolution des paramètres physico-chimiques comme résumé dans le tableau II.5. Les sources de Fourbanne et du Grand Bief sont équipées de sondes de mesure des hauteurs d'eau (OTT) au niveau des écoulements en contrebas des sources, de sondes multiparamètres (hydrolab-DS5X) mesurant la conductivité électrique (EC), la turbidité, la température, le pH et l'oxygène dissous (DO) ainsi que de fluorimètres de terrain (Schneegg and Dörfliger, 1997). Les stations de Fontenotte, les sources du Dahon et du Doubs sont équipés de fluorimètres de terrain et de sondes CTD (orpheus-CTD) pour la mesure des hauteurs d'eau, de la conductivité et des températures. Enfin plus tardivement, la perte de la Verne a été équipée avec une sonde CTD (orpheus-CTD) à environ 50 m en amont de la perte à partir de janvier 2015.

La maintenance de ces dispositifs est réalisée tous les 1 à 2 mois, afin de contrôler et nettoyer les appareils ainsi que d'étalonner les différents paramètres de mesures, en particulier sur la sonde multiparamètre (hydrolab-DS5X) qui a montré de nombreux problèmes de dérives récurrents au cours de ce projet. Seule la station de mesure équipant la rivière souterraine de Fontenotte, en raison d'un accès limité, a été étalonné moins régulièrement avec une fréquence globale de 6 mois. Elle ne présente cependant que peu de dérives et de pannes. De plus, la récolte des données pouvait néanmoins se faire plus régulièrement car le dispositif est installé à l'entrée du puits artificiel grâce à un câble de 150 m tiré jusque là.

Enfin, chaque passage à une station de mesure fait l'objet d'une mesure manuelle de conductivité, pH et température mesurés à partir de sondes étalonnées préalablement en laboratoire. Ces mesures permettent de contrôler et de corriger d'éventuelles dérives des sondes automatiques.

**TABLE II.5** – Récapitulatif de l'ensemble des mesures physico-chimiques en continu sur les différents sites d'étude (avec pour la turbidité (a) mesurée avec un fluorimètre et (b) mesurée avec une sonde multi-paramètre DS5X)

SITE D'ÉTUDE	Fourbanne			Epenoy	Lods	Mouthe
	perte de la Verne	rivière souterraine de Fontenotte	source de Fourbanne	source du Dahon	source du Grand Bief	source du Doubs
DATE D'INSTALLATION	21/01/2015	02/12/2013	02/10/2013	27/11/2013	01/10/2013	01/01/2013
HAUTEUR D'EAU	X	X	X	X	X	X
CONDUCTIVITÉ ÉLECTRIQUE	X	X	X	X	X	X
TEMPÉRATURE	X	X	X	X	X	X
FLUORESCENCE NATURELLE	-	X	X	X	X	-
TURBIDITÉ	-	X(a)	X(a,b)	X(a)	X(a,b)	-
pH	-	-	X	-	X	-
OXYGÈNE DISSOUS	-	-	X	-	X	-



### 3.2.2. Calibrations des mesures en continu

L'ensemble de ce dispositif de suivi physico-chimique est donc complété par des prélèvements ponctuels ou mesures manuelles dans le but de :

- convertir les hauteurs d'eau en débits et ainsi de caractériser les flux hydriques observés aux différentes stations,
- mettre en relation des mesures de fluorescence naturelle et les teneurs en carbone organique dissous (COD),
- corriger les dérives de certaines mesures physico-chimiques.

### Débits et campagnes de jaugeage

Les hauteurs d'eau mesurées sur nos différentes stations de mesures sont complétées par des jaugeages sous différentes conditions hydrologiques pour l'ensemble des stations de mesure sauf à la source de Mouthe où le débit est déjà suivi par la DREAL (Direction Régionale de l'Environnement, de l'Aménagement et du Logement) depuis 1979.

Les hauteurs d'eau mesurées à une station sont donc converties en débits à partir d'une courbe de tarage définie par la relation  $Q = f(H)$ , où  $Q$  est le débit et  $H$ , la hauteur d'eau. Pour déterminer les courbes de tarage de chacune de ces stations, des mesures ponctuelles de débits sont donc réalisées sous différentes conditions hydrologiques afin de pouvoir exprimer l'ensemble des variations des hauteurs d'eau. Ces mesures ont été essentiellement réalisées par la méthode du jaugeage au sel, correspondant à une injection instantanée d'une masse de sel connue et préalablement dissoute. Cette méthode est simple à mettre en œuvre mais s'applique à condition de s'assurer du bon mélange du traceur injecté. Ces jaugeages par injection de sel sont ponctuellement complétés avec des mesures par méthode de courantométrie qui intègrent des mesures du champs de vitesse à travers la section du cours d'eau en profondeur et en transversal.

Plus le nombre de jaugeages est important plus la courbe de tarage sera précise. Il est également nécessaire de couvrir une large gamme de mesures des hauteurs d'eau, en étiage et en pic de crue, en passant par plusieurs valeurs intermédiaires. La figure II.24 présente l'ensemble des courbes de tarages des stations de mesures. Afin de s'assurer de la représentativité de nos courbes de tarages, les fréquences cumulées des hauteurs d'eau mesurées sont ajoutées en complément et montrent ainsi que nos mesures ponctuelles de débits ont été réalisées pour l'ensemble des stations sur une large gamme de hauteur d'eau. On note cependant un nombre parfois faible de mesures, notamment en période de crue. Afin de caler les courbes de tarage le plus précisément possible aux vues des mesures et des sections quelque fois irrégulières des stations, chaque courbe de tarage est divisée en deux fonctions caractérisant les basses eaux et hautes eaux.

Les stations de mesures sur le bassin de Fourbanne présentent quelques défauts à prendre en compte :

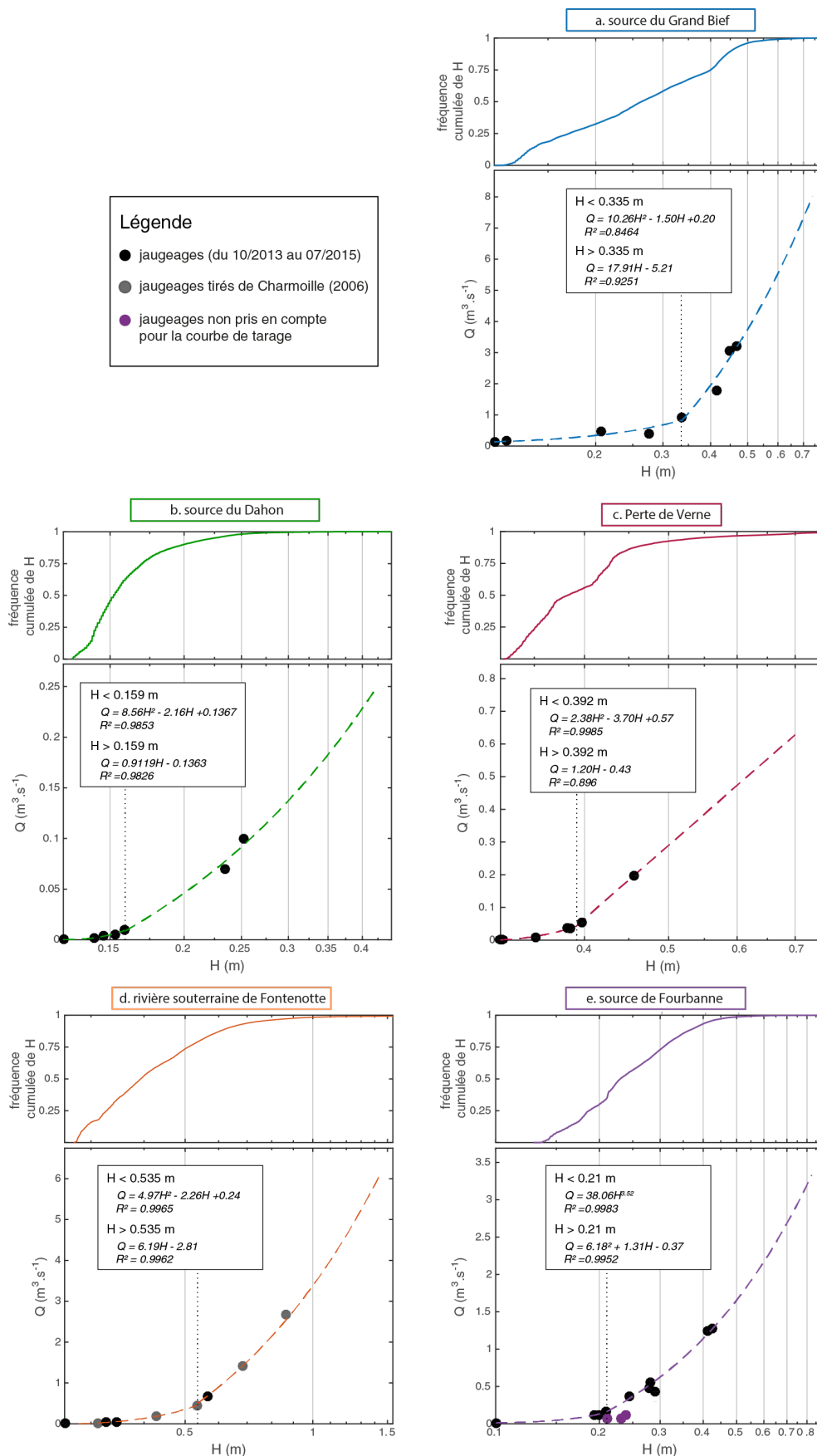
- A la station de Verne, des phénomènes de débordements peuvent avoir lieu ainsi que des phénomènes d'accumulation de sédiments et de débris, ce a nécessité un contrôle et un nettoyage régulier.
- La station de la rivière souterraine de Fontenotte n'étant que difficilement accessible, nos mesures de jaugeages sont complétées par les jaugeages décrits dans Charmoille (2005) réalisés par l'ASDC (Association Spéléologique du Doubs Central) qui avait accédé au réseau d'En Versennes en condition de hautes eaux. La mesure de hauteur d'eau était alors située au niveau de la même section suivie dans cette thèse. Dans le but de pouvoir interpréter ces différents jaugeages sur la même courbe de tarage, le calage des hauteurs d'eau a été réalisé en comparant des valeurs de jaugeages récentes et celles tirées de Charmoille (2005).

- Au niveau de la source de Fourbanne, plusieurs contrôles supplémentaires ont été réalisés, afin de supprimer ou corriger d'éventuelles dérives induites par la localisation de la station de mesure. En effet, la station de mesure de hauteur d'eau est localisée dans le ruisseau à la sortie de la vasque alimentée par la source de Fourbanne. En raison, de la présence d'une vanne liée à un ancien moulin (ouverture/fermeture), des anomalies ponctuelles de hauteurs d'eau à la station sont mesurées. Ces variations hautes fréquences (de l'ordre de 1 à 2 heures) sont alors supprimées puis interpolées. De plus, la station de mesure dans le ruisseau à la sortie de la vasque de la source de Fourbanne se situe à une centaine de mètres de la confluence avec le Doubs et peut-être influencé par un contrôle aval au cours de fortes crues du Doubs. Ces crues peuvent donc parasiter ponctuellement les mesures de hauteurs d'eau de Fourbanne. Un dispositif a donc été mis en place afin de supprimer les mesures aux cours des fortes crues du Doubs. Ceci à partir d'un seuil identifié à partir des mesures de hauteurs d'eau du Doubs à Beaumerousse mesurées par la Dreal à moins de 3 km de Fourbanne. Enfin, en raison du développement algal ponctuel mais important au printemps dans le ruisseau en période d'étiage, les mesures en basses eaux peuvent induire une surestimation des débits. Cette observation est délicate à corriger mais il est cependant intéressant de prendre note de ces légères anomalies.

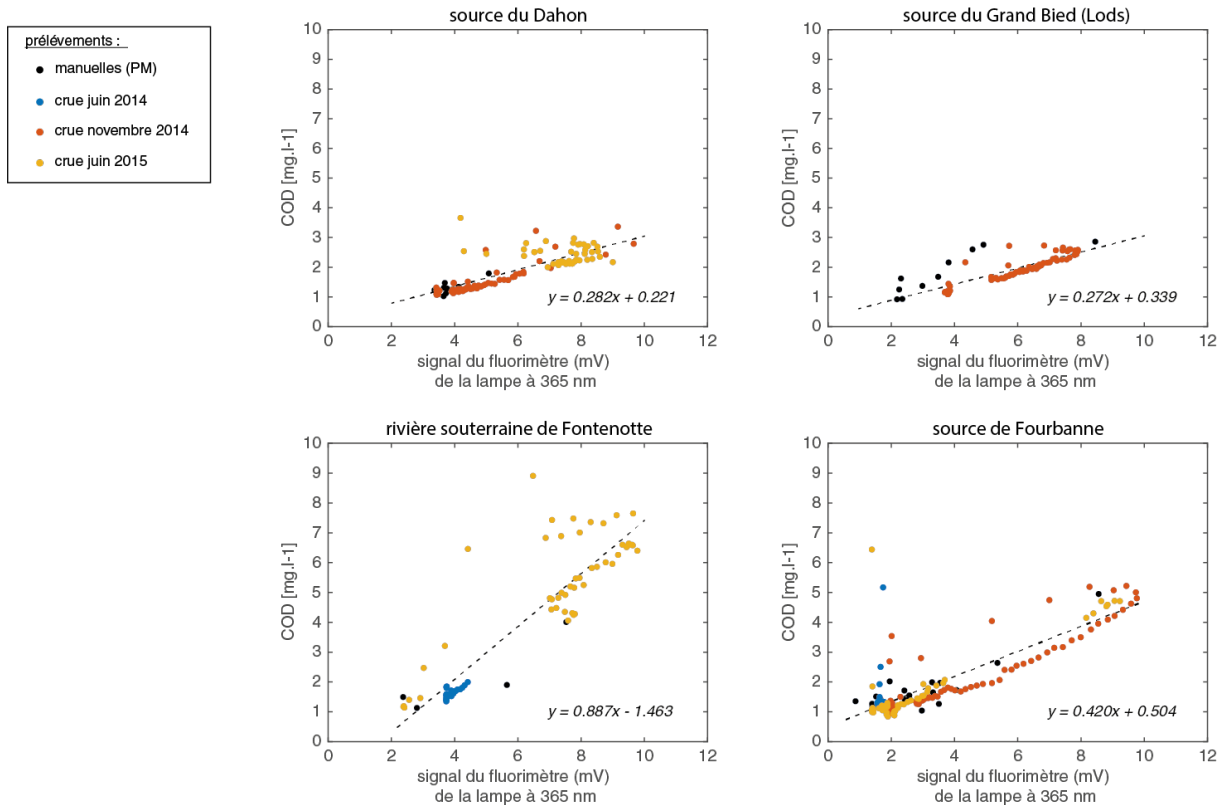
## COD et fluorescence naturelle

La relation entre la fluorescence naturelle de l'eau mesurée par les fluorimètres de terrain (GGUN, albillia SARL Schnegg and Dörfliger, 1997) et la matière organique est largement utilisée pour l'étude des aquifères karstiques (Savoy, 2007; Pronk et al., 2006; Batiot, 2002; Mudarra and Andreo, 2011; Charlier et al., 2012). Le fluorimètre de terrain, initialement développé pour le suivi de traceurs artificiels, mesure la fluorescence d'un composant à l'aide de longueurs d'onde d'excitation spécifiques (Schnegg 2003). Batiot (2002) observe que l'intensité maximale de fluorescence de la matière organique mesurée sur plusieurs sources karstiques s'observe pour une valeur d'excitation-émission de 346/439nm. Ainsi l'utilisation sur le fluorimètre de la lampe UV d'excitation de 365nm permet de mettre en relation le signal de la fluorescence de la matière organique avec le COD. Ces mesures en continu doivent cependant être utilisées avec prudence compte tenu des différents facteurs environnementaux influençant la fluorescence de la matière organique tels que la température ou le pH (Hartland et al., 2010) ainsi que les variations saisonnières modifiant la qualité et la quantité de matière organique (Tissier et al., 2013) et indiquent que la relation entre fluorescence naturelle et COD n'est pas toujours évidente (Quiers et al., 2014).

Dans ce projet, la fluorescence naturelle mesurée à partir de la lampe d'excitation de 365 nm est mise en relation avec l'analyse en laboratoire du COD à partir de prélèvements manuels ainsi qu'au cours des différents suivis de crues. On remarque une relation linéaire entre fluorescence naturelle et COD pour les quatre fluorimètres (figure II.25). Cependant, on observe que la fluorescence ne permet pas d'expliquer l'ensemble des variations. Ainsi quand les analyses en laboratoire mesurent des concentrations élevées au cours de la crue de juin 2014 à Fourbanne, la fluorescence naturelle ne montre aucune variations. D'autre part, des hystérésis liées à la montée et à la récession de la crue sont observés indiquant la non-linéarité de la relation. Le suivi en continu du COD est utilisé dans ce projet de thèse comme une mesure semi-quantitative notée COD\* et est à interpréter avec précaution.



**FIGURE II.24** – Courbes de tarage et fréquence cumulée des hauteurs d'eau des différentes stations de mesures



**FIGURE II.25** – Relations entre COD analysé en laboratoire et le signal du fluorimètre (lampe 365 nm) sur les stations équipées de cet appareil

### Conductivité électrique

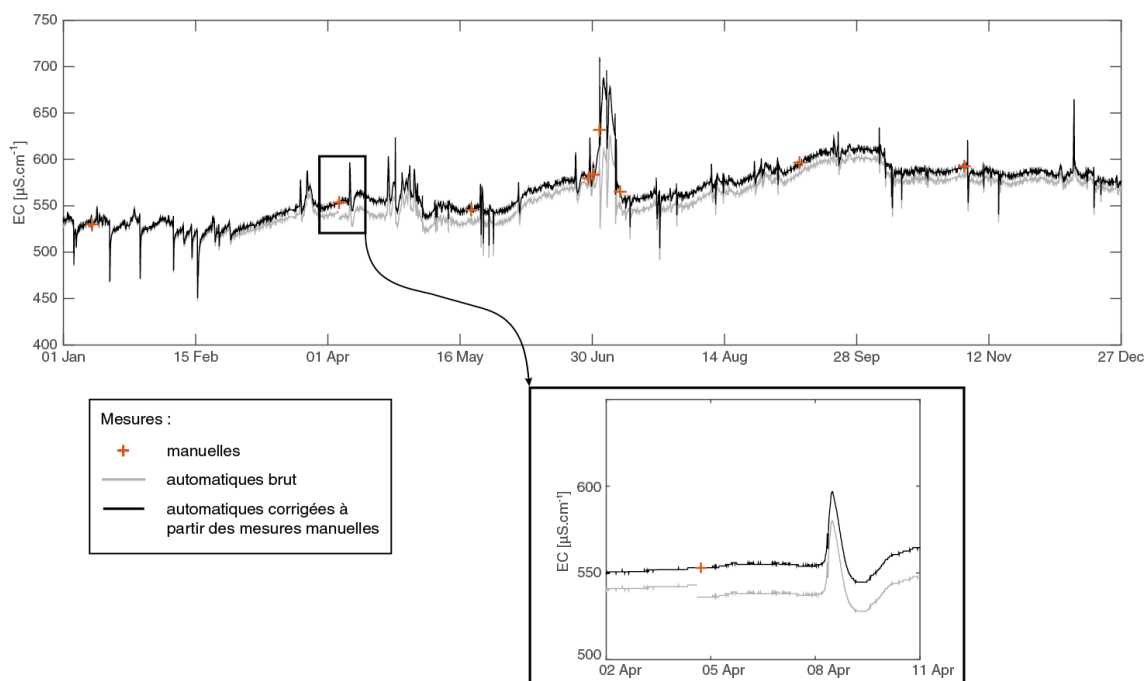
Les mesures de conductivité électrique (EC) des sondes de terrain ont été régulièrement contrôlées par des mesures manuelles à chaque passage à la station de mesure à partir de sondes préalablement calibrées en laboratoire. On estime l'erreur moyenne entre 2 et 5 %. Les stations de Fontenotte et Fourbanne présentent les erreurs les plus fortes (avec en moyenne  $30 \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$ ). Ceci s'explique par le fait que ces stations présentent des gammes d'amplitudes les plus élevées mais aussi un fort encrassement des capteurs sur site. La figure II.26 illustre les dérives observées pour les sondes de terrain et les mesures manuelles utilisées pour la correction de cette dérive à partir d'une interpolation linéaire entre chaque point de mesures manuelles.

### Turbidité

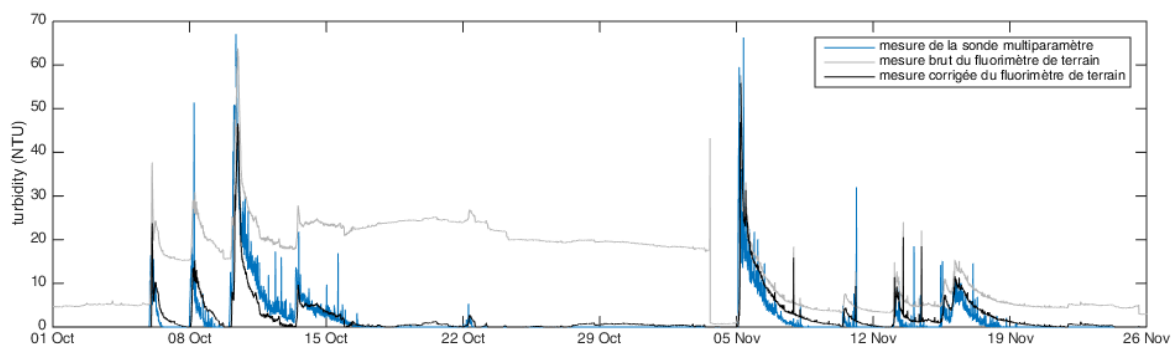
Dans cette étude, il a été possible de suivre la mesure de turbidité à partir de deux appareils de terrain différents sur une même station de mesure ; le fluorimètre de terrain (Schneeg and Dörfliger, 1997) et la sonde multiparamètres DS5X. C'est le cas pour la source de Fourbanne et celle du Grand Bief.

Le fluorimètre de terrain présente cependant le défaut d'accumuler de fines particules qui progressivement créent une dérive de la mesure (en particulier pour la lampe UV utilisée pour la mesure de la turbidité). La figure II.27 illustre cette évolution et la compare à la sonde multiparamètre munie d'un système de nettoyage avant chaque mesure.

On observe un décalage progressif lié à l'accumulation progressive de fines particules. A chaque passage sur site un nettoyage est réalisé mais ce n'est pas suffisant pour éviter ces dérives du signal de la lampe de turbidité. Une correction du signal est donc réalisée de manière assez simple en considérant qu'un signal stable indiqué par cette même lampe indique une turbidité nulle. Une interpolation linéaire est alors réalisée pour abaisser le signal à zéro. C'est une méthode critiquable mais qui présente l'avantage de pouvoir être comparée sur certaines stations de mesures avec celles des sondes multiparamètres munies d'un système de nettoyage automatique.

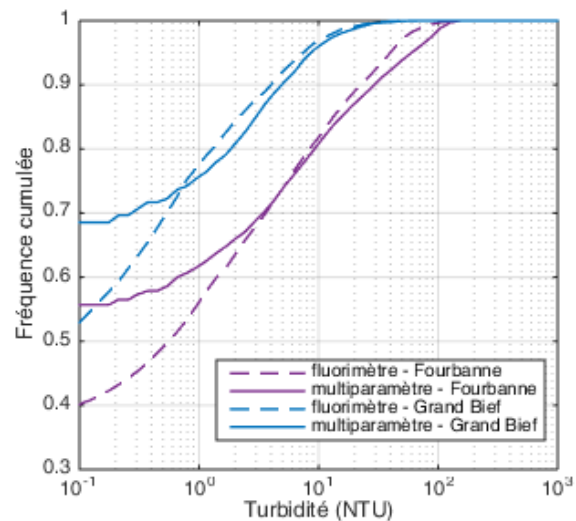


**FIGURE II.26** – Illustration du traitement des données acquises sur les sondes automatiques pour la mesure de conductivité électrique (EC) sur la station d'Epenoy au cours de l'année 2014



**FIGURE II.27** – Illustration des données de turbidité à la source du Grand Bief à Lods au cours de l'année 2014 avec les mesures du fluorimètre de terrain brutes (en gris) et corrigées (en noir) et les mesures de la sonde multiparamètre (en bleu) munie d'un système de nettoyage automatique.

La figure II.28 présente les fréquences de distribution des mesures simultanées de turbidité entre la sonde multiparamètre munie d'un balaie de nettoyage automatique et le fluorimètre de terrain après correction des saturations des lampes. Les mesures de turbidité pour les deux sondes montrent de fortes différences pour les faibles valeurs inférieures à 1-2 NTU. Le fluorimètre semble donc peu approprié pour identifier les faibles valeurs de turbidité, ou du moins la calibration linéaire telle que nous l'avons faite ne permet pas de corriger correctement ces faibles valeurs. Les valeurs de turbidité supérieures à 1-2 NTU montrent en revanche une allure similaire. A partir de ces observations, les mesures de la turbidité réalisées à partir de fluorimètres de terrain réalisées sur nos stations de mesures seront interprétées (après correction des dérives) pour des valeurs supérieures à 2 NTU.



**FIGURE II.28** – Fréquence de distribution et comparaison des mesures simultanées des sondes multiparamètres et des fluorimètres de terrain pour les sources de Fourbanne et du Grand Bief.

## pH et oxygène dissous

L'ensemble de mesures de pH et d'oxygène dissous mesurées par les sondes multiparamètres aux sources de Fourbanne et de Grand Bief présentent des dérives extrêmement importantes malgré les calibrations régulières. Ces dérives sont trop importantes pour être corrigées à partir de mesures manuelles et ne rendent ainsi pas possible l'interprétation de ces mesures.

### 3.3. Traçages artificiels

Une série de traçages artificiels sous différentes conditions hydrologiques a été réalisée sur le système karstique de Fourbanne dans le but de caractériser les processus de transport dans le réseau karstique principal du système de Fourbanne (réseau d'En-Versennes). Le traceur a été injecté à la perte de la Verne, puis suivi avec des fluorimètres de terrain à la station de mesure de Fontenotte (zone non-saturée du conduit) et à la source de Fourbanne (analyses complétées par des prélèvements automatiques). Ces traçages sont présentés dans le chapitre VII.

### 3.4. Données complémentaires

#### 3.4.1. Données météorologiques

Les données météorologiques utilisées dans le cadre de cette thèse proviennent essentiellement des stations Météo France localisées à proximité des systèmes étudiés. Les données de la station Météo France d'Epenoy sont utilisées pour caractériser les systèmes du Dahon et du Grand Bief, localisées respectivement à 0,7 et 13 km. Les données de la station de la Boissau-de-Rochejean sont utilisées pour caractériser le système de la source du Doubs, situées à 9 km sur l'anticlinal du massif du Risoux à 1220 m d'altitude.

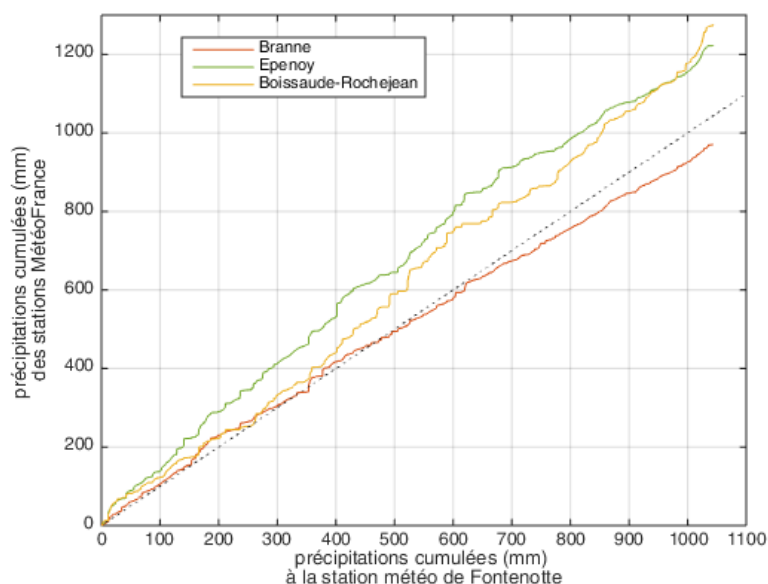


Sur le système de Fourbanne, les données de précipitations proviennent de la station Météo France de Branne localisées à 270 m d'altitude dans la vallée du Doubs distante de 9 km au S-E du village de Verne et de 14 km à l'est du village de Fourbanne. Cependant étant donné la distance et les différences d'altitude entre la station de Branne et la zone de recharge de la source, une station météorologique supplémentaire (Campbell BW200) a été installée au niveau du village de Fontenotte à 380 m d'altitude, dans le but de mesurer les précipitations directement sur le bassin d'alimentation de la source. La figure II.30 compare le cumul des précipitations de la station de Fontenotte sur la période d'avril 2014 à avril 2015 avec les cumuls de précipitations des stations Météo France. On remarque que les stations de Branne et de Fontenotte montrent un cumul de précipitation relativement proche (contrairement aux stations d'Epenoy et la Boissau-de-Rochejean situées plus en altitude). Il semblerait que Fontenotte cumule légèrement plus de

précipitations (environ 50 mm de différence à la fin de la chronique étudiée d'une durée de 1 an). La station de Branne semble relativement pertinente pour l'analyse de chroniques de précipitations sur le système karstique de Fourbanne. Elle sera donc utilisée pour compléter le suivi de la station de Fontenotte, lorsque les données de celle-ci ne sont pas disponibles.



**FIGURE II.29** – Installation de la station météorologique au niveau du village de Fontenotte



**FIGURE II.30** – Précipitations cumulées aux stations MétéoFrance de Branne, Epenoy et la Boissau-de-Rochejean pour la période du 01/04/2014 au 01/04/2015 en fonction des celles mesurées à la station de Fontenotte

Afin de caractériser le signal hydrochimique des précipitations, les mesures d'Atteia (1992) réalisées dans le Massif du Jura près de la source de Lionne ont été considérées. Bien que les prélèvements soient effectués à une altitude élevée (1340 m) en comparaison de nos sites d'étude, ces mesures donnent une estimation relative du signal hydrochimique des précipitations sur ces sites.

### 3.4.2. Données lysimétriques

En parallèle de ces différentes approches méthodologiques et dans le but de mieux identifier les contributions des eaux d'infiltration via les sols, certaines données du programme-atelier Loue (Badot et al., 2016) ont été utilisées dans le cadre de ce projet de thèse. Ce programme a notamment mis en place un dispositif lysimétrique (figure II.31) à proximité du village de Chasnans dans le lieu-dit de l'Oserole (figure II.18). Ce dispositif comprend 4 stations lysimétriques dont deux sous prairie permanente de fauche et deux autres sous culture de céréales d'hiver après labour. Dans les deux cas, les stations caractérisent deux types de sols non hydromorphes : (1) superficiels (moins de 25 cm de profondeur) et (2) profonds (entre 50 et 60 cm de profondeur). Chaque station regroupe 3 plaques lysimétriques, représentant donc un total de 12 lysimètres. Les eaux de ces appareils sont prélevées après chaque précipitation significative et de nombreuses analyses hydrochimiques sont réalisées et décrites dans Badot et al. (2016).



**FIGURE II.31** – Plaque lysimétrique en cours d'installation dans un sol très superficiel avec au premier plan le raccord du tuyau de récolte ((Badot et al., 2016) et cliché : Eric Lucot)

Dans le cadre de ce projet de thèse, les analyses en éléments majeurs et éléments traces métalliques ont été utilisées. Les lysimètres ont été implantés après découpage du sol, ce qui induit une destruction de sa structure. Bien que les prélèvements aient réalisés dans l'année qui a suivi l'installation des plaques et donc pendant une période où le sol n'est pas encore complètement restructuré, ces analyses servent d'indicateur pour caractériser le signal hydrochimique en provenance du sol. Ils donnent ainsi des informations sur les eaux d'infiltrations issues de sols calcaires occupés par les prairies de fauches et cultures céréalières et sont donc utilisées comme signal global. De plus, le dispositif lysimétrique est installé sur le plateau d'Ornans sur les calcaires du Jurassique supérieur (Tithonien) dans la zone de recharge des sources du Grand Bief et de la Truite d'Or. Ce sont donc des mesures pertinentes pour l'étude du système karstique alimentant la source du Grand Bief. Elles le sont également pour le système du Dahon qui est lui aussi localisé sur le plateau d'Ornans dans les calcaires du Jurassique supérieur (Kimméridgien) et présente sur son bassin d'alimentation une occupation du sol comparable.

## 4. Outils statistiques

### 4.1. Analyses corrélatoires

Les analyses corrélatoires permettent d'examiner des séries temporelles dans le but de mettre en évidence la dépendance des événements entre eux à différentes échelles de temps.

**L'analyse corrélatoire simple** permet de caractériser la dépendance entre les événements d'une même chronique et ainsi de donner une mesure de l'inertie d'un système. La fonction d'autocorrélation est définie par Jenkins and Watts (1968); Box and Jenkins (1970) :

$$r(k) = \frac{Ck}{C0} \quad (\text{II.1})$$

$$C(k) = \frac{1}{n} \sum_{t=1}^{n-k} (x_t - \bar{x})(x_{t-k} - \bar{x}) \quad (\text{II.2})$$

avec  $r(k)$  est le coefficient d'autocorrélation,  $k$  est le décalage temporel,  $n$  est le nombre d'observation de la chronique et  $x_t$  est la valeur ponctuelle de la variable au temps  $t$ .

Selon Mangin (1971), l'analyse du corrélogramme simple du débit permet d'identifier "l'effet mémoire" d'un système karstique. Ainsi un effet mémoire important est décrit par une décroissance lente de la fonction d'autocorrélation. Cet effet mémoire important se traduit par une forte régulation du débit par le système induisant donc un stockage important dans le réservoir aquifère. Mangin (1971) propose de définir l'effet mémoire pour une valeur de  $r(k) = 0,2$ . La littérature ne semble pas donner de sens physique pour le choix de ce seuil, mais de part sa large utilisation dans l'étude des systèmes karstiques, il a l'avantage de pouvoir comparer les différents systèmes entre eux (Moussu, 2011).

**L'analyse du corrélogramme croisé** met en évidence la dépendance existant entre les événements de deux chroniques. On peut alors estimer l'intensité de la corrélation entre deux chroniques ainsi caractériser leur éventuelle relation de causalité. Ce type d'analyse est largement utilisée en hydrogéologie karstique pour caractériser les relations entre les précipitations et le débit (Mangin, 1984; Marsaud, 1996; Grasso, 1999; Dörfliker et al., 2004; Herman et al., 2009) caractérisant l'entrée et la sortie du système et définir ainsi le caractère impulsionnel existant entre le deux. D'autres paramètres sont également pris en compte, tels que la conductivité électrique (Massei et al., 2006), la turbidité (Bouchaou et al., 2002; Fournier, 2006), la température (Larocque et al., 1998; Fournillon, 2012) ou encore la matière organique (Tissier et al., 2013). Il est alors possible d'identifier des dynamiques de corrélation différentes entre plusieurs paramètres ou plusieurs sites sur de longues chroniques (Mangin, 1984; Larocque et al., 1998; Fournillon, 2012) mais également à l'échelle de la crue (Tissier et al., 2013; Mayaud et al., 2014).

$$r_{xy}(k) = \frac{C_{xy}k}{\sigma_x \sigma_y} \quad (\text{II.3})$$

$$C_{xy}(k) = \frac{1}{n} \sum_{t=1}^{n-k} (x_t - \bar{x})(y_{t-k} - \bar{y}) \quad (\text{II.4})$$

Dans le cas de notre étude, nous nous intéresserons à l'analyse corrélatoire de nos chroniques sur le court terme et à partir de données au pas de temps horaire. La limite inférieure de la fenêtre d'observation nous permet d'interpréter le coefficient de corrélation à partir à 2 heures.

La limite supérieure est définie par la fenêtre d'observation qui se doit d'être inférieure ou égale à  $n/3$  (Mangin, 1984).

Il apparaît dans l'ensemble des chroniques, des lacunes liées à des pannes ou encore à la suppression de certaines dérives dans le jeu de données. Ces lacunes ont un effet non négligeable dans l'analyse des corrélogrammes. Delbart (2013) a réalisé différents tests sur une même chronique de débit afin d'estimer l'effet de ces lacunes sur les analyses des corrélogrammes simples et croisés. Ainsi à partir d'une chronique entière, elle introduit une lacune de taille variable représentant jusqu'à 24% de la chronique et la remplace par interpolation linéaire. Elle démontre que l'impact sur les autocorrélogrammes est plus important que sur les corrélogrammes croisés et définit des valeurs seuils de lacunes sur son site d'étude impactant les fonctions d'autocorrélogramme et de corrélation croisée, de respectivement 3% et 7% de lacunes. Dans ce travail de thèse, étant donné le nombre important de sites et de paramètres, de nombreuses lacunes sont présentes ponctuellement, ce qui ne permet pas d'analyser l'ensemble des chroniques. Il a donc été décidé de réaliser des analyses corrélatrices sur des chroniques complètes plus courtes pour pouvoir comparer les différentes stations sur différents paramètres de mesures.

## 4.2. Analyses des débits classés

La méthode d'analyse des débits classés a pour objectif d'identifier des événements particuliers induisant des modifications durables sur le comportement hydrodynamique d'un système. Ces événements répétitifs se produisent à des valeurs de débit particulières et permettent ainsi l'identification de fuites, de mise en fonctionnement de trop-plein ou encore de débordement au niveau d'une station de jaugeage (Marsaud, 1996). Cette méthode est proposée par Mangin (1971) et consiste à ranger les débits par classe afin de mettre en évidence les modifications induites par ces phénomènes sur l'hydrogramme. Une loi arbitraire (déterministe, empirique ou statistique) est alors choisie pour représenter la courbe obtenue. Dans le cas présent, la loi statistique log-normal est choisie. Les différentes ruptures de pente sont alors identifiées et interprétées à partir de la classification réalisée par Marsaud (1996).

## 4.3. Analyses en composantes principales

Une analyse en composantes principales consiste en une transformation linéaire d'un jeu de données dans un espace multi-dimensionnel. Chaque axe correspond à une composante principale et tente d'expliquer les variances les plus fortes dans le jeu de données analysés. Chaque composante principale devient une nouvelle variable présentant une relation linéaire avec les variables du jeu de données. Il est alors possible de faire ressortir des structures ou dynamiques difficiles à identifier dans un ensemble important et complexe de données (Wold et al., 1987). Les données sont centrées réduites dans le but de donner un poids identique à l'ensemble des variables étant donné qu'elles peuvent présenter des unités et des amplitudes de variation différentes. Dans ce manuscrit, les analyses en composantes principales représentent dans un même graphique les individus et les vecteurs des variables. Bien que variables et individus appartiennent à des espaces vectoriels différents, cette représentation donne la possibilité de visualiser des valeurs faibles ou élevées d'individus pour telles ou telles variables.

Ces analyses statistiques sont largement utilisées pour l'étude des aquifères karstiques (Bakalowicz, 1979; Mudry, 1987; Cloutier et al., 2008) et pour comprendre des dynamiques hydrochimiques au cours des crues (Fournier, 2006; Mahler et al., 2008; Li et al., 2016).

#### 4.4. Modèle de mélange EMMA

Un modèle de mélange se base sur l'hypothèse qu'un échantillon d'eau correspond au mélange d'eau d'un ou plusieurs pôles de mélange et suppose un comportement conservatif des éléments chimiques utilisés. C'est une méthode largement utilisée en hydrologie et hydrogéologie pour identifier et estimer des mélanges dans un milieu caractérisé par des eaux d'origines différentes (Carrera et al., 2004).

Une approche commune est de définir des pôles à partir d'échantillons collectés sur site si possible (Maréchal et al., 2011; Roques et al., 2014), mais ils peuvent également être estimés et optimisés, par exemple par modélisation inverse (Carrera et al., 2004; Long and Valder, 2011). Les analyses en composantes principales sont souvent utilisées comme espace de coordonnées pour définir les pôles qui définiront le modèle de mélange du jeu de données modélisé et permet ainsi de réduire le nombre de données à manipuler.

Dans cette thèse, la méthode EMMA est appliquée à partir des résultats d'une analyse en composantes principales. La méthodologie est décrite par Christophersen and Hooper (1992). La méthode de normalisation appliquée est développée par Burns et al. (2001) et plus récemment perfectionnée par Maréchal et al. (2011). Dans le cas de la présence de trois pôles de mélange, l'application d'EMMA est réalisée à partir de trois pôles de mélanges et se base sur les equations de bilan de masses suivantes :

$$1 = f_1 + f_2 + f_3 \quad (\text{II.5})$$

$$U1_p = U1_1f_1 + U1_2f_2 + U1_3f_3 \quad (\text{II.6})$$

$$U2_p = U2_1f_1 + U2_2f_2 + U2_3f_3 \quad (\text{II.7})$$

avec  $f_i$  correspondant à la fraction de chaque pôle de mélange  $i$  défini.  $U1_i$  et  $U2_i$  sont les coordonnées des premières et deuxièmes principales composantes pour chacun des pôles de mélange  $i$ , et  $U1_p$  et  $U2_p$  sont les coordonnées correspondantes des premières et deuxièmes composantes des données modélisées qui correspondent dans notre cas aux suivis de crues (cf. chapitre 2).

Nous nous basons ici sur la méthodologie appliquée par Roques et al. (2014).

PARTIE 1  
Caractérisation hydrogéologique et  
comparaison inter-sites





---

## A l'échelle d'un cycle hydrologique

### Résumé

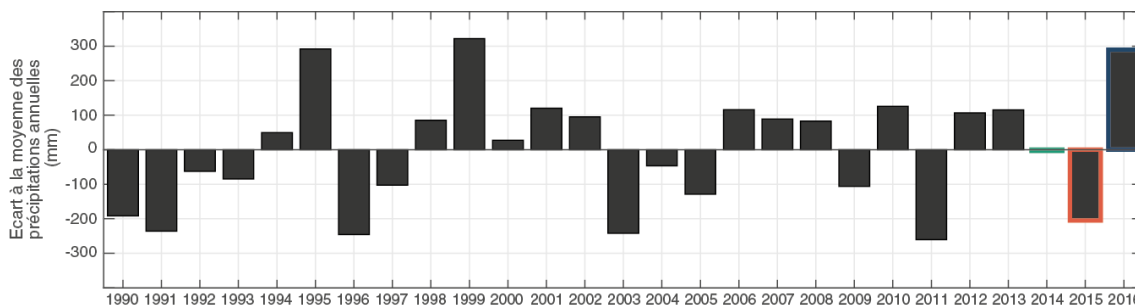
Ce chapitre a pour objectif d'identifier les grandes caractéristiques des différents systèmes étudiés à l'échelle saisonnière et du cycle hydrologique. La variabilité physico-chimique des réponses aux précipitations est évaluée à partir d'analyses corrélatoires. Les mécanismes de recharge à l'échelle saisonnière et les signatures physico-chimiques/hydrochimiques de chacun de ces systèmes sont caractérisés. Une étude comparative sur deux systèmes possédant des mécanismes de recharge distincts : (i) une recharge localisée importante et (ii) par une recharge principalement diffuse ; met en avant la forte variabilité saisonnière de la réponse hydrochimique de ces systèmes.

### Structure

1. Cadre hydrologique et climatique . . . . .	48
2. Comportement hydrodynamique. . . . .	50
2.1. Relations précipitation - débit . . . . .	50
3. Apport de la physico-chimie . . . . .	54
3.1. Distribution des paramètres. . . . .	54
3.2. Corrélogrammes croisés entre précipitation et physico-chimie. . . . .	57
4. Apport des analyses hydrochimiques . . . . .	61
4.1. Signatures hydrochimiques caractéristiques. . . . .	61
5. Discussion . . . . .	75

## 1. Cadre hydrologique et climatique

Les données utilisées dans le cadre de ce projet de thèse se répartissent sur la période novembre 2013 à novembre 2016. Avant d'analyser le comportement hydrogéologique de différents systèmes karstiques du Massif du Jura, l'analyse des données météorologiques sur cette période permet de la replacer en regard des évolutions pluriannuelles.

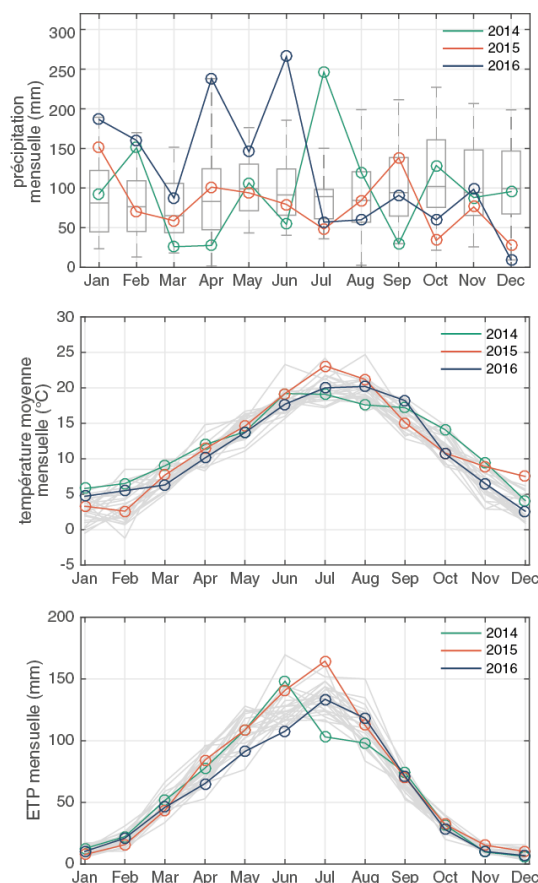


**FIGURE III.1** – Précipitations annuelles entre 1990-2016 à partir des données de Météo France à Besançon

La figure III.1 expose l'ensemble des précipitations annuelles sur la période 1990-2016 pour la station de Météo France à Besançon. On remarque que les années 2014, 2015 et 2016 sont caractérisées des conditions hydrologiques particulièrement contrastées. L'année 2014 cumule un total de 1170 mm correspondant à une année moyenne sur la période 1990-2016, l'année 2015 correspond une année déficitaire avec seulement 960 mm tandis que l'année 2016 est marquée par un fort cumul de précipitation s'élevant à 1460 mm.

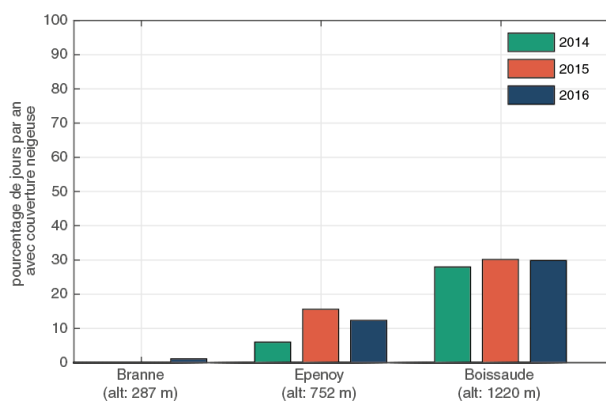
La figure III.2 donne un aperçu de la répartition mensuelle des précipitations, ETP et températures moyennes au cours de ces trois années. On note des précipitations importantes au cours de l'été 2014 et du printemps 2016. A l'inverse, l'année 2015 montre de faibles précipitations tout au long de l'année avec des températures et ETP élevées d'avril à aout 2015. L'été 2015 est d'ailleurs décrit comme le deuxième été le plus chaud répertorié en Suisse en 152 années de mesures (OFEV, 2016).

Le gradient d'altitude est aussi un facteur important à prendre en compte dans la spatialisation des données climatiques comme il a été vu précédemment dans la figure II.4.



**FIGURE III.2** – Données climatiques mensuelles des années 2014, 2015 et 2016 et de la période 1990-2016 (gris) à partir des données de Météo France à Besançon avec (a) les précipitations, (b) l'évapotranspiration potentielle et (c) les températures moyennes.

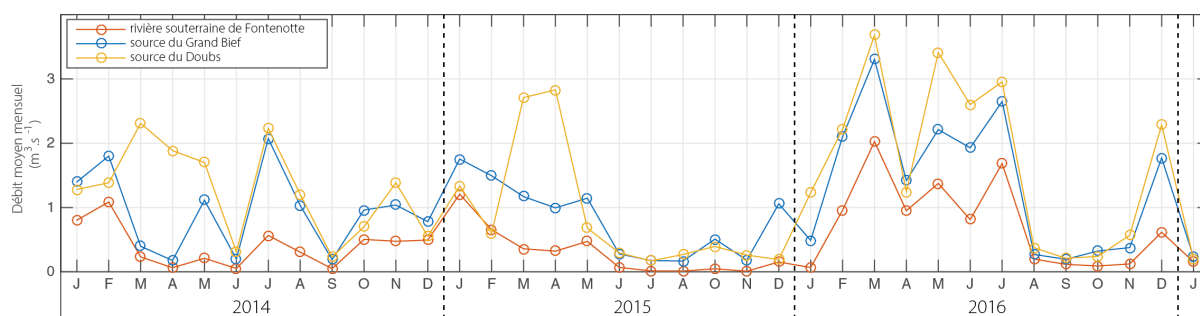
Le cumul de précipitations annuel moyen à Fourbanne se situe entre 1200 à 1300 mm, lorsqu'il est compris entre 1400 et 1500 mm à Epenoy et entre 1600 et 1700 mm à Mouthe. En distinguant les précipitations pluvieuses et neigeuses le long du gradient d'altitude du Massif du Jura, Charlier et al. (2014) identifie un régime des pluies relativement constant sur l'ensemble du massif et où l'excédent mesuré sur la Haute-Chaine est essentiellement induit par des précipitations neigeuses.



**FIGURE III.3** – Pourcentage de jour avec couverture neigeuse pour les années 2014, 2015 et 2016 aux stations Météo France de Branne, Epenoy et Boissau

La figure III.3 expose le pourcentage de jours dans l'année où les différents systèmes étudiés sont recouverts d'un manteau neigeux pour les années 2014, 2015 et 2016. Aucune couverture neigeuse significative n'est observée à la station Météo France de Branne à une altitude de 287 m à côté du site de Fourbanne. La station d'Epenoy à une altitude de 752 m montre un taux d'enneigement entre 6% et 15.5%. Enfin la station de La Boissau-Rochejean qui culmine une altitude de 1220 m indique un taux d'enneigement entre 28% et 30% couvrant essentiellement les mois de janvier, février et mars.

Sur les trois stations présentant une chronique complète de débit entre janvier 2014 et janvier 2017, la figure III.4 montre une dynamique globalement similaire pour les trois stations. On note cependant quelques variations liées à la fonte des neiges pour les périodes de mars à mai 2014 et mars à avril 2015, en particulier à la source du Doubs. Les débits moyens mensuels mesurés montre sur la période de juin à novembre 2015 des débits moyens plutôt faibles, période pendant laquelle les deux principaux suivis de crues ont été réalisés.



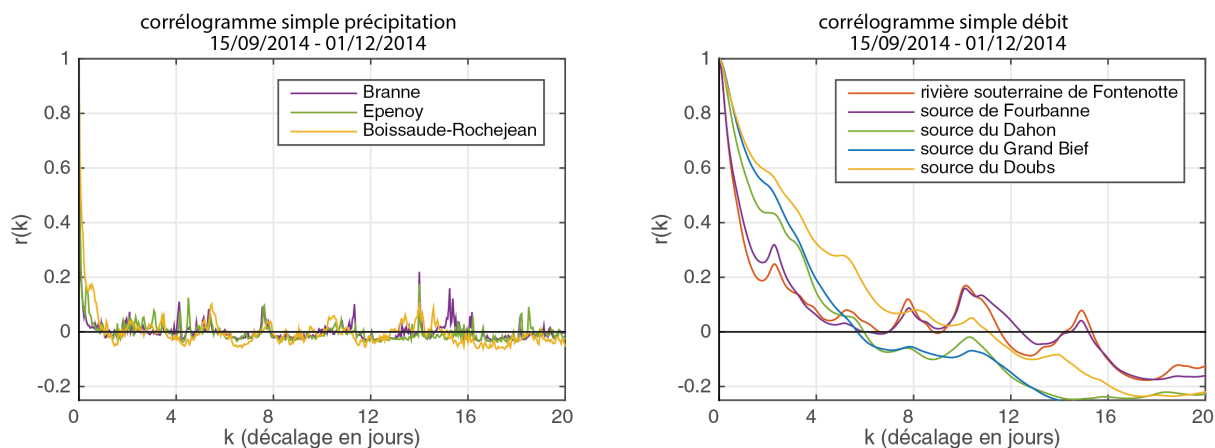
**FIGURE III.4** – Débit moyens mesurés sur la période pour les années 2014, 2015 et 2016

## 2. Comportement hydrodynamique

### 2.1. Relations précipitation - débit

Des analyses corrélatoires sont réalisées dans le but d'identifier et de comparer la réponse hydrodynamique des différents systèmes karstiques. Étant donné que les chroniques présentent des lacunes liées à des pannes des appareils de mesures et afin de pouvoir réaliser la même analyse sur les suivis physico-chimiques, une chronique complète a été sélectionnée sur la période du 15/09/2014 au 01/12/2014. Cette chronique est utilisée pour l'analyse pluie-débit mais également pour l'analyse des paramètres physico-chimiques (présentée dans la section suivante). On ne s'intéresse donc pas ici à l'analyse de longue période ni à la détermination de phénomènes saisonniers ou annuels mais à l'identification de dynamiques caractéristiques sur des périodes de l'ordre de quelques mois. Des données horaires sont utilisées afin d'obtenir des analyses affinées de la fonction d'auto-corrélation et également de mettre en évidence des phénomènes de non-stationnarités des comportements des systèmes karstiques en réponse aux impulsions des précipitations (Dörfliger et al., 2004).

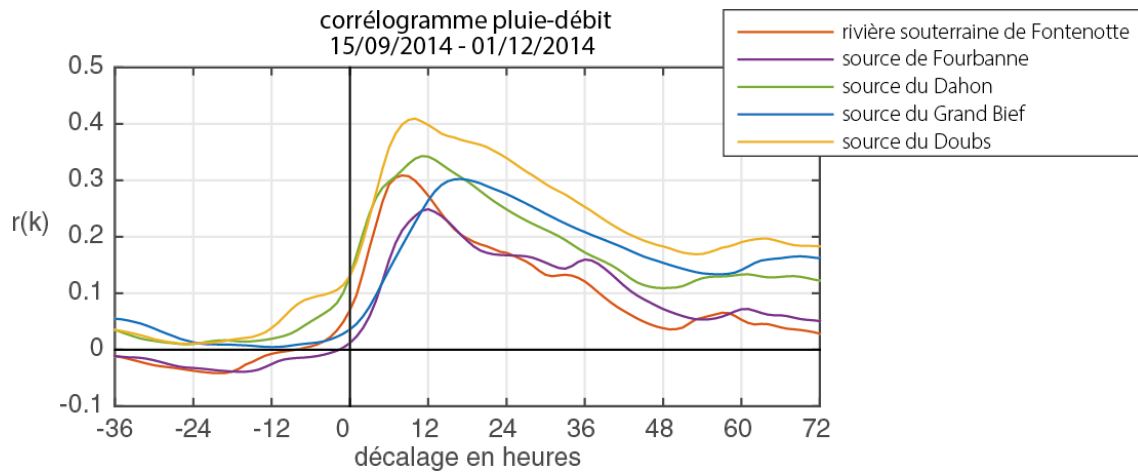
L'analyse est donc réalisée sur une période automnale présentant des périodes de basses eaux mais également des périodes hautes eaux (figure en annexe B). La période sélectionnée n'est pas impactée par des précipitations neigeuses sur les systèmes étudiés sauf sur le bassin de la source du Doubs marquée par de faibles précipitations neigeuses marquant seulement 7% de la chronique.



**FIGURE III.5** – Corrélogramme simple des précipitations (a.) et des débits (b.) au pas de temps journalier sur la période du 15/09/2014 au 01/12/2015

La figure III.5 présente les corrélogrammes simples des précipitations et des débits au pas de temps horaire au cours des années 2014, 2015 et 2016. Le corrélogramme des précipitations est très peu auto-corrélé et peut s'apparenter à une fonction Dirac. Le corrélogramme des débits montre en revanche une certaine inertie des différentes stations mesurées. Cet effet mémoire décrit par Mangin (1975) traduit une auto-régulation du système karstique et indique un phénomène de stockage dans le réservoir. On note cependant que l'ensemble des systèmes étudiés indique une inertie relativement faible en comparaison à d'autres systèmes karstiques. En effet, la valeur à  $r(k)=0.2$  utilisée comme valeur référence dans de nombreuses études en milieu karstique pour définir l'effet mémoire d'un système est atteinte en 3 jours pour le système de Fourbanne, 4 jours pour les systèmes du Dahon et du Grand Bief, et 6 jours pour la sources du Doubs. En comparaison, Marsaud (1996) identifie un effet mémoire de 10 à 15 jours pour le système du Baget et jusqu'à 70 jours pour le système du Torcal. (Moussu, 2011) identifie un effet mémoire à

la source du Doubs de 15 jours sur une chronique plus longue. On peut donc ici émettre quelques réserves sur la valeur même de l'effet mémoire calculé à partir d'une chronique courte. On dénote cependant que pour la période automnale étudiée, nos systèmes sont relativement peu inertiels et avec une inertie plus faible pour le système de Fourbanne marqué par une recharge allochtone importante.



**FIGURE III.6** – Corrélogramme croisé entre les précipitations et les débits au pas de temps horaire sur la période du 15/09/2014 au 01/12/2014

Les fonctions de corrélations croisées entre les pluies et les débits sont illustrées dans la figure III.6. Les débits mesurés sur le système de Fourbanne sont corrélés aux précipitations de la station de Branne, ceux des sources du Dahon et du Grand Bief sont corrélés aux précipitations de la station d'Epenoy et enfin ceux de la source du Doubs aux précipitations de la station de la Boissau-de-Rochejean. Les décalages et les coefficients  $r(k)$  identifiés sont résumés dans le tableau III.1.

On ne distingue pas de tendances particulières entre les différents systèmes qui montrent des décalages compris entre 8 et 17 h. La source du Doubs présente la plus forte corrélation et un décalage court de 10 h indiquant une réaction rapide du système au signal impulsionnel des pluies malgré le fait qu'elle présente la zone de recharge la plus importante. Ceci peut s'expliquer par un fort degré de karstification (Padilla and Pulido-Bosch, 1995) et qui peut être en lien avec les structures de dissolution (gouffres et cavités) importantes en surface de son bassin (Jeanblanc and G., 1971). Cette observation suggère également un effet de la zone saturée, qui aura tendance à transmettre le signal plus rapidement dans le système.

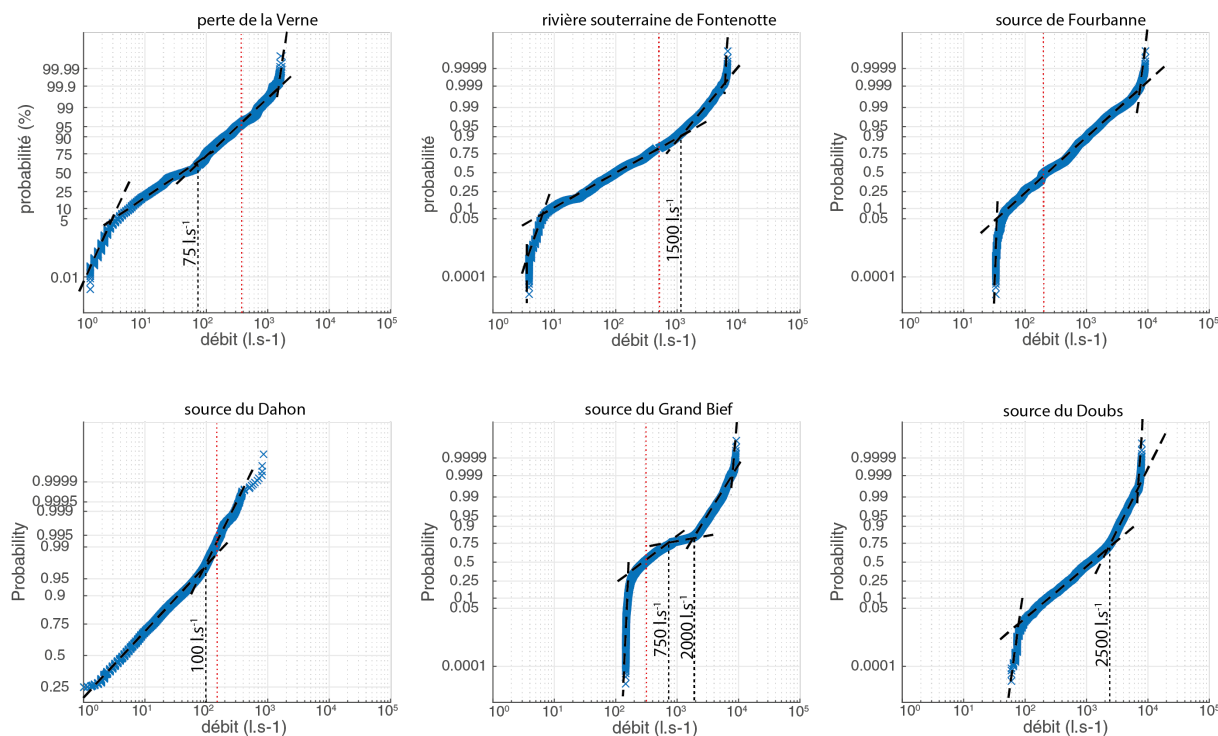
**TABLE III.1** – Récapitulatif des corrélogrammes croisés précipitations brutes et débits au pas de temps journalier sur la période du 15/09/2014 au 01/12/2014

site		Système de Fourbanne		Système d'Epenoy	Système de Lods	Système de Mouthe
station de mesures		rivière souterraine de Fontenotte	source de Fourbanne	source du Dahon	source du Grand Bief	source du Doubs
P-Q	$k$	8h	12h	11h	17h	10h
	$r(k)$	0.31	0.25	0.34	0.30	0.41



On remarque le déphasage entre la rivière souterraine de Fontenotte et la source de Fourbanne de 4 h avec un  $r(k)$  plus faible à la source avec une décroissance de la fonction de corrélation plus rapide. La source du Dahon montre une réaction rapide en lien avec la faible épaisseur de ce petit système karstique. Mais comparativement aux autres systèmes, on observe une lente décroissance de la fonction indiquant un retour à l'état initial plus long. Enfin, la source du Grand Bief montre la réponse la plus tardive, ce qui pourrait laisser supposer une moins bonne connectivité ou alors une zone saturée relativement moins importante.

La figure III.7 présente l'utilisation des débits classés sur l'ensemble de nos sites d'étude. La méthode est donc appliquée à la fois aux exutoires des systèmes karstiques, mais également à des zones intermédiaires telles que la perte de la Verne et la rivière souterraine de Fontenotte caractérisant respectivement, une entrée localisée et le drain principal de la zone non-saturée du système de Fourbanne. L'analyse des débits classés sur l'ensemble de nos stations de mesures permet de distinguer différents comportements hydrodynamiques de nos systèmes karstiques mais peuvent également permettre d'identifier des défauts possibles liés à nos stations de jaugeage. Étant donné que nos courbes de tarages sont définies systématiquement par deux fonctions décrivant respectivement les débits en basses et hautes eaux, la séparation entre ces deux fonctions est indiquée sur les graphiques par une ligne en pointillés rouges. Ceci dans le but, d'identifier d'éventuelles ruptures biaisées par les courbes de tarage. Aucune de ces ruptures ne semble donc liées à celles-ci. Enfin, au vu des difficultés liées à l'estimation des débits en condition d'extrêmes hautes et basses eaux, les ruptures de pentes pour ces valeurs extrêmes ne sont pas interprétées.



**FIGURE III.7** – Courbes des débits classés sur les différentes stations de mesures. Les pointillés noirs correspondent aux ruptures de pente observées. Les pointillés rouges représentent les zones de transition entre les courbes de tarages en basses et hautes eaux qui auraient pu potentiellement biaiser l'analyse.

Les stations du système de Fourbanne, illustrée par les graphiques a, b et c de la figure III.7,

présentent de légères ruptures au niveau de la perte de la Verne pour des débits supérieurs à 75 L/s , et de la rivière souterraine de Fontenotte pour des débits supérieurs à 1500 L/s . Les sections d'écoulement au niveau de ces deux stations présentent une section relativement irrégulière pour la mesure des hauteurs, il est donc tout à fait probable que ces ruptures de pentes puissent être liées à de légères zones de débordement. Ces ruptures ne sont donc pas interprétées. La source de Fourbanne, exutoire du système, ne semble pas présenter de fortes modifications dans la distribution des débits sur la gamme de valeur de 50 L/s à  $8 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  . D'après ces résultats, il n'y aurait à priori aucune fuite ni apport notable en provenance d'autres systèmes karstiques. L'analyse des débits classés à la source du Dahon (fig. III.7(d)) permet d'identifier une rupture de pente pour les débits supérieurs à 100 L/s . La pente devenant supérieure à la pente initiale, indiquerait la mise en fonctionnement de trop-plein ou de fuites vers un autre système. Ceci ne semble pas incohérent avec les descriptions du système du Dahon (cf. ChapitreII). En effet, la source émerge à la faveur d'une fine couche imperméable à la base du Kimméridgien. Une mise en charge du système pourrait donc impliquer et faciliter l'infiltration plus en profondeur d'une partie des eaux présentes dans le réservoir.

Les deux ruptures de pentes observées à la source du Grand Bief (fig. III.7(e)) est complexe à interpréter en raison du manque de données disponibles aux autres exutoires du système. Pour rappel (cf. ChapitreII), le système du Grand Bief présente en effet deux exutoires permanents simultanés proches d'une cinquantaine de mètres. L'ensemble des essais de traçage réalisés sur sa zone de recharge montre systématiquement l'arrivée du traceur aux deux sources indiquant un réservoir aquifère commun dans la zone saturée du système. La présence de ce deuxième exutoire, dit source de la Truite d'Or, pourrait expliquer la présence de la rupture de pente pour les débits entre 750 à 2000 L/s avec des échanges hydrodynamiques complexes au cours des crues entre ces deux exutoires. De plus, comme observé sur site, les conditions de hautes eaux induisent la présence de zones marécageuses et parfois inondées au niveau de la perte du ruisseau d'Athose. Il est donc fort probable qu'une zone de stockage temporaire ait lieu dans ces conditions et puisse être à l'origine de cette rupture observée sur la courbe des débits classés pour les débits supérieurs à 1000 L/s .

Enfin, la source du Doubs présente elle-aussi une rupture de pente positive (fig. III.7(e)) indique un fonctionnement de trop-plein. Cette analyse est cohérente avec les observations de terrain avec les sources temporaires du Cul du Bief (Jeanblanc and G., 1971) et d'autres analyses de débits classés réalisés sur d'autres chroniques de débit (Jeanblanc and G., 1971; Moussu, 2011). Le Cul du Bief semet donc en charge lorsque la source du Doubs présente des débits supérieurs à  $2.5 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  .

### 3. Apport de la physico-chimie

Cette section propose une première caractérisation des dynamiques propres à chaque système karstique étudié dans cette étude à partir des suivis physico-chimiques. Une première partie s'attache à décrire la distribution des paramètres. Puis, une deuxième partie s'attache à interpréter la relation de ces paramètres avec les données brutes de précipitations.

#### 3.1. Distribution des paramètres

##### Température

La température de l'eau est un traceur naturel qui présente l'avantage d'être un paramètre stable et facile à mesurer. Il est cependant non-conservatif et parfois complexe à interpréter car soumis à différents processus. Dans le système karstique, on peut assumer qu'il est soumis principalement à des phénomènes de conduction avec la matrice calcaire et de convection dans l'eau (Birk et al., 2006). Ce paramètre est également utilisé pour estimer la taille et la géométrie des conduits karstiques (Martin and Dean, 1999; Birk et al., 2004; Covington et al., 2011).

Les différents sites d'études présentent des dynamiques très variées. La figure III.8 présente l'évolution de ces chroniques de températures pour les années 2014 et 2015. Les variations du système de Fourbanne caractérisé par une recharge allochtone montre une forte influence des températures extérieures avec de grandes variations annuelles. On remarque nettement que la source de Fourbanne est légèrement plus tamponnée que la rivière souterraine de Fontenotte. Des pics positifs de températures ont lieu au cours des crues quand les températures extérieures sont plus élevées (entre mai et octobre), tandis que des pics négatifs avec des températures plus faibles apparaissent au cours des crues entre novembre et avril. Il apparaît aussi clairement que les sources du Dahon, du Grand Bief et du Doubs sont beaucoup plus tamponnées. Ces faibles variations pourraient s'expliquer par la faible quantité d'infiltrations localisées dans le système, un degré de karstification faible (source du Dahon), ou encore un effet tampon lié à la zone saturée.

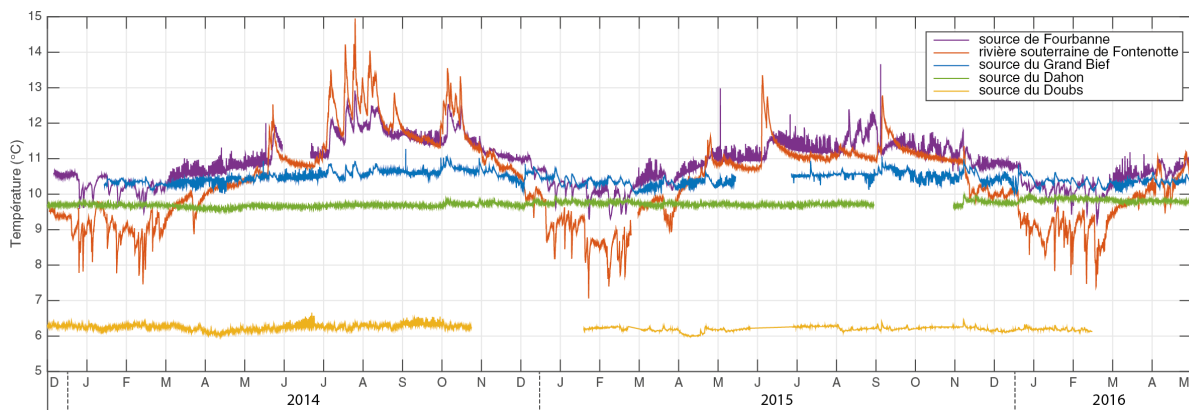
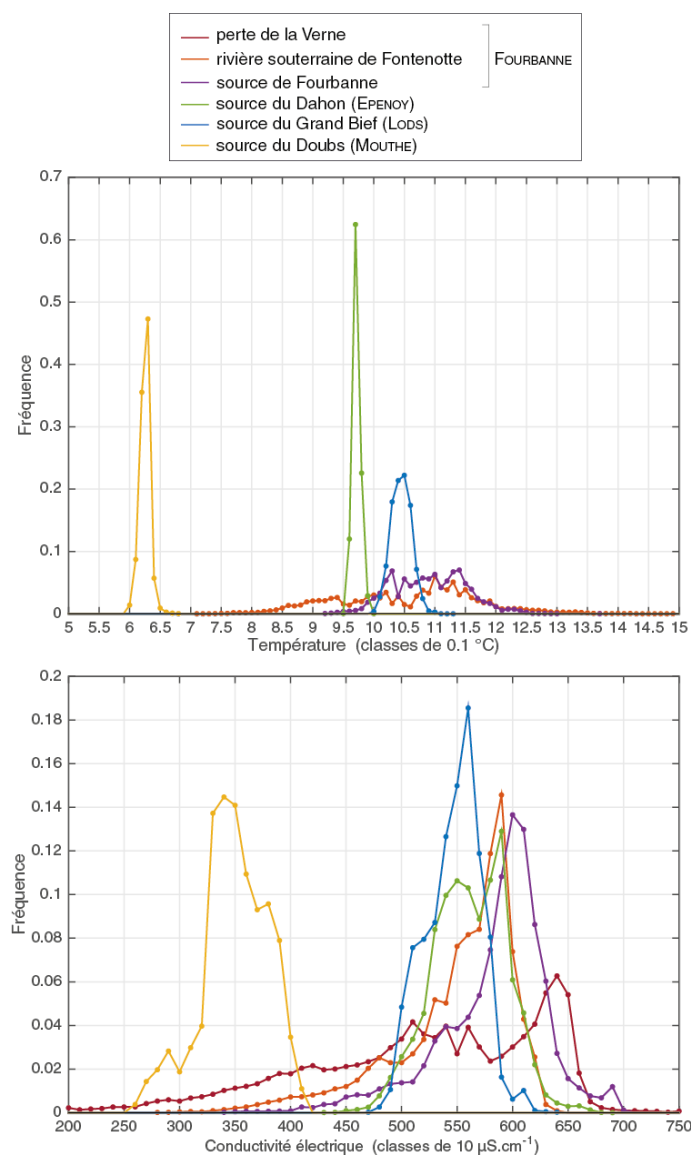


FIGURE III.8 – Évolution des températures aux différentes stations de mesures

La figure III.9.A. représente les fréquences de distribution des mesures de température par classes de 0.1 °C entre 5 °C et 15 °C . Les données de la perte de la Verne ne sont pas ajoutées à ce graphique étant donné qu'elles correspondent à un écoulement superficiel fortement influencé par les températures extérieures et donc avec des mesures dispersées entre 2 °C et 20 °C . Les températures du conduit non-saturé et saturé du système de Fourbanne présentent une dispersion importante entre 8.5 °C et 12 °C à la rivière souterraine de Fontenotte et légèrement moins

dispersés à la source de Fourbanne (entre 9.5 °C et 12 °C ). Les températures de ce système karstique, caractérisées par une forte recharge allochtone en amont du bassin, sont fortement influencées par les points d'infiltration localisés dans le conduit puis progressivement tamponnées le long du conduit karstique.



**FIGURE III.9** – Fréquences de distribution des chroniques des températures (a) et de conductivité électrique (b).

Les sources du Dahon, du Grand Bief et du Doubs présentent au contraire une très faible dispersion des mesures de températures avec 0.5 °C d'écart entre le minimum et le maximum observés sur l'ensemble de la chronique pour les sources du Dahon et du Doubs et 1 °C d'écart pour la source du Grand Bief.

Ces résultats laissent supposer pour le système du Dahon que le transfert de chaleur par conduction est probablement le processus dominant en cohérence avec les observations de Bundschuh (1993) déjà réalisées sur l'étude des réservoirs d'eau souterraine superficiels (ou fins). Le système du Dahon décrit ainsi un petit système karstique caractérisé par une hiérarchisation de drainage

peu développé et dominés par des apports diffus à l'instar de certains systèmes observés par Liñán Baena et al. (2009) dans la Sierra de las Nieves.

Les faibles variations des températures mesurées à la source du Doubs peuvent également être attribuées à des phénomènes de convection au sein du réservoir. Les températures extrêmement basses mesurées sont liées aux conditions particulièrement froides de la Haute-Chaine ou l'on identifie parfois localement l'existence de pergélisol (Delaloye, 2004). Enfin la stabilité de ces températures indiquerait un réservoir profond important peu troublé par des apports de surface localisés. Pour expliquer ces variations, Jeanblanc and G. (1971) suggèrent que la source du Doubs présente une mise en équilibre thermique avec l'encaissant très en amont de l'exutoire.

### Conductivité électrique

Les fréquences de distribution des mesures de conductivité électrique sont calculées pour des classes de  $10 \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$  entre  $200$  et  $700 \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$  et illustrées dans la figure III.9.B. Le système de Fourbanne caractérisé par une importante recharge allochtone en amont de son bassin d'alimentation présente une forte dispersion des mesures observées à la perte de la Verne, qui seront ensuite progressivement tamponnées le long du conduit jusqu'à la source de Fourbanne. On remarque également que la conductivité de la fréquence maximale observée à la perte de Verne ( $640 \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$ ) est plus importante que celles de la rivière souterraine de Fontenotte et de la source de Fourbanne ( $590-600 \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$ ). Bien que la distribution de la conductivité est beaucoup plus dispersée à la perte de la Verne, on dénote que la perte peut être responsable d'un apport minéralisé important dans le réseau d'En-Versennes.

Les sources du Dahon et du Grand Bief montrent une minéralisation assez proche. La source du Grand Bief montre une fréquence maximale nette de  $560 \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$ . En revanche, on dénote à la source du Dahon deux pics, avec un premier pic proche de celui de la source du Grand Bief et un deuxième pic qui se caractérise par une eau légèrement plus minéralisée avec une fréquence maximale de  $590 \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$ . En ce qui concerne la source du Doubs, une minéralisation peu élevée est mesurée avec une fréquence maximale autour de  $340 \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$ . Cette faible minéralisation peut s'expliquer par 3 principaux phénomènes induits par la localisation du système dans la Haute-Chaine du Massif du Jura et l'altitude de l'exutoire : (1) des températures très faibles, (2) une faible activité biologique du sol produisant moins de  $\text{CO}_2$  et induisant moins de dissolution (Blavoux et al., 1979; Calmels et al., 2014), (3) les temps de séjours des exutoires de la Haute-Chaine sont plus courts comparativement aux exutoires des plateaux externes du Massif du Jura (Blavoux et al., 1979).

### Turbidité

Les fréquences cumulées de la turbidité pour les différentes stations sont présentées dans la figure III.10 sur l'ensemble des chroniques obtenues entre 2013 et 2016. Des différences notables sont identifiées sur un même site en fonction du type de sonde utilisé. Ceci est lié d'une part à des dérives liées à la mesure de la turbidité (cf. Chapitre II) et d'autre part au fait que les chroniques présentent des lacunes non simultanées liées à des pannes et ne couvrent donc pas exactement les mêmes périodes.

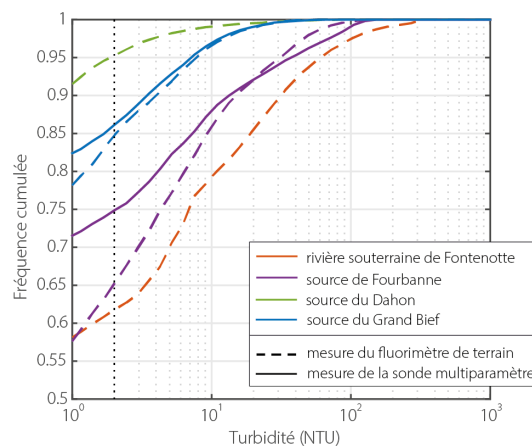
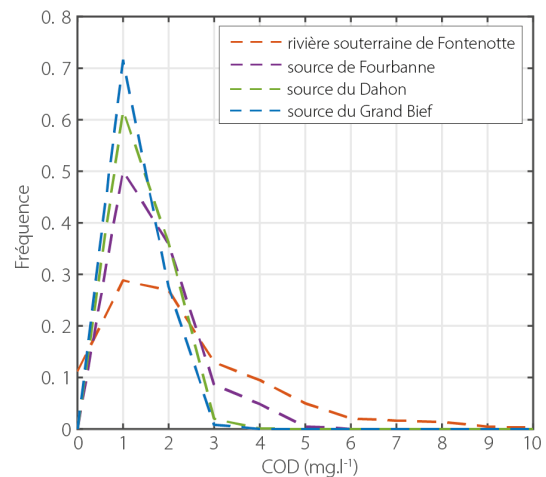


FIGURE III.10 – Distribution des fréquences cumulées de la turbidité des différentes stations de mesures équipées

L'analyse des fréquences cumulées de turbidité dénote cependant clairement les contrastes importants liés au fonctionnement de chaque système karstique. Le petit système karstique du Dahon présente une turbidité relativement basse avec 99% des mesures inférieures à 70 NTU. Ensuite la source du Grand Bief qui présente une plus grande zone de recharge avec une infiltration diffuse et un débit moyen de  $1.1 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ , indique des valeurs globalement plus élevées avec 99% des mesures inférieures à 150 NTU. Enfin le système de Fourbanne montre des valeurs de turbidité nettement plus élevées liées probablement à sa recharge allochtone avec une turbidité mesurée dans la zone non-saturée plus importante que dans la zone saturée.

### COD\*

Les mesures semi-quantitatives du COD\* réalisées à partir du suivi continu de la fluorescence naturelle et calibrées à partir de mesure de COD en laboratoire sont replacées pour l'analyse des fréquences de distribution entre 0 et  $10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  pour des classes de  $1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  (figure III.10). Bien que semi-quantitative, on dénote dans la distribution de ces mesures que l'ensemble des stations montre une valeur maximale similaire autour de  $1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ . Les sources du Dahon et du Grand Bief, caractérisées par une recharge diffuse, montrent une distribution des fréquences relativement concentrée (entre 0 et  $3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ) quand les stations du système allochtone de Fourbanne montrent des distributions plus dispersées avec des valeurs maximales de  $9 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  pour Fontenotte et de  $5 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  pour Fourbanne.



**FIGURE III.11** – Fréquences de distribution de suivi semi-quantitatif du COD\* pour des valeurs entre 0 et  $10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  et des classes de  $1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$

### 3.2. Corrélogrammes croisés entre précipitation et physico-chimie

L'analyse des corrélogrammes croisés entre précipitations et les différents paramètres physico-chimiques mesurés donne quelques clés pour caractériser la dépendance ou non de certains paramètres en réponse aux impulsions des précipitations. On rappelle que la chronique étudiée correspond à une période automnale qui regroupe à la fois des périodes de basses eaux et de hautes eaux et permet d'identifier certains comportements caractéristiques à l'échelle de la crue (figure III.12). Les coefficients de corrélations de ces corrélogrammes sont relativement faibles avec des maximums à 0.5 mais permettent de caractériser des tendances entre les différentes stations de mesures. Les valeurs utilisées dans l'interprétation de ces corrélogrammes croisés sont résumés dans le tableau III.2. On retient les valeurs maximales des coefficients de corrélation  $r(k)$  - avec des valeurs positives pour les relations pluies-débits, -COD et -turbidité, et des valeurs négatives pour les relations pluie-EC - et les décalages  $k$  correspondant.



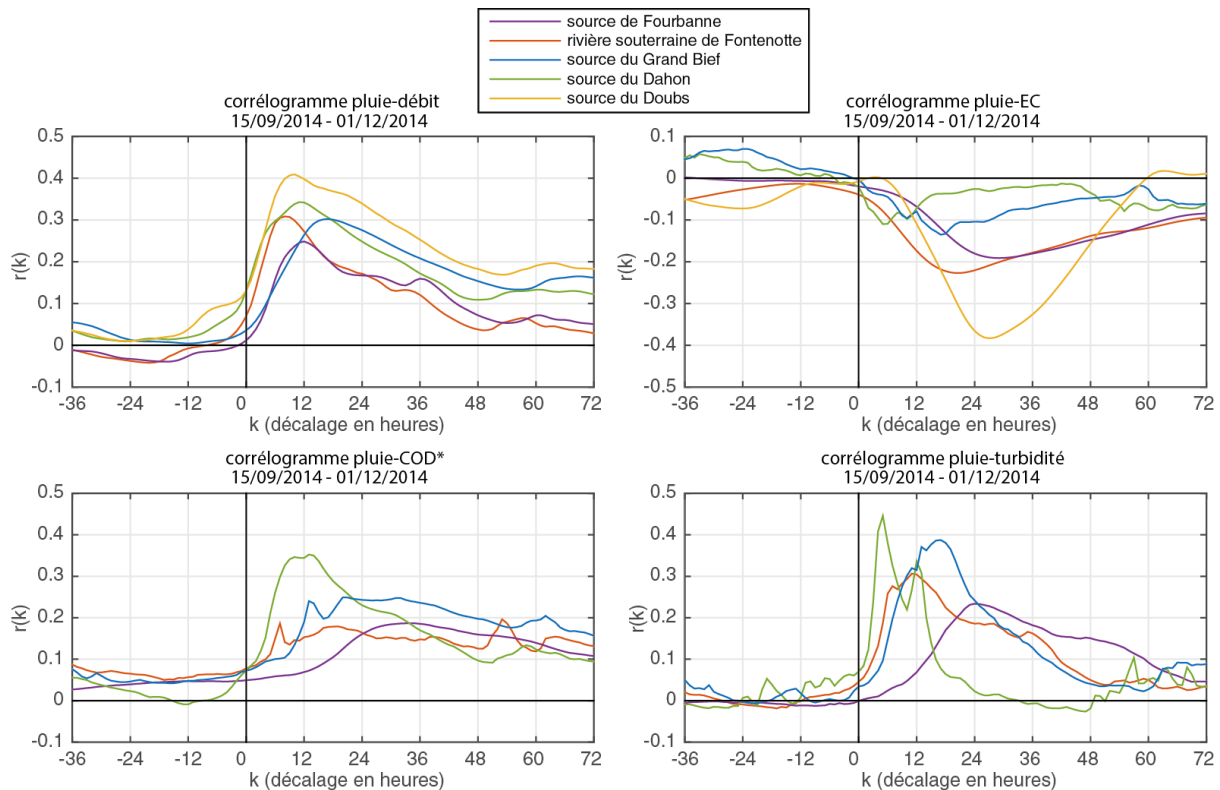
**TABLE III.2** – Résumé des valeurs de  $k$  et  $r(k)$  des corrélogrammes croisés au pas de temps horaire. Les valeurs de  $k$  retenues correspondent aux  $r(k)$  maximales pour les corrélogrammes précipitation-débit, précipitation-COD, précipitation-turbidité et aux  $r(k)$  minimales pour le corrélogramme précipitation-EC.

site		Système de Fourbanne		Système d'Epenoy	Système de Lods	Système de Mouthe
station de mesures		rivière souterraine de Fontenotte	source de Fourbanne	source du Dahon	source du Grand Bief	source du Doubs
P-Q	$k$	8h	12	11h	17h	10h
	$r(k)$	0.31	0.25	0.34	0.30	0.41
P-EC	$k$	20h	29h	5h	17h	27h
	$r(k)$	-0.23	-0.19	-0.11	-0.16	-0.38
P-turb.	$k$	11h	24h	5h	17h	-
	$r(k)$	0.31	0.23	0.45	0.39	-
P-COD*	$k$	18h	34	13h	20h	-
	$r(k)$	0.18	0.19	0.35	0.25	-

Le corrélogramme croisé précipitation-EC montre une anti-corrélation avec des valeurs de  $r(k)$  négatives sur l'ensemble des systèmes. On note que la source du Doubs indique une valeur particulièrement nette et élevée pour un décalage de 27 h qui semble correspondre à un simple effet de dilution liée aux précipitations avec un rapide retour à l'état initial. C'est ce qui ressort également lorsqu'on analyse les chroniques physico-chimiques (cf. Annexes A). Le système de Fourbanne montre la même dynamique avec un déphasage de 9 h entre la station de Fontenotte et l'exutoire principal, en revanche on note des coefficients plus faibles et un retour à l'état initial beaucoup plus lent, suggérant des apports plus diffus en fin des crues. Finalement, les sources du Dahon et du Grand Bief montrent des corrélations négatives moins nettes en lien avec des phénomènes de recharge plus diffus et qui semblent plus complexes à apprécier avec un indicateur tel que la conductivité électrique.

La corrélation entre les précipitations et la turbidité est élevée à la source du Dahon indiquant une réponse brève de ce petit système karstique avec un décalage de 5 h simultané avec la corrélation négative de la conductivité. On observe également un deuxième pic illustrant la bi-modalité de son signal et suggérant deux modes de transport distincts dans le système et/ou décrivant la non-stationnarité de la réponse face à l'impulsion des précipitations en fonction de l'état initial du système. On note cependant une décroissance rapide de la fonction liée à la petite taille de ce système. La source du Grand Bief montre une réponse de la turbidité relativement brève avec un décalage de 20 h et simultanée à la conductivité qui laisse supposer à des apports superficiels. Sur le système de Fourbanne, la corrélation de la turbidité est la plus élevée arrive à 8 h celle de la conductivité à la station de Fontenotte et 5h à la source de Fourbanne. Elle pourrait être liée à la fois à une arrivée particulière liée à des apports de surface et également à une remobilisation interne dans le réseau.

Le corrélogramme croisé P-COD\* montre une dynamique similaire que celle de la turbidité mais avec les  $r(k)$  plus faibles et des décalages plus importants. Les fonctions de corrélations sont plus étalées et indiquent des phénomènes plus inertiels pour ce traceur non-conservatif. Ces dynamiques peuvent être liées aux origines plus diffuses de ce traceur mais également aux phénomènes saisonniers de la matière organique. Tissier et al. (2013) remarque notamment un retard de la matière organique plus important pendant les périodes d'automne-été sur le système karstique de Roche Saint-Alban, localisé au sud du massif du Jura, et également avec des teneurs plus élevées à cette période.

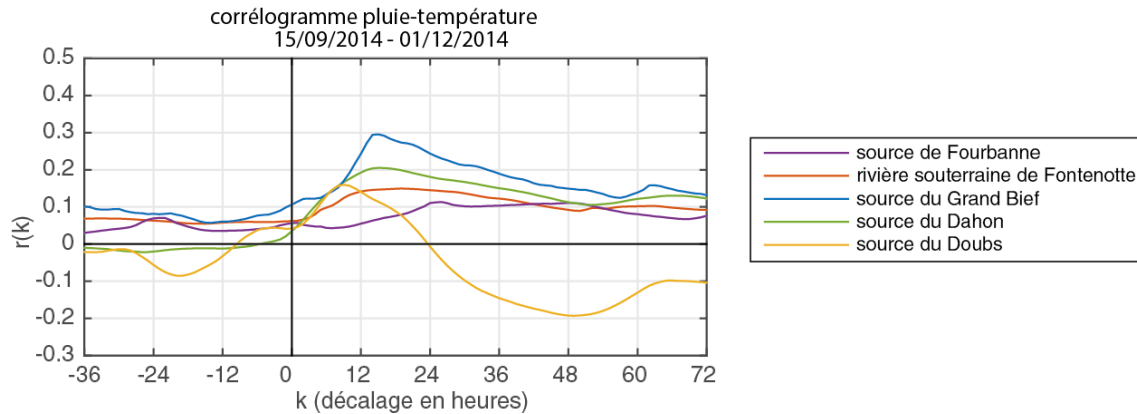


**FIGURE III.12** – Corrélogrammes croisés sur l'ensemble des chroniques des différentes stations (analyses des données au pas de temps horaire))

L'analyse de ces corrélogrammes croisés appliqués à de nombreux paramètres physico-chimiques nous donne de nombreuses informations pour caractériser la réponse globale de ces systèmes aux précipitations. Le signal d'entrée utilisé reste un signal brut des précipitations, qui ne distingue donc pas les phénomènes liés aux précipitations neigeuses, à l'évapotranspiration ou encore l'état de saturation des sols mais qui décrit la réponse globale du système. Ainsi plusieurs éléments intéressants ressortent donnant des clés complémentaires pour la compréhension de ces systèmes complexes :

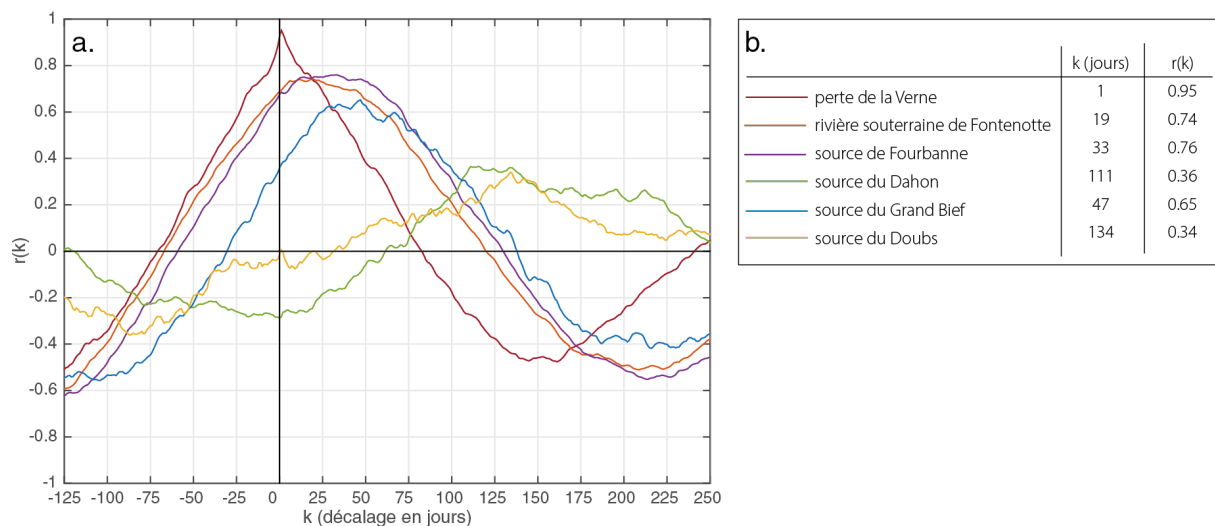
- La réponse progressive le long du réseau d'En-Versennes via les stations de Fontenotte, et Fourbanne caractérisant des compartiments bien distincts de ce système karstique. La rivière souterraine de Fontenotte indique des décalages plus courts et avec corrélation plus élevées qu'à la source de Fourbanne suggérant l'effet lié à la propagation du signal dans le conduit et du passage dans la zone saturée.
- Des coefficients de corrélation relativement élevés à la source du Dahon décrivant la réaction rapide des débits, de la turbidité et du COD\* de ce petit système en lien probablement avec la faible épaisseur de sol sur son bassin ainsi que de la faible épaisseur de l'aquifère lui-même. Tandis que l'on observe une corrélation faible entre les précipitations et la conductivité expliquée par la recharge diffuse du bassin. On observe cependant une réponse bi-modale de la turbidité qui semble déceler deux phénomènes distincts : (i) un premier pic arrivant 6 heures avant celui du débit suggérant des phénomènes de remobilisation dans le système et (ii) un deuxième pic simultané au débit suggérant les apports superficiels sur le bassin.
- La dynamique observée à la source du Grand Bief suggère une recharge diffuse indiquée par l'étalement important de  $r(k)$  entre les précipitations et la conductivité.

L'analyse des corrélogrammes croisés précipitations-températures (figure III.13) est plus délicate. La réponse impulsionnelle de la température de l'eau montre un coefficient de corrélation maximal faible pour les différentes stations. On remarque en particulier pour le système de Fourbanne des fonctions de corrélations très étalées et qui s'expliquent par la forte recharge localisée du bassin fortement influencée par les températures extérieures. Les sources du Grand Bief et du Doubs indiquent des pics simultanés à ceux du débits en lien donc avec les transferts hydrodynamiques.



**FIGURE III.13** – Corrélogrammes croisés précipitation-température sur l'ensemble des chroniques des différentes stations (analyses des données au pas de temps horaire)

Bien que la température est un paramètre auto-corrélé et ne correspond donc pas à une réponse impulsionnelle, Fournillon (2012) propose de quantifier la mesure d'inertie apportée par la température à partir de corrélogramme croisé entre la température extérieure et la température de l'eau. Il définit le décalage de la valeur du coefficient maximal ( $k$ ) comme descripteur qui caractérise le temps de renouvellement des réserves gravitaires de la source.



**FIGURE III.14** – Corrélogramme croisé entre les températures moyennes extérieures journalières et les températures de l'eau mesurées aux sources sur la période 2014 à 2016 au pas de temps journalier (figure III.8). En complément un tableau résume les  $k$  et  $r(k)$  par station.

Cette analyse est appliquée sur nos stations de mesures au pas de temps journalier afin de caractériser les grandes variations saisonnières. Elle donne alors de nouvelles clés pour estimer le temps d'influence des variations de températures extérieures sur la température mesurée aux sources. Ainsi sur le système de Fourbanne, on dénote un décalage quasi-instantané à la perte de la Verne puis de 19 jours dans la zone non-saturée et enfin de 33 jours à l'exutoire de la zone saturée. Ce décalage "transmissif" semble donc relativement rapide pour les systèmes présentant une recharge allochtone importante. Il est moins rapide à la source du Grand Bief (47 jours) et semble nettement plus long pour les sources du Dahon et du Doubs avec respectivement 111 et 134 jours et avec des coefficients faibles. Ces observations suggèrent de nouveau des phénomènes d'inertie importants dans ces systèmes en lien avec les structures de karstification et leurs hiérarchisations distinctes (Padilla and Pulido-Bosch, 1995).

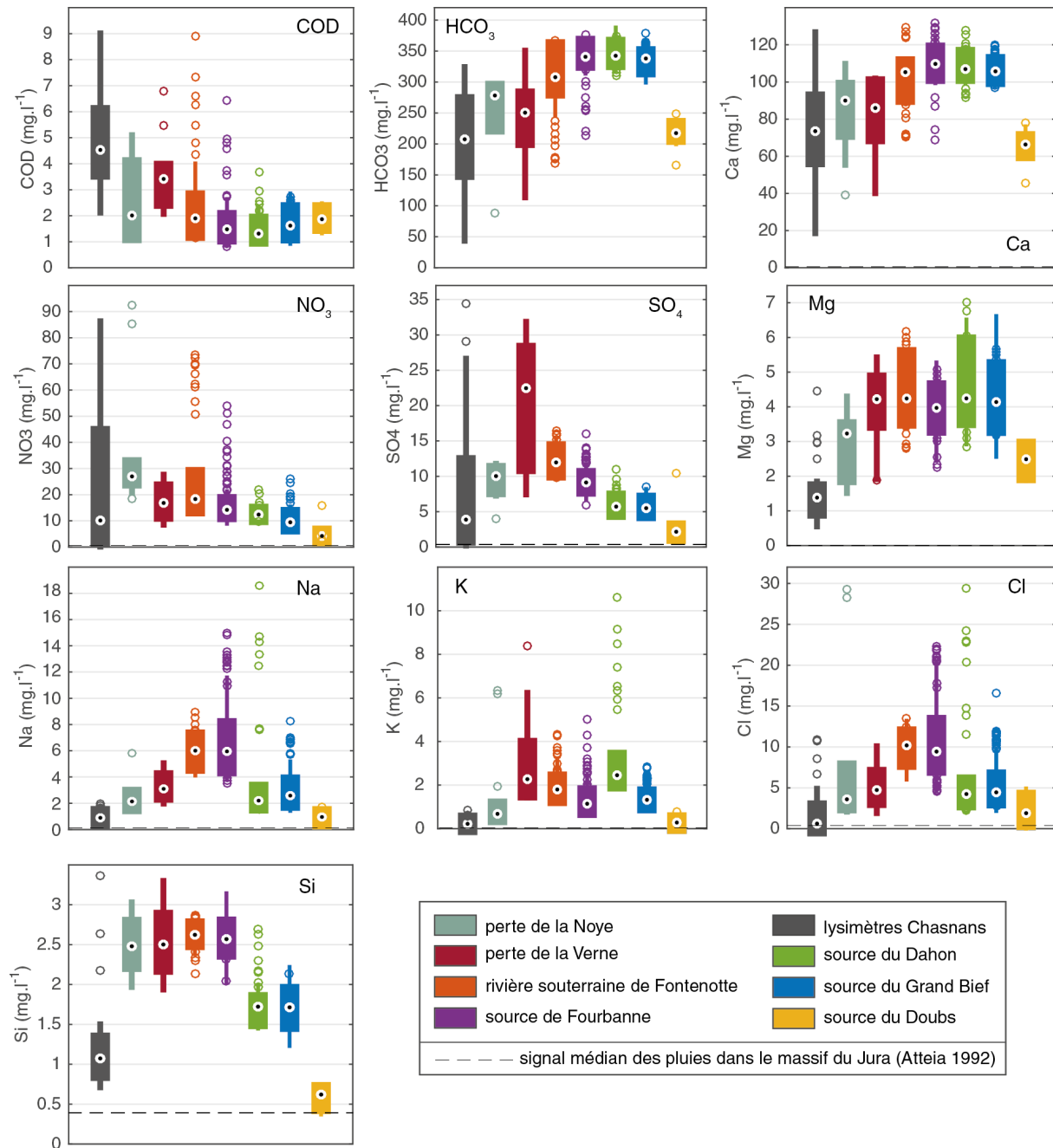
## 4. Apport des analyses hydrochimiques

### 4.1. Signatures hydrochimiques caractéristiques

#### 4.1.1. Éléments majeurs

De nombreux prélèvements ont été réalisés sur les différents systèmes karstiques étudiés. La figure III.15 synthétise les résultats des analyses réalisées en éléments majeurs et COD sur l'ensemble de ces prélèvements manuels ainsi que les analyses des plaques lysimétriques (Badot et al., 2016) installées dans la zone de d'alimentation de la source du Grand Bief. Les éléments majeurs analysés et validés sur les prélèvements automatiques pour les sources de Fourbanne et du Grand Bief sont également inclus dans le calcul des boîtes à moustache. Les valeurs extrêmes observées de ces boîtes à moustache sont représentées par des cercles. De plus, les valeurs minimales, maximales ainsi que quelques mesures intermédiaires représentatives mesurées au cours des différents suivis de crues sont ajoutées aux graphiques et illustrées par ces mêmes cercles. Comme détaillés dans la section (cf. Chapitre II), ces suivis de crues n'ont pas tous été réalisés systématiquement sur chaque station. L'ajout de ces valeurs permet simplement d'illustrer la variabilité de certains éléments sur plusieurs sites et démontre de nouveau l'importance de prélever aussi au cours des crues pour mieux définir la variabilité hydrochimique temporelle des sources karstiques.

L'ajout des analyses des plaques lysimétriques et de deux pertes localisées du système de Fourbanne donne la possibilité de comparer la variabilité hydrochimique dans les systèmes karstiques étudiés avec des eaux superficielles. Les lysimètres caractérisent les signatures hydrochimiques des sols sur le plateau d'Ornans dans les couches calcaires du Tithonien et définit par un type de pratique agricole appliqué aux prairies permanentes et temporaires. Tandis que les pertes de la Verne et de la Noye caractérisent de petits cours d'eau superficiels marqués respectivement par la signature hydrochimique des couches marneuses du Lias et du Trias occupées par une agriculture céréalière et prairiale d'une part, et par la signature de rejets domestiques induit par la dilution des eaux de la station de lagunage d'autre part.



**FIGURE III.15** – Boîtes à moustache des éléments majeurs et du COD réalisés à partir des analyses des prélèvements manuels et automatiques (pour les sources de Fourbanne et du Grand Bief). Les points correspondent aux valeurs extrêmes des boîtes à moustaches respectives et également à certaines valeurs extrêmes analysées au cours des suivis de crues. Les traits en pointillés correspondent aux valeurs médianes mesurées dans les précipitations par Atteia (1992) indiquées sur l'ensemble des éléments mis à part le COD et  $\text{HCO}_3$ .

## COD

Le carbone organique<sup>1</sup> est utilisé comme indicateur d'un transit rapide des eaux infiltrées à travers le sol (Emblanch et al., 1998; Batiot, 2002; Mudarra and Andreo, 2011; Charlier et al., 2012). Des expériences en laboratoire et sur le terrain montrent que la dégradation suit une loi exponentielle du temps (Batiot, 2002). C'est donc un traceur non conservatif. Batiot (2002) calcule une minéralisation d'environ 70% de la matière organique en trois mois.

La dynamique moyenne des teneurs observées est similaire à celle identifiée avec la distribution du suivi semi-quantitatif du carbone organique dissous, COD\*, estimé à partir des mesures de la fluorescence naturelle. On dénote des valeurs moyennes relativement plus élevées (entre 2 et 3 mg.L<sup>-1</sup>) sur les prélèvements réalisés sur les différents exutoires étudiés. Les teneurs particulièrement élevées mesurées sur le système de Fourbanne semblent induites en grande partie par la recharge allochtone des couches marneuses en amont du bassin étant donné que la gamme des teneurs en COD diminue entre la perte de Verne, la rivière souterraine de Fontenotte et la source de Fourbanne.

## HCO<sub>3</sub>, Ca et Mg

La signature de la dissolution de la roche carbonatée dans l'aquifère se lit grâce à par la teneur des éléments HCO<sub>3</sub> et Ca. On retrouve des concentrations moyennes élevées et peu dispersées avoisinant 325-375 mg.L<sup>-1</sup> en HCO<sub>3</sub> et 100-120 mg.L<sup>-1</sup> en Ca aux exutoires des bassins karstiques sauf pour la source du Doubs caractérisée par une minéralisation largement inférieures avec des concentrations 2/3 plus faibles. Ces observations sont cohérentes avec les études de Blavoux et al. (1979) et Calmels et al. (2014) décrivant des phénomènes de dissolution qui diminuent en fonction du gradient d'altitude dans le Massif du Jura. La rivière souterraine de Fontenotte montre des teneurs légèrement inférieures à celle observées à la source de Fourbanne tandis que les pertes de la Noye et de Verne sont nettement moins concentrées. Ceci indique que les fortes teneurs sont acquises par des eaux à transit lent.

Les teneurs en Mg montre une dynamique similaire, il est un substitut de Ca dans les roches carbonatées et est souvent utilisé pour caractériser dans ces aquifères des eaux à temps de résidence longs (Mudry, 1987; Batiot et al., 2003). On distingue cependant des teneurs plus élevées à la perte de Verne qui peuvent s'expliquer par une origine géogène liée à certains niveaux dolomitiques dans le trias supérieur avec notamment les marnes vertes dolomitiques.

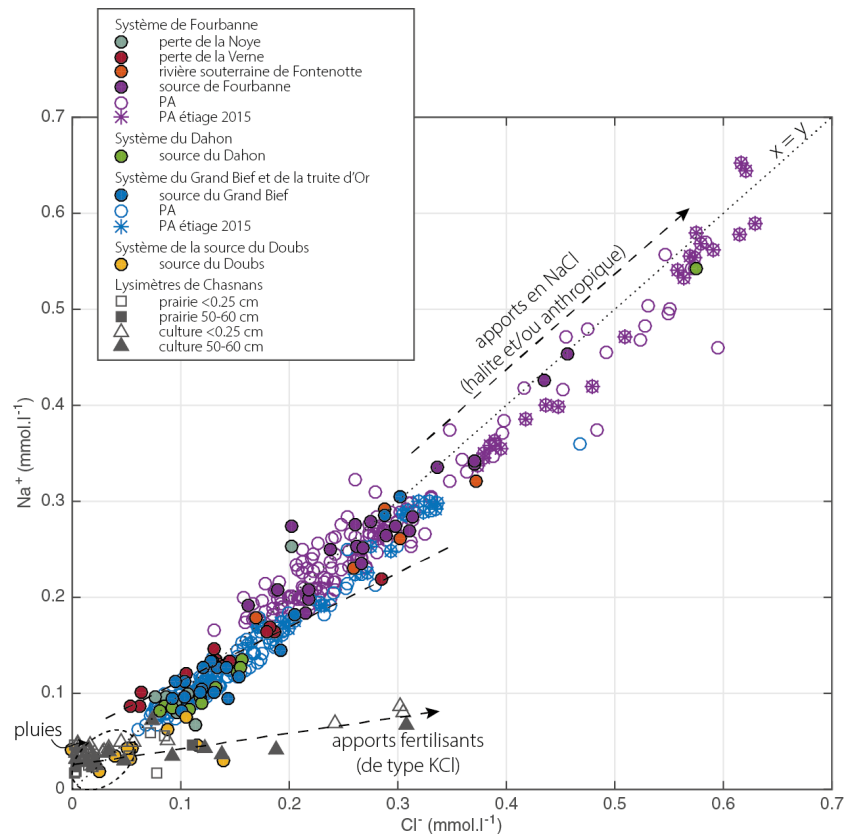
## Na et Cl

Le Cl est un élément souvent considéré comme traceur naturel parfait car il est très soluble et conservatif. D'après Atteia (1992), la teneur médiane en chlorure mesurée dans les précipitations (pluies et neiges) récoltées dans le Massif du Jura est de 0.84 mg.L<sup>-1</sup>. Les teneurs élevées mesurées sur nos sites impliquent donc d'autres origines qui peuvent être multiples - géogènes (roches évaporitiques) et/ou anthropiques (agriculture, rejets domestiques, salage des routes, etc).

---

1. Dans les eaux souterraines, la part du carbone organique particulière constitue une part négligeable du carbone organique total (Thurman, 1985). Il peut cependant jouer un rôle plus important dans les rivières ou les solutions du sol en étant adsorbé sur certaines particules en suspension dans l'eau (Barth et al., 1998). Dans le cadre de cette étude nous intéressons uniquement à la fraction dissoute (inférieure à 0.22 µm).





**FIGURE III.16** – Relation entre les Na et Cl à partir des prélèvements manuels et automatiques sur les différentes stations de mesures

La figure III.16 montre une relation stœchiométrique nette entre Cl et Na pour l'ensemble des stations suivies sauf à la perte de la Verne où les points s'alignent sur une pente légèrement plus faible. Les teneurs élevées en Na et Cl ne peuvent être expliquées par la seule recharge sur le bassin au vu des valeurs médianes mesurées dans les pluies. Cette relation stœchiométrique entre les deux éléments laisse penser à des apports géogènes provoqués par la dissolution de la halite ou encore à des origines anthropiques par des rejets domestiques, des apports agricoles ou le salage des routes.

Les eaux des lysimètres ne dénotent, en revanche, pas cette relation mais une pente beaucoup plus faible suggérant un apport en chlorures par des fertilisants agricoles de type KCl, comme observé également par Dematteis (1995) dans les eaux des plateaux de Haute-Saône dans le jura tabulaire.

Enfin, la pente plus faible observée pour les prélèvements de la perte de la Verne peut s'expliquer par des origines complémentaires avec l'apport de fertilisants pour l'enrichissement en Cl et l'origine géogène par les argiles pour le Na.

D'après Charmoille (2005), les teneurs en Na et Cl mesurées sur le système de Fourbanne pourraient être liées à des terrains riches en halite dans le Trias. Au cours de son étude, il note également des concentrations plus élevées aux stations de Fontenotte et Fourbanne qu'à la perte de Verne. Une source de halite pourrait donc être présente au sein de l'aquifère du Fourbanne et induirait les concentrations mesurées de ces deux éléments à l'étiage (Charmoille, 2005). Les mêmes phénomènes sont identifiés sur nos chroniques avec des valeurs élevées en étiage mais aussi au cours des crues. De plus, le bruit de fond mesuré à Fontenotte et Fourbanne est également

plus concentré. Hors, le Trias apparaît en surface uniquement en amont du bassin (figures II.8 et II.7). Pour expliquer ces origines géogènes dans le réseau karstique, cela impliquerait des arrivées d'eau profondes et nécessiterait de traverser l'épaisse série marneuse du Lias sur plus d'une centaine de mètres par le biais des failles sub-verticales du bassin (figure II.8).

Concernant la source du Grand Bief qui présente également des teneurs relativement élevées en Na et Cl, l'origine potentiellement géogène de ces teneurs peuvent difficilement être attribuées aux formations riches en halite du Trias. En effet, les formations du Trias sont profondes dans cette partie du faisceau salinois (plus de 300 mètres). On note en revanche un faciès saumâtre dans les marnes purbeckiennes qui pourrait éventuellement être à l'origine de ces teneurs.

Des origines anthropiques ne sont cependant pas à exclure :

- les rejets domestiques pourraient être à l'origine de ces teneurs élevées sachant d'ailleurs que les communes de la région ne sont encore pas systématiquement reliées à un réseau d'assainissement ;
- certaines pratiques agricoles de plus en plus fréquentes d'ajout de sel (NaCl) sur le foin au moment de la fauche pourraient expliquer ces teneurs. Ces pratiques ont pour but d'apporter un apport de minéraux supplémentaires et présentent aussi un intérêt pour la conservation du foin. La figure III.17 montre la relation stocheométrique entre Na et Cl sur le système du Dahon au cours des crues d'étiages. Ces teneurs ne peuvent s'expliquer sur ce petit système karstique par un lien avec des lithologies saumâtres ou évaporitiques. Elles font suite aux périodes de fauche et semblent donc correspondre aux pratiques agricoles décrites précédemment.

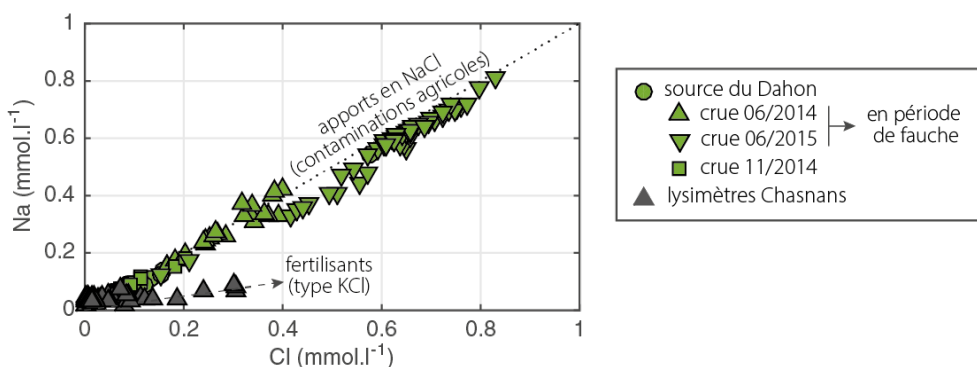


FIGURE III.17 – Identification de l'origine des chlorures à la source du Dahon

- le salage des routes en hiver peut également être une des origines probables.

Plusieurs hypothèses apparaissent donc pour expliquer l'origine de ces concentrations :

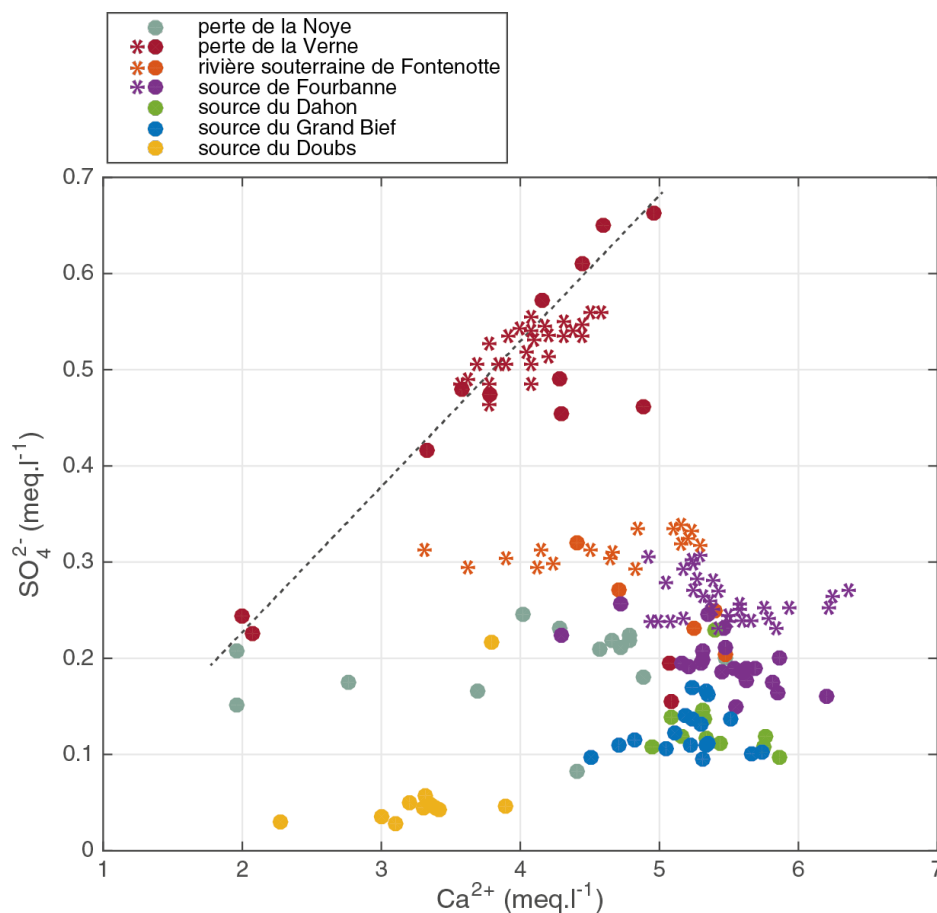
- d'une part une origine géogène liée à des terrains riches en halite (Charmoille, 2005; Caetano Bicalho, 2010).
- d'autre part un impact anthropique induite par des rejets domestiques, agricoles ou encore par le salage des routes comme décrits dans d'autres études (Panno et al., 2006).

Ces hypothèses seront abordées plus en détails pour chaque système dans les sections suivantes et le chapitre 2.

**SO<sub>4</sub>**

La perte de la Verne fait l'objet de teneurs élevées en sulfate avec une teneur médiane de 22.5 mg.L<sup>-1</sup> quand elle est de 12 mg.L<sup>-1</sup> dans la rivière souterraine de Fontenotte et de 9 mg.L<sup>-1</sup> à la source de Fourbanne. Charmoille (2005) constate une corrélation nette entre les ions Ca et SO<sub>4</sub> soulignant la présence de gypse sur le bassin alimentant la perte de Verne. Celui-ci présente en effet des niveaux gypsifères affleurant sur le bassin dans les marnes rouges à gypse du Trias supérieur. La zone affleurante présente d'ailleurs un lieu-dit dénommé "La Gypsière" indiquant la présence d'une ancienne carrière de gypse (CaSO<sub>4</sub>.2H<sub>2</sub>O).

La relation entre les ions Ca et SO<sub>4</sub> constatée par Charmoille (2005) est également nettement identifiée dans nos analyses (figure III.18). Les teneurs en Ca restent cependant nettement supérieures en raison du contexte carbonaté. Une des origines principales des sulfates mesurés dans le système karstique de Fourbanne provient du sous-bassin de Verne. Les teneurs en sulfates sont progressivement diluées le long du réseau d'En-Versennes avec à l'inverse un enrichissement progressif en Ca.



**FIGURE III.18** – Relation Ca<sup>2+</sup> et SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> entre les différentes stations de mesure (les \* correspondent aux données tirées de Charmoille (2005))

La zone de recharge alimentant la source du Grand Bief et de la Truite d'Or présente également une source potentielle de gypse, à proximité du village de Vanclans décrits dans la carte géologique d'Ornans (BRGM, 3424) et signalée dans la formation saumâtre et au faciès marneux du Purbeckien (crétacé inf.). Les prélèvements et analyses réalisées à la source du Grand Bief ne permettent cependant pas l'identification claire de SO<sub>4</sub> en provenance de ces niveaux de marnes

à gypse, avec des teneurs similaires à celles observées à la source du Dahon.

On note également que les marnes du Lias ou de l'Oxfordien contiennent beaucoup de pyrite ( $\text{FeS}_2$ ), qui pourrait par oxydation de celle-ci, être une source potentielle de  $\text{SO}_4$ . Enfin, des apports anthropiques peuvent également être une origine potentielle et expliquer certaines teneurs élevées mesurées à la source du Dahon.

### **NO<sub>3</sub>**

Les nitrates dans l'eau ont plusieurs origines. Tout d'abord, ils présentent une origine atmosphérique. Atteia (1992) mesure des teneurs moyennes dans les précipitations du Massif du Jura de  $0.85 \text{ mg.L}^{-1}$ . Elles ont également une origine naturelle en provenance de la biosphère avec des concentrations inférieures à  $10 \text{ mg.L}^{-1}$  (Atteia, 1992). Les teneurs de  $\text{NO}_3$  mesurées sur nos différents systèmes karstiques montrent des origines complémentaires importantes. On remarque un bruit de fond médian pour les sources de Fourbanne, du Dahon et du Grand Bief entre 10 et  $20 \text{ mg.L}^{-1}$  indiquant un impact anthropique fort sur leur zone de recharge. La source du Doubs en revanche montre des teneurs plus faibles sur les prélèvements réalisés avec une valeur médiane de  $4.2 \text{ mg.L}^{-1}$ . Au vu des concentrations mesurées dans les lysimètres de Chasnans et à la perte de la Noye, deux origines principales sont identifiées ici pour expliquer les teneurs élevées mesurées avec d'une part les apports agricoles et d'autre part les rejets domestiques.

### **K**

Le potassium est un élément toujours présent dans les roches carbonatées avec des teneurs élevées dans les faciès plus pélitiques et peut-être impacté à l'instar de Na par des échanges cationiques (Dematteis, 1995). Dematteis (1995) mesure des concentrations relativement élevées dans les lixiviats de roches de l'Aalénien du massif du Jura, correspondant aux niveaux intermédiaires entre les marnes liasiques du bassin de la perte de Verne et les calcaires du jurassique moyen constituant le réservoir carbonaté du système de Fourbanne. Le suivi hydrochimique de ce système indique d'ailleurs des teneurs plus élevées en amont du bassin et une décroissance progressive dans la zone non-saturée puis dans la zone saturée. Une partie des teneurs en potassium semble donc liée aux sous-bassins marneux du système. Quelques valeurs extrêmes indiquent cependant d'autres origines potentielles via les apports agricoles et domestiques.

La source du Dahon montre une valeur médiane élevée avec  $2.45 \text{ mg.L}^{-1}$  qui peut s'expliquer à la fois par une origine anthropique (agricole essentiellement, avec l'utilisation fréquente de KCl (Dematteis, 1995)) mais pourrait également avoir en partie une origine géogène en lien avec la base de son réservoir suggéré comme un niveau marno-calcaires souvent glauconieux.

### **Si**

La silice présente en solution dans les eaux carbonatées se trouve sous la forme de l'acide silicique,  $\text{H}_4\text{SiO}_4$ . Son origine est essentiellement géogénique. Les teneurs des différentes stations sont faibles et relativement proche de la teneur médiane mesurée dans les précipitations (Atteia, 1992). Blavoux et al. (1979) propose deux hypothèses pour expliquer certaines teneurs élevées mesurées dans le massif du Jura. Celles-ci seraient liées soit aux marnes liasiques et soit à des temps de séjour longs dans le réservoir.

Les teneurs mesurées sur le système de Fourbanne présente des teneurs plus élevées avec des valeurs médianes proche de  $2.5 \text{ mg.L}^{-1}$  quand elles sont de 1.6-1.7 pour les sources du Dahon et du Grand Bief et inférieures à 1 pour la source du Doubs. Ces résultats convergent de nouveau vers l'impact des sous-bassins marneux sur le système de Fourbanne. La source du Dahon en revanche, au vu des valeurs plus fortes mesurées au cours des crues, semble suggérer une autre origine qui sera traitée dans le chapitre suivant.

#### 4.1.2. Éléments traces métalliques

Quelques éléments traces sont représentés dans la figure III.19 afin de compléter les observations réalisées précédemment pour la comparaison des différents systèmes étudiés. Les boîtes à moustache sont définies de la même manière que pour les éléments majeurs. Certains de ces éléments donnent quelques clés supplémentaires pour tenter de caractériser l'origine des eaux.

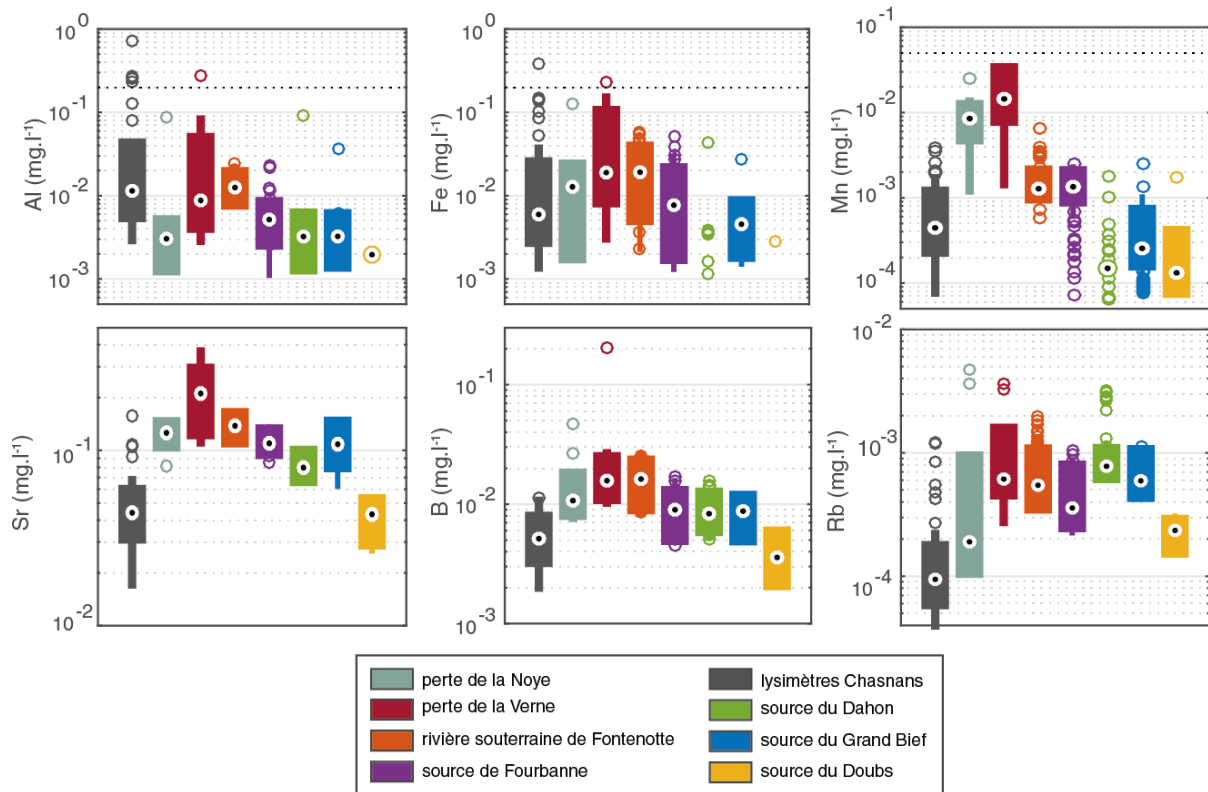


FIGURE III.19 – boîtes à moustaches sol + PM/ PA et max min PC

#### Al, Fe et Mn

Le Fe et le Mn sont essentiellement présents dans l'eau absorbés sur la matière en suspension, sous forme colloïdale ou particulaire, et indiquent des apports en provenance du sol (Vesper and White, 2003). Ils semblent provenir en quantités importantes des eaux de pluies et sont retenus à la surface du sol. Atteia (1992) dénote des teneurs en Fe et Mn comparable entre les prélèvements d'eau de pluies et ceux réalisés à la base du sol. Sur le système du Dahon on les détecte uniquement qu'au cours des crues suggérant donc leur provenance des épisodes de recharge en lien avec les matières en suspension (colloïdale ou particulaire). A Fourbanne, ils présentent des teneurs plus importantes au niveau des bassins marneux de Verne et de la Noye. Ces concentrations plus élevées peuvent s'expliquer en partie par la présence d'oxydes de fer dans le faciès de l'Aalénien comme mesuré dans le lixiviat de roches de ce faciès (Dematteis, 1995).

#### Sr

Le strontium se trouve en solution dans les eaux sous forme cationique ( $\text{Sr}^{2+}$ ). Le rapport Sr/Ca est donc utilisé parfois, à l'instar du rapport Mg/Ca pour caractériser les temps de séjours longs des eaux dans les milieux carbonatés (Caetano Bicalho, 2010). En effet, il est présent dans les roches carbonatées, en tant que vicariant du Ca dans la calcite. Cependant, il est également un constituant primaire dans le gypse et les anhydrites. Il n'est donc pas étonnant de le retrouver

en concentration importante à la perte de la Verne, de la même manière que l'on retrouve des concentrations plus élevées en  $\text{SO}_4$  (figure III.20 Dematteis, 1995).

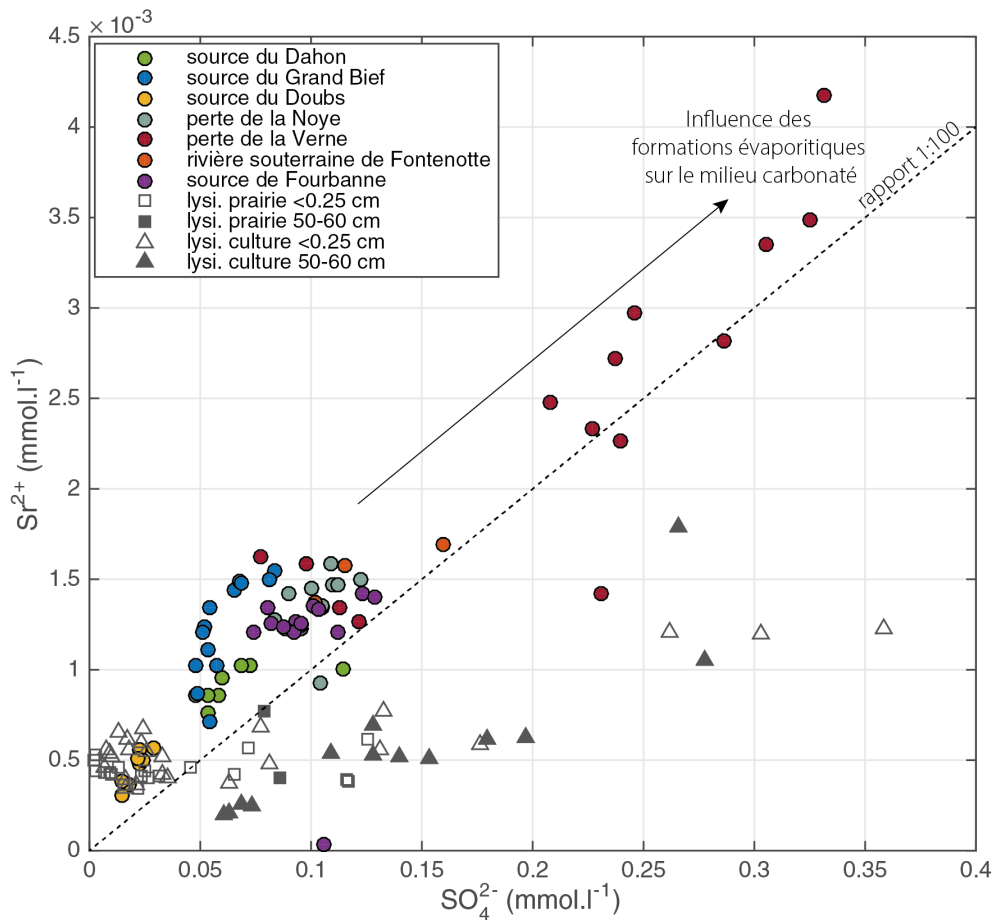


FIGURE III.20 – Relation entre les concentrations de  $\text{SO}_4$  et Sr sur les différents systèmes

## B

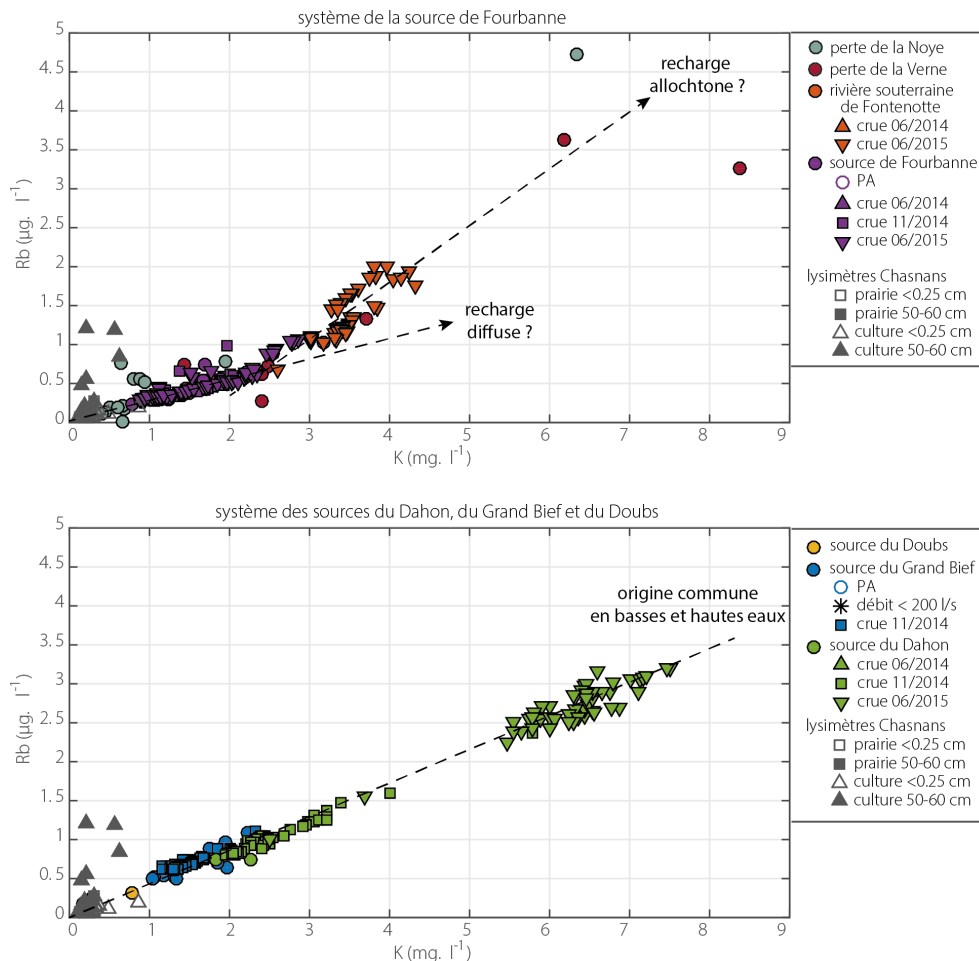
Le bore en milieu carbonaté est essentiellement associé aux argiles et est relativement concentré dans la matière organique (Mural, 1999). C'est également un élément relativement soluble qui a de nombreuses origines anthropiques (contaminations agricoles, rejets domestiques, des décharges). Dans le jura tabulaire, Dematteis (1995) identifie des anomalies de bore qui apparaissent en lien avec des contaminations agricoles et des concentrations élevées en  $\text{NO}_3$ . Sur le système de Fourbanne on identifie des teneurs plus élevées aux pertes, en lien d'une part avec les marnes des sous-bassins marneux et d'autre part induits probablement par des apports agricoles et des rejets domestiques de la station de lagunage de la Noye.

## Rb

Le rubidium se trouve en solution sous forme cationique ( $\text{Rb}^+$ ) et semble enrichi dans les roches à composante pélitique importante (Dematteis, 1995). Il correspond à un substitut du potassium mais il est également fortement adsorbé sur les minéraux argileux. On le retrouve en quantité importante à la source du Dahon à l'instar du potassium avec des concentrations élevées au cours des crues d'été avec une relation très nette avec le potassium. Cela semble indiquer une même origine en basses et hautes eaux (figure III.21). En revanche, la relation entre K et Rb sur le système de Fourbanne semble indiquer deux origines bien distinctes sur le bassin en lien avec la dynamique de crue. Le rubidium apparaît alors comme un traceur pertinent pour marquer l'ori-

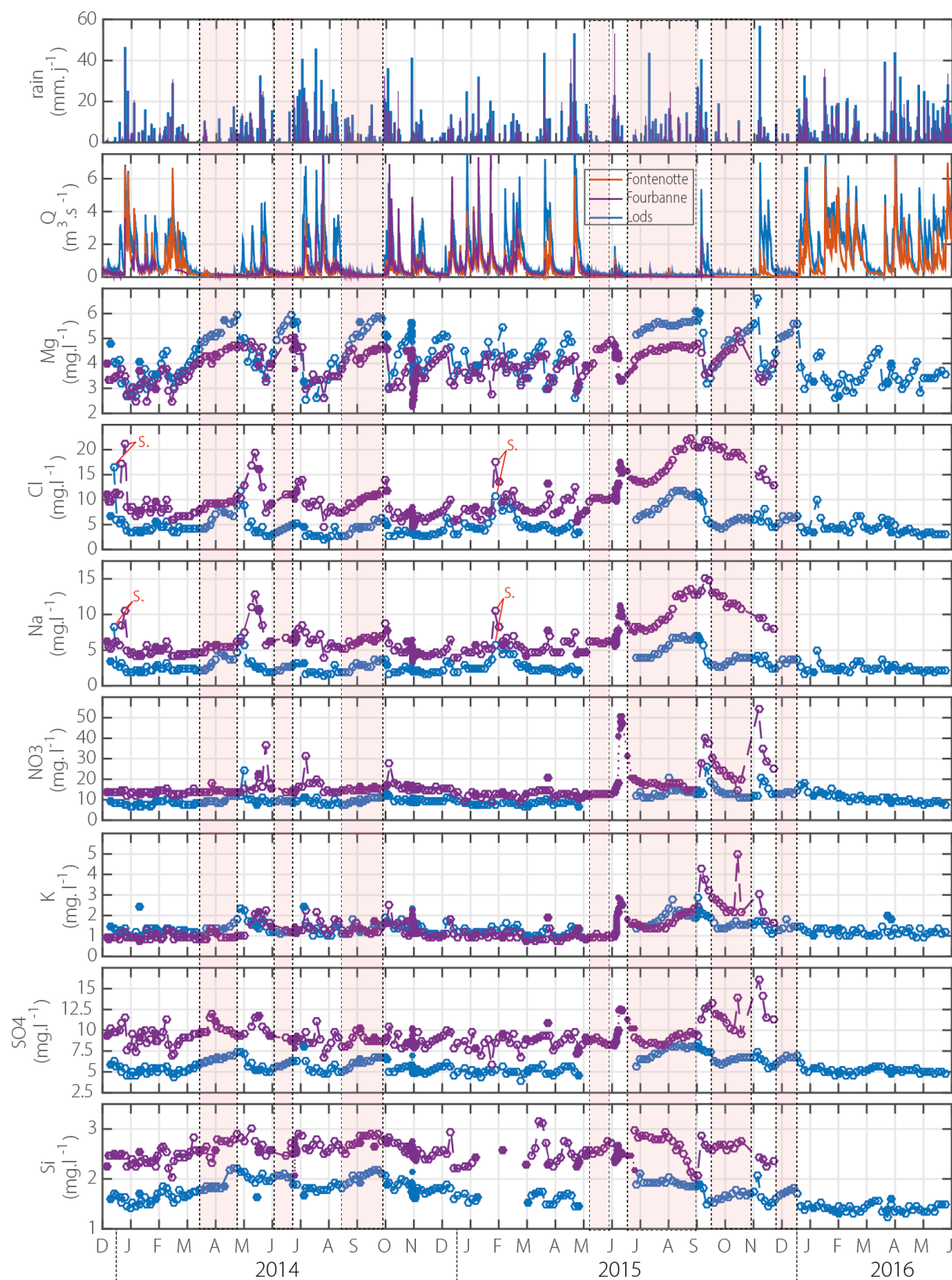


gine allochtone des eaux issues des sous-bassins marneux, et sera abordée dans le chapitre suivant.



**FIGURE III.21** – Relation entre les concentrations de K et Rb sur les différents systèmes étudiés

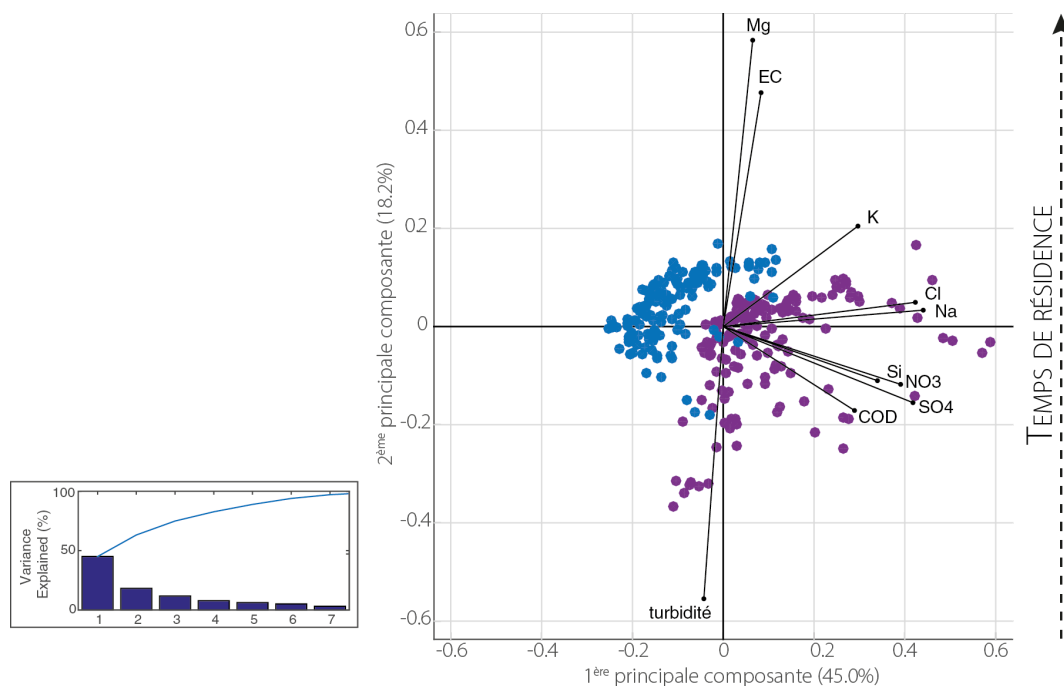
L'analyse des chroniques des prélèvements automatiques réalisés sur les sources de Fourbanne et du Grand Bief permettent d'étudier les dynamiques à l'échelle saisonnière et d'un cycle hydrologique. Vu la forte réactivité des aquifères karstiques, le pas de temps de 4 jours ne permet pas d'interpréter précisément l'évolution hydrochimique au cours des crues (qui fera l'objet du chapitre suivant) mais indique cependant les grandes variations saisonnières et semble un bon outil pour distinguer la signature hydrochimique des hautes et basses eaux. La figure III.22 compare les variations des différents éléments analysés et validés (sans les concentrations en Ca et  $\text{HCO}_3$ ) (cf. Chapitre II) et les précipitations et débits mesurés dans le temps. Les précipitations de la station de Branne et d'Epenoy montrent des dynamiques similaires, bien que les précipitations soient relativement plus importantes à Epenoy (figure II.30). Enfin, les débits moyens mesurés sur cette période sont de  $0.4 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  à la source de Fourbanne,  $0.5 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  dans la rivière souterraine de Fontenotte et de  $1.1 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  à la source du Grand Bief.



**FIGURE III.22** – Évolution hydrochimiques des sources de Fourbanne et du Grand Bief à partir des analyses réalisées sur les prélèvements automatiques (cercles vides) et les prélèvements manuels et de crues (cercles pleins). Les bandes roses indiquent les périodes d’été.

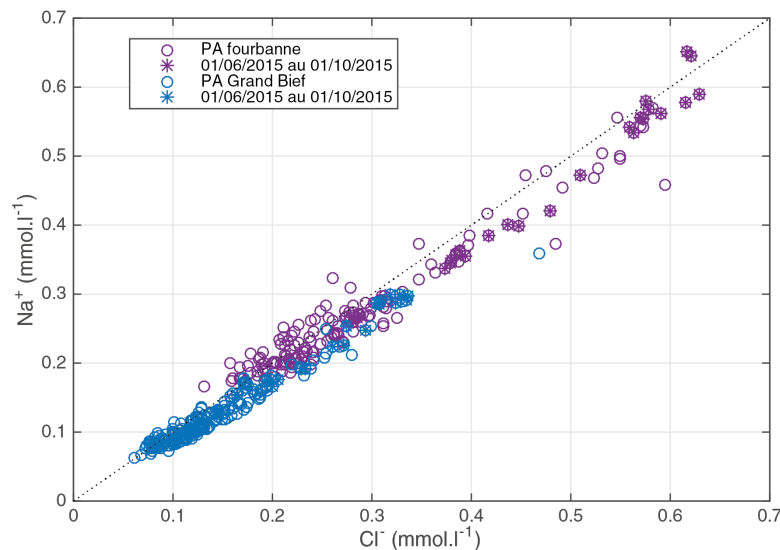
Dans un premier temps, ces chroniques mettent en avant les grandes caractéristiques de ces deux systèmes karstiques en partie observées précédemment. On dénote clairement une plus grande variabilité hydrochimique à la source de Fourbanne pour tous les éléments liés à des apports anthropiques ou géogènes. Seules les teneurs en magnésium montrent des amplitudes plus importantes à la source du Grand Bief avec des teneurs maximales supérieures à  $6 \text{ mg.L}^{-1}$  quand elles sont autour de  $5 \text{ mg.L}^{-1}$  à Fourbanne. Ainsi, bien que le bruit de fond en Mg soit similaire aux deux sources, les contributions matricielles en période de basses eaux sont plus importantes au Grand Bief.

D'autre part, on distingue nettement les bruits de fond hydrochimiques des deux systèmes. La source de Fourbanne présente un bruit de fond plus élevée en Cl, Na,  $\text{NO}_3$ ,  $\text{SO}_4$  et Si, alors qu'il est relativement similaire à la source du Grand Bief pour le K et le Mg. Ces grandes caractéristiques se dégagent dans la figure III.23. La première composante expliquant 45% de la variance met en avant une signature marquée par les apports de type anthropique à Fourbanne ( $\text{NO}_3$ ,  $\text{SO}_4$  et Cl) mais également géogènes ( $\text{SO}_4$ ). La deuxième composante expliquant 18% oppose la turbidité et la conductivité électrique et indique d'un part un temps de résidence plus long à la source du Grand Bief avec une recharge plus diffuse et une signature matricielle plus nette ; d'autre part un temps de résidence plus court à la source de Fourbanne impactée par la recharge allochtone et les apports particulière.



**FIGURE III.23** – Analyse en composante principale sur les analyses des prélèvements automatiques aux sources de Fourbanne (violet) et du Grand Bief (bleu) avec les suivis de la conductivité électrique (EC) et la turbidité.

Les périodes de basses eaux, soulignées en rose sur la figure III.22, sont caractérisées par de faibles précipitations et de bas débits, essentiellement localisés sur la période estivale et qui se distinguent par de nettes augmentations en Mg sur les deux systèmes. Ces périodes sont entrecoupées de quelques crues intenses qui vont induire un relargage importante en Na, Cl,  $\text{NO}_3$ , K et  $\text{SO}_4$  avec des amplitudes relativement importantes à la source de Fourbanne.



**FIGURE III.24** – Na en fonction Cl à partir des prélèvements automatiques aux sources de Fourbanne et du Grand Bief et lien avec la période d’été de juin à octobre 2015.

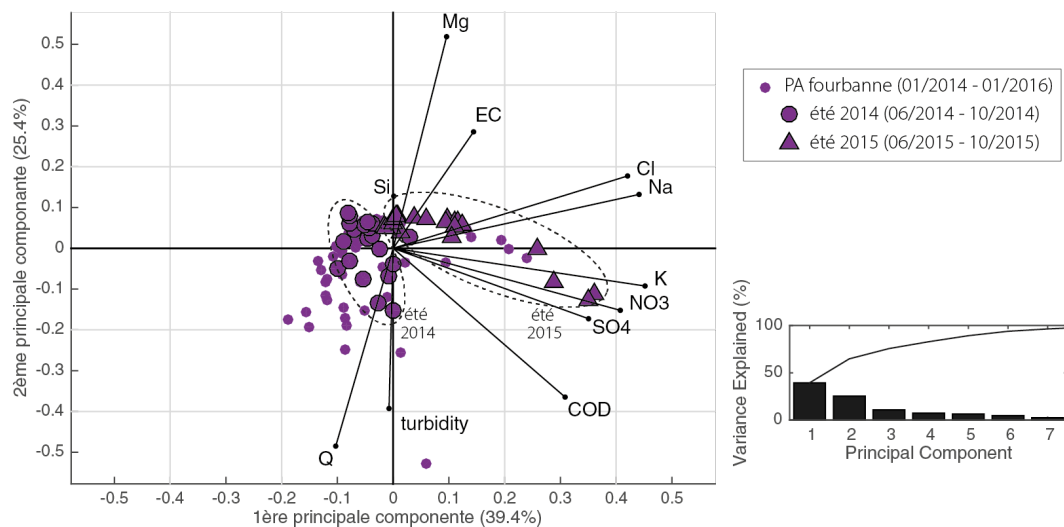
Les teneurs en Na/Cl présentent sur les deux sites une relation stœchiométrique nette (figure III.24) et semblent se distinguer en trois groupes sur la figure III.22 :

1. Un relargage au cours de crues hivernales, où l’on dénote des arrivées très localisées de Na et Cl. Ces arrivées ne sont reliées à aucun autre élément majeur et s’observe aux deux sources. Elles correspondent aux périodes d’enneigement des deux bassins et sont attribuées au salage des routes.
2. Un relargage en période estivale, avec des arrivées relativement localisées et plus concentrées à la source de Fourbanne et à moindre mesure à la source du Grand Bief. Ces arrivées sont concomitantes des arrivées en  $\text{NO}_3$ ,  $\text{SO}_4$  et K sur de Fourbanne et  $\text{NO}_3$  et K au Grand Bief. Elles suggèrent donc un apport d’origine agricole, en lien avec les pratiques agricoles décrites précédemment qui consiste en l’ajout de sel au moment de la fauche.
3. Des arrivées plus lentes et diffuses qui se distinguent clairement en période d’été et avec des concentrations importantes au cours de l’été 2015 à la source de Fourbanne. Dans un premier temps, un facteur de concentration moyen lié à l’évapotranspiration est calculé dans le but d’évaluer le signal de la recharge (Huneau, 2000; Bertrand, 2009). Il est estimé à partir de la teneur médiane en chlorures (0.8 mg/l) mesurées dans les pluies du massif du jura par Atteia (1992) et à partir des précipitations totales et efficaces mensuelles mesurées entre juin et octobre 2015. Ainsi, il permet d’apprécier les effets de concentration des chlorures dans le sol par l’évapotranspiration. Il est estimé à 1.5 sur le système de Fourbanne, et à 2.5 pour le système du Grand Bief. Ces facteurs sont donc faibles et ne permettent pas d’expliquer l’origine de ces concentrations importantes des chlorures par la recharge et les effets de l’évapotranspiration et indiquent donc d’autres origines. Elles pourraient alors s’expliquer par des apports géogènes ou anthropiques et se distingueraient ici en raison des conditions d’été et des débits extrêmement faibles. La période de juin à octobre 2015 montre des teneurs plus élevées à la source de Fourbanne. On remarque qu’une crue de septembre a pour conséquence une baisse immédiate des teneurs à la source du Grand Bief quand la diminution est beaucoup plus lente à Fourbanne. Deux

hypothèses permettent d'expliquer ce phénomène, avec d'une part les plus faibles précipitations tombées sur le système de Fourbanne, et d'autre part des arrivées simultanées de Na/Cl d'origine agricole du deuxième groupe décrits précédemment.

A la source de Fourbanne, les arrivées diffuses de NaCl semblent liées au bruit de fond élevé identifié à la fois à Fontenotte et à Fourbanne et qui s'expliquerait soit par les apports internes géogènes du niveaux évaporitiques du Trias (Charmoille, 2005) soit par un apport diffus anthropique sur le réseau d'En-Versennes. L'analyse détaillée des suivis de crue donne des éléments de réponse supplémentaire (cf. Chapitre IV). A la source du Grand Bief, ces teneurs observées à l'étiage sont nettement plus faibles et sont corrélées avec  $\text{SO}_4$ . De nombreuses hypothèses pourraient expliquer ces teneurs. Elles pourraient être d'origine anthropique ou encore géogène en lien avec les couches marneuses du purbeckien décrites comme saumâtres et gypsifères.

Si l'on retourne à une analyse de ces prélèvements sur une échelle plus large, il est intéressant de noter que nous avons la possibilité de comparer deux années caractérisées par des conditions hydrologiques contrastées. Comme décrit précédemment, l'année 2014 présente un cumul des précipitations annuelles moyen de 1170 mm à Besançon. On dénote des périodes de crues assez régulières sans périodes d'étiage importante (le plus important étant au cours des mois de mars, avril et mai). En revanche, l'année 2015 est une année plutôt sèche avec un cumul de précipitations annuels de 960 mm à Besançon, et est caractérisée par une longue période d'étiage particulièrement sèche entre les mois de mai et novembre. Il semble donc intéressant de comparer ces deux étés contrastés.

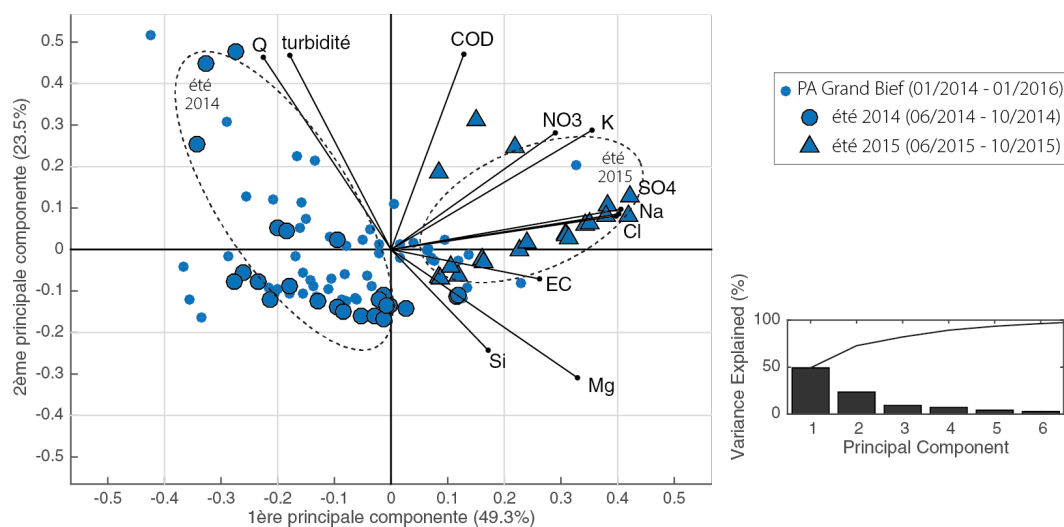


**FIGURE III.25** – Analyse en composante principale des analyses en éléments majeurs sur les prélèvements automatiques à la source de Fourbanne en relation avec les débits, la conductivité électrique, le COD\* et la turbidité.

La figure III.25 présente une analyse en composante principale sur l'ensemble de la chronique en intégrant les valeurs de débit, de conductivité électrique, de turbidité, du COD\*. L'axe de la 1ère composante avec 39% de la variance caractérise une signature hydrochimique suggérant des apports anthropiques quand l'axe de la 2ème composante expliquant 25% de la variance distingue des temps de séjours longs (Mg et EC) des temps plus courts liés à des événements de crues (forts débits et turbidité). On distingue les individus issus de l'été 2014 (du 01/06/2014 au

01/10/2014) et ceux de l'été 2015 (du 01/06/2015 au 01/10/2015). Les individus de l'été 2014 semblent essentiellement marqués par des temps de séjours courts en raison de crues régulières. En revanche, les individus de l'été 2015 indiquent une signature qui semble anthropique avec, en lien avec la deuxième composante, des éléments suggérant des apports anthropiques avec d'une part des temps de séjours courts ( $\text{NO}_3$ ,  $\text{SO}_4$ , K) et des temps de séjours plus longs (Na et Cl), ou du moins d'origines distinctes.

La même analyse est réalisée à la source du Grand Bief (figure III.26). Les prélèvements de l'été 2014 semblent également marqués par des eaux récentes en lien avec des événements de crues quand ceux de l'été 2015 présentent une signature marquée d'une part avec le COD\*,  $\text{NO}_3$  et K et d'autre part avec Cl, Na et  $\text{SO}_4$ . Ces derniers éléments sont en revanche corrélés sur la première composante avec Mg, décrivant des temps de séjour long.



**FIGURE III.26** – Analyse en composante principale des analyses en éléments majeurs sur les prélèvements automatiques à la source du Grand Bief en relation avec les débits, la conductivité électrique, le COD\* et la turbidité.

## 5. Discussion

L'analyse de ces suivis à la fois physico-chimiques et hydrochimiques sur l'échelle d'un cycle hydrologique permet de mettre en évidence les grandes caractéristiques de chaque site :

- **Le système de Fourbanne** est fortement influencé par la recharge allochtone induite par les sous-bassins marneux représentant près de 1/4 de sa zone de recharge. On note de fortes variations physico-chimiques sur les trois stations de mesures installées le long du réseau d'En-Versennes, décrivant respectivement la perte principale, la zone non-saturée et l'exutoire dans la zone saturée. Les fréquences de distribution de la conductivité, température, turbidité et COD sont très dispersées, on remarque cependant une dispersion légèrement plus faible à l'exutoire suggérant un effet tampon lié à la zone saturée. La dynamique des réponses aux précipitations à partir des corrélogrammes croisés indique une décroissance des  $r(k)$  le long du réseau et une amplification des décalages pour l'ensemble des paramètres, illustrant la propagation de l'onde de crue dans le réseau et son effet sur le transport dissous et particulaire. L'analyse de ces corrélogrammes révèle un système relativement peu inertiel en comparaison d'autres bassins de même dimension.

On observe des signatures hydrochimiques bien distinctes à la perte de Verne avec notamment des teneurs élevées en  $\text{SO}_4$  et à Fontenotte et Fourbanne des teneurs plus élevée en  $\text{HCO}_3$  et Ca induites par la matrice calcaire ainsi que des teneurs en Na et Cl à Fontenotte et Fourbanne en étiage qui indiquent soit une origine interne (Trias) soit anthropique à mettre en relation avec les rejets domestiques mesuré la perte de Noye et/ou à des apports agricoles.

- **Le système du Dahon** est un petit système caractérisé par une faible épaisseur de sol mais aussi de l'aquifère. On dénote une forte et rapide réactivité aux précipitations avec cependant une inertie notable des températures indiquant un degré de karstification relativement faible.
- **Le système du Grand Bief** est un système qui semble marqué par une recharge diffuse dominante. Il est marqué par des eaux avec un temps de résidence long comparativement aux autres systèmes. En période d'étiage, on observe une légère augmentation des teneurs en  $\text{SO}_4$ , Na et Cl qui suggère des contaminations anthropiques diffuses sur le bassin.
- **Le système de la source du Doubs** est caractérisé par une faible minéralisation de l'eau présentent donc de faibles concentrations en éléments majeurs. Les  $\text{HCO}_3$ , Ca et Mg indiquent un faible taux de dissolution lié essentiellement aux faibles températures de zone de recharge et à l'activité microbiologiques réduit du sol (Blavoux et al., 1979; Calmels et al., 2014). Il semble peu impacté par des apports anthropiques de type agricoles ou domestiques.

L'évolution hydrochimique mesurée aux sources de Fourbanne et du Grand Bief au cours des années 2014 et 2015 donne la possibilité de comparer deux années au fonctionnement hydrologique bien distinct. On remarque des différences notables entre l'été 2014 marqué par quelques périodes d'étiages entrecoupées d'événements de crues conséquents qui rechargent les aquifères, à la différence de l'été 2015 marqué par une longue période d'étiage avec des débits extrêmement faibles et donc de très faibles réserves dans les aquifères étudiés.

Cette période d'étiage de l'été 2015 met en avant des apports anthropiques ou géogènes non identifiables sur le reste de la chronique étudiée avec notamment des concentrations importantes en Na et Cl. De plus, la réactivité aux événements de crues précédés de périodes d'étiage extrêmes de ces systèmes karstiques indiquent un relargage important de  $\text{NO}_3$ ,  $\text{SO}_4$  et K avec respectivement des teneurs maximales mesurées de  $54 \text{ mg.L}^{-1}$ ,  $16 \text{ mg.L}^{-1}$  et  $5 \text{ mg.L}^{-1}$  à la source de Fourbanne. Ces apports en début de hautes eaux suggèrent un apport agricole accumulé dans les zones superficielles des systèmes karstiques et qui sont ensuite mobilisés au cours d'événements pluvieux intenses (Huebsch et al., 2014). Les teneurs élevées en  $\text{SO}_4$  suggèrent le rôle important des infiltrations localisées dans la mobilisation de ces apports anthropiques.

De par la nature et l'hétérogénéité de ces aquifères, cette ressource est vulnérable. Ces résultats montrent, qu'elle est d'autant plus vulnérable face à des conditions hydrologiques extrêmes tels que de fortes périodes d'étiage. Ces longs étiages risquent d'être plus fréquents à l'avenir (GIEC, 2014; Vermot-Desroches, 2015; Caballero et al., 2016) et donc amplifier en plus de l'impact sur les volumes dans les réservoirs aquifères, la dégradation de la qualité de la ressource en eau. Cette dégradation pose donc la question de l'impact sanitaire (bactéries, micropolluants) ainsi que l'impact sur la biodiversité que peut avoir à plus long terme l'évolution climatique.

Ces suivis donnent un premier aperçu des comportements variés des systèmes étudiés. Afin de caractériser les évolutions physico-chimiques et hydrochimiques à une échelle plus fine et de mieux comprendre les dynamiques au cours des crues, le chapitre 2 tente de faire le lien entre ces résultats et une analyse plus fine à l'échelle de la crue, et d'apporter des éléments de réponse supplémentaires lors des épisodes de recharge.



---

## A l'échelle de la crue

### Résumé

Suite aux résultats précédents caractérisant le fonctionnement des systèmes à l'échelle saisonnière, ce chapitre s'intéresse aux dynamiques de crues avec une analyse plus fine de la réponse hydrodynamique et hydrochimique. Des mécanismes différents sont identifiés entre une crue d'automne marquée des précipitations intenses et deux crues qui font suite à des étiages importants à partir d'analyses corrélatoires, de suivis hydrochimiques détaillés. De plus, l'utilisation du modèle de mélange EMMA permet ensuite d'identifier des pôles de mélanges caractéristiques sur deux systèmes présentant des tailles de bassins et des processus de recharge distincts. Ainsi l'ensemble de ces différents outils donnent plusieurs de points de discussion intéressants pour mieux déchiffrer et comprendre les processus de recharge.

### Structure

1. Cadre hydrologique des crues étudiées . . . . .	78
2. Analyse d'une crue d'automne . . . . .	78
2.1. Dynamiques physico-chimiques . . . . .	78
2.2. Dynamiques hydrochimiques . . . . .	83
2.3. Modélisation des mélanges sur le système du Dahon . . . . .	85
3. Analyse de crues au cours d'étiages . . . . .	89
3.1. Dynamiques physico-chimiques et hydrochimiques . . . . .	89
3.2. Modélisation des mélanges sur le système de Fourbanne . . . . .	93
4. Discussion . . . . .	101

## 1. Cadre hydrologique des crues étudiées

Nous avons pu observer dans le chapitre précédent, des dynamiques de recharge distinctes des différents systèmes karstique en lien avec l'infiltration diffuse et/ou localisée ainsi que le rôle des zones non-saturée et saturée. De plus, plusieurs signatures hydrochimiques marquées sont apparues et montrent notamment l'impact de périodes d'étiage pour l'identification de contaminations. Ces signatures permettent de distinguer des contributions particulières en lien avec des apports géogènes ou anthropiques induites par des infiltrations localisées ou diffuses.

Au vu de ces observations et dans le but d'identifier différents mécanismes de recharge, deux types de crue sont ciblées et analysées dans ce chapitre :

- crue automnale avec des précipitations intenses et rapides précédées d'une dizaine de jours sans aucune précipitation avec la crue du 4 novembre 2014)
- crue estivale précédée d'un étiage sévère avec les crues du 28 juin 2014 et du 14 juin 2015)

## 2. Analyse d'une crue d'automne

### 2.1. Dynamiques physico-chimiques

#### 2.1.1. Variabilité physico-chimiques

La crue du 4 novembre 2014 est générée un total de précipitations de respectivement, 36 mm, 47 mm et 54 mm à la station de Branne, Epenoy et la Boissau-de-Rochejean distribuées sur 24 heures caractérisant un événement de précipitations relativement intense pour la région du Massif du Jura. Elle est précédée de 10 jours sans aucune précipitation sur l'ensemble des systèmes étudiés et définissant ainsi les systèmes comme étant dans des conditions hydrologiques non influencées par les événements de crues antérieures. Les variations physico-chimiques des différents systèmes étudiés sont illustrées dans la figure IV.1.

La distribution des précipitations est homogène sur les différents systèmes et génère des débits maximums supérieurs à  $4 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  aux sources de Fourbanne, du Grand Bief et du Doubs et près de 100 L/s pour la source du Dahon. L'amplitude des variations des paramètres physico-chimiques est extrêmement forte sur le système de Fourbanne avec un écart de conductivité électrique supérieur à  $200 \mu\text{S} \cdot \text{cm}^{-1}$  lié à un effet de dilution très marqué de la recharge allochtone du bassin. A l'inverse des systèmes du Dahon et du Grand Bief qui montrent une amplitude de variation de l'ordre de  $50 \mu\text{S} \cdot \text{cm}^{-1}$  avec une première arrivée minéralisée suivi d'un effet de dilution des eaux de l'événement. On observe un retour à l'état initial relativement lent à la source du Grand Bief suggérant un effet lié aux pertes du ruisseau d'Athose qui s'évacue progressivement. La source du Doubs, elle, indique un retour à l'état initial rapide et semble réagir de manière relativement brève aux précipitations malgré la taille de son bassin d'alimentation.

L'augmentation des températures en lien avec l'augmentation du COD semble indiquer l'arrivée des eaux récentes et superficielles. La rivière souterraine de Fontenotte indique plusieurs variations des températures qui pourraient être en lien avec les différentes arrivées successives dans le réseau d'En-Versennes à la fois de l'infiltration localisée mais également d'arrivée d'eaux matrielles.

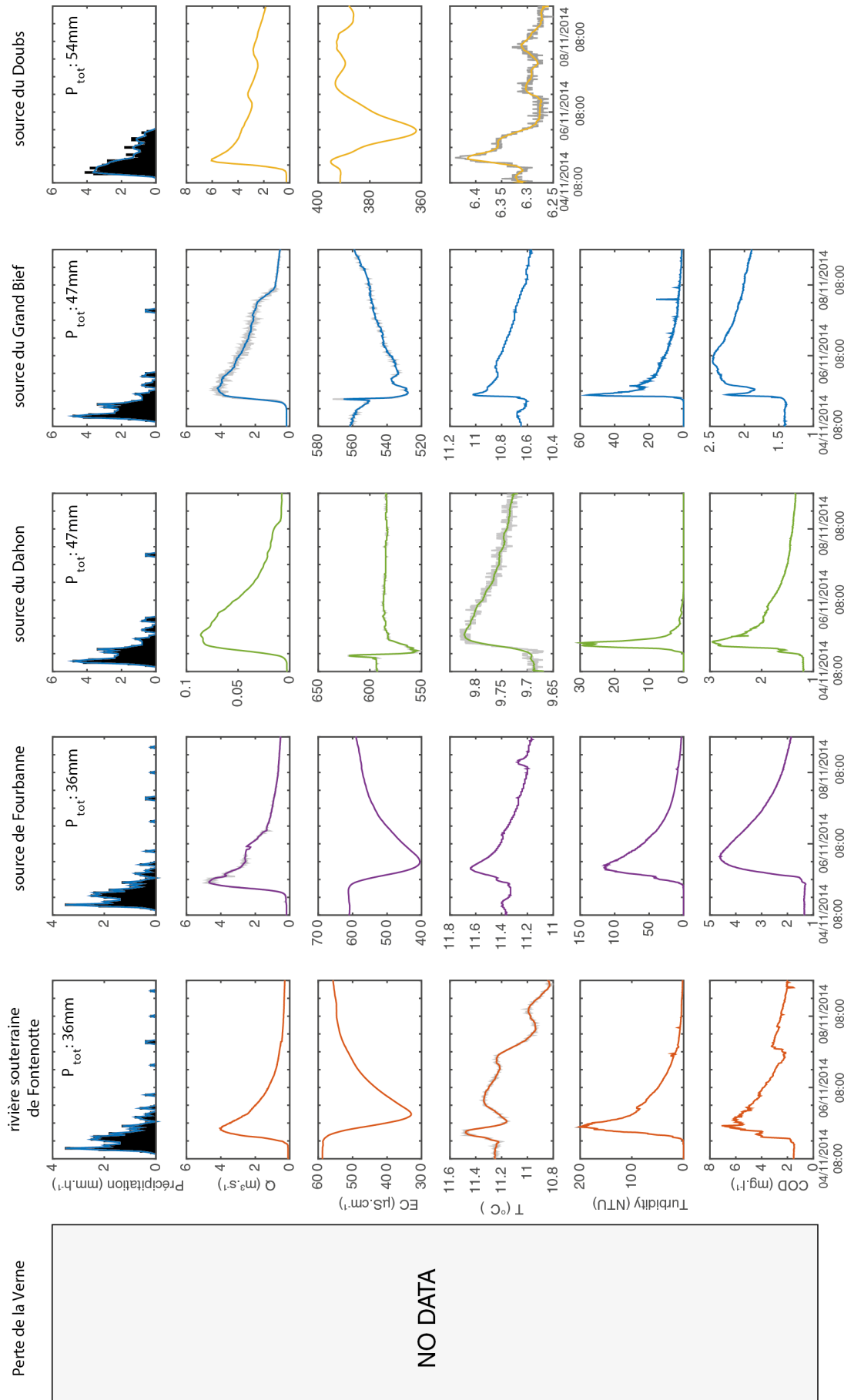


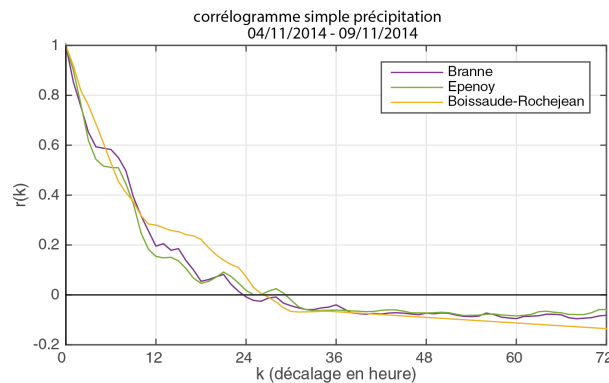
FIGURE IV.1 – Suivi physico-chimique des différentes stations de mesures du 4 au 9 novembre 2014

Les mesures de turbidité dans le système de Fourbanne sont élevées et simultanées aux concentrations élevées de COD, suggérant donc des apports particuliers d'origines superficielles. On remarque cependant que l'arrivée de la turbidité à Fontenotte est également simultanée au débit, ce qui n'exclut pas qu'une partie de la turbidité mesurée puisse donc provenir de phénomènes de remobilisation interne dans le réseau karstique et induit par l'augmentation des vitesses d'écoulements. A la source de Fourbanne, ce pic est légèrement plus tardif que le débit, en raison de la propagation instantanée de l'onde de crue dans le conduit de la zone saturée.

A la source du Grand Bief, l'arrivée est nette avec une décroissance plus lente, on distingue cependant que l'évolution du COD n'est pas similaire. Celle-ci semble indiquer deux arrivées distinctes avec une première arrivée brève synchronisée avec la turbidité et un pic positif de conductivité électrique ; et une deuxième plus concentrée et beaucoup plus diffusive. La première apparaît alors comme une remobilisation interne de particules et d'eaux minéralisées du système karstique et encore marquée par de la matière organique infiltrée antérieurement. En revanche, la deuxième arrivée indique, par les plus teneurs élevées en COD, des infiltrations superficielles. Elles suggèrent des apports diffus du bassin en lien avec l'effet retard important mesuré et cohérent avec d'autres études (Pronk et al., 2006; Charlier et al., 2012). Elles peuvent également être associées en partie par les petites pertes du ruisseau d'Athose qui drainent une zone macérageuse en hautes eaux et qui se viderait progressivement pendant la décrue.

### 2.1.2. Analyse corrélatoire

Afin de comparer plus facilement l'évolution physico-chimique au cours de la crue de novembre 2014 entre les différents systèmes étudiés, des corrélogrammes croisés sont réalisés pour chacun de ces paramètres en relation avec les précipitations sur une période de 4 jours (figure IV.3). Bien que cette variable d'entrée soit relativement auto-corrélée sur les premières 24 heures (figure IV.2), cette analyse donne la possibilité de mettre en relation les réponses aux précipitations entre les différents systèmes caractérisés par des amplitudes de crues différentes. Les valeurs de corrélation pour les différents systèmes et paramètres montrent des valeurs relativement élevées et marquées, au cours de cette crue et sont résumées dans le tableau IV.1.

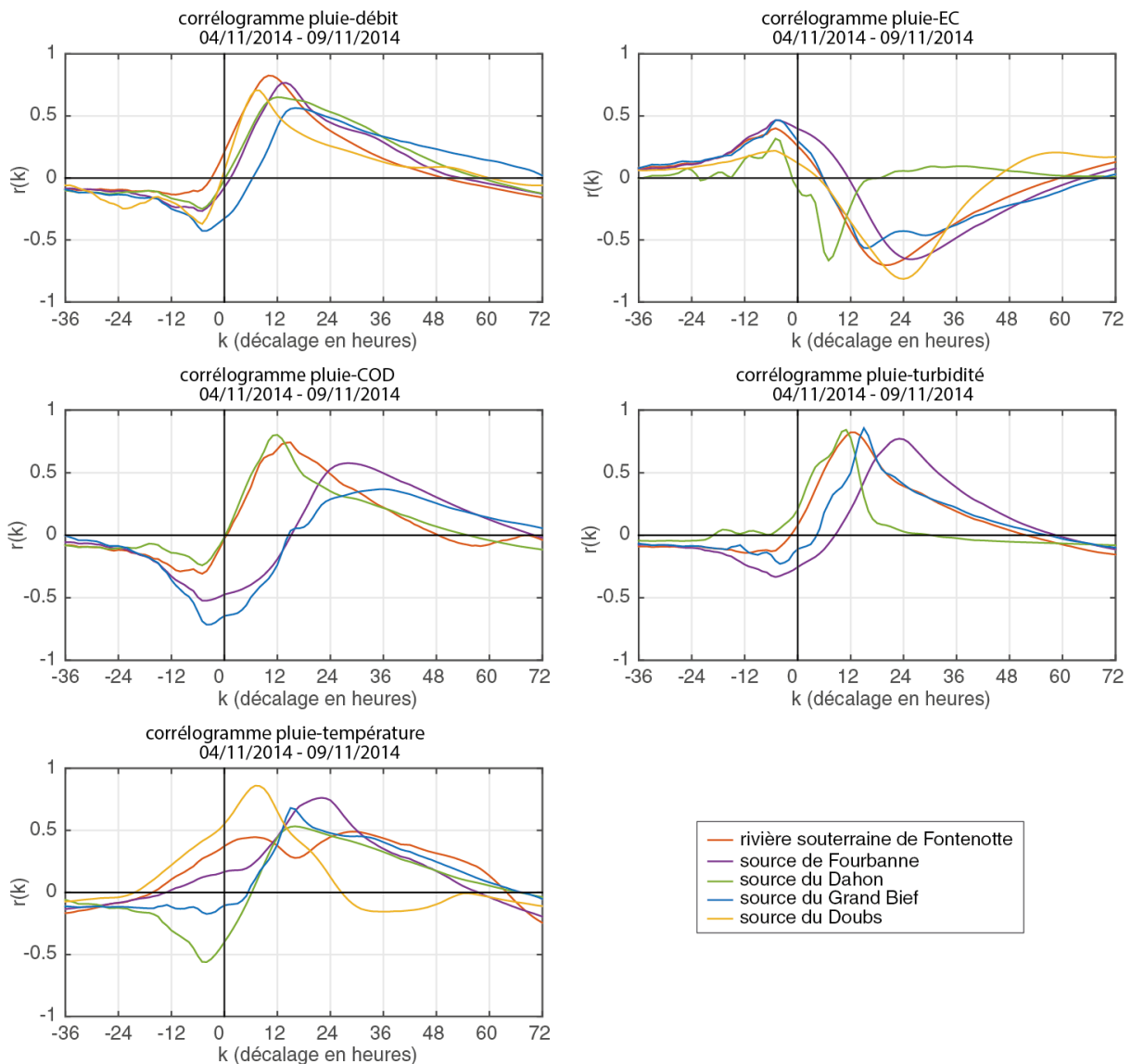


**FIGURE IV.2** – Corrélogrammes simples des précipitations sur la période du 04/11/2014 08 :00 au 09/11/2014 08 :00 au pas de temps horaire pour les stations MétéoFrance de Branne, Epenoy et la Boissau-de-Rochejean.

- Les décalages des **débits** sur les précipitations caractérisant l'arrivée de l'onde de crue sont relativement proche pour l'ensemble des systèmes (entre 7 et 16 heures) et indique des processus hydrodynamiques rapides dans l'ensemble de ces systèmes. La source du Doubs réagit le plus vite malgré le fait qu'elle ait le bassin d'alimentation le plus grand, avec un

décalage de 7 heures. Ce phénomène pourrait s'expliquer par la structure de l'aquifère mais également par la présence d'une zone saturée importante et qui ferait réagir la source plus rapidement lors de la mise en charge du système. La décroissance relativement rapide du système indiquerait alors la bonne connectivité des structures et qui présentent un degré de karstification important. En revanche, le décalage plus important et la décroissance plus lente de la fonction de corrélation à la source du Grand Bief indiquerait une réaction plus lente à la mise en charge. Elle suggère un effet plus important de la zone non-saturée avec des écoulements plus lents dans une structure karstique moins bien connectée.

- Les corrélations négatives sur la **conductivité électrique** dénotent un effet de dilution nette pour l'ensemble de ces systèmes au cours de cette crue. Avec un décalage maximal de 7 heures, le système du Dahon montre un temps de transfert de masse très court avec un retour à l'état initial en 16 heures. Ceci le distingue des autres systèmes qui présentent des zones de recharge plus importantes avec des décalages supérieurs à 44 heures.



**FIGURE IV.3** – Corrélogrammes croisés du suivi physico-chimiques sur la période du 04/11/2014 08 :00 au 09/11/2014 08 :00 au pas de temps horaire.

- Les corrélations du **COD\*** à la source du Dahon et la rivière souterraine de Fontenotte sont plus élevées et avec des décalages courts de respectivement 12 et 15 heures. Ceci reflète les arrivées rapides des eaux superficielles à ces stations qui s'expliquent à la source du Dahon par la faible épaisseur du système karstique et à Fontenotte par les apports des pertes localisées conséquentes de ce sous-système. En revanche, les sources de Fourbanne et du Grand Bief indiquent des décalages plus importants de 28 et 36 heures suggérant le rôle de la zone saturée avec des processus de transport plus lents.
- La **turbidité** montre une dynamique similaire que le COD\* pour la source du Dahon et les deux stations du système de Fourbanne. On note cependant une diminution de la fonction de corrélation plus rapide qui pourrait s'expliquer par un transfert plus rapide de la fraction particulaire, mais également par des phénomènes de dépôts dans le système en lien avec la récession du débit au cours de la crue. En revanche et comme décrit précédemment la source du Grand Bief indique une dynamique différente entre turbidité et COD\* suggérant deux origines distinctes.
- La **température** est plus délicate à interpréter car soumise à différents processus. On note cependant que la rivière souterraine de Fontenotte ne présente pas de corrélation nette indiquant des processus complexes probablement liés à des arrivées distinctes dans la zone non-saturée. Aux sources de Fourbanne et du Grand Bief, la fonction de corrélation des températures est relativement synchrone avec les corrélations négatives observées sur la conductivité suggérant un réchauffement des températures par les arrivées superficielles. A la source du Dahon, la corrélation des températures est beaucoup plus tardive que celle de la conductivité et suggère une propagation plus lente dans le système. Enfin, la source du Doubs montre un réponse différente en comparaison des autres systèmes avec une corrélation positive simultanée à celle du débit suggérant l'arrivée d'eaux pré-événementielles plus chaudes que les arrivées superficielles.

**TABLE IV.1** – Résumé des valeurs de  $k$  et  $r(k)$  des corrélogrammes croisés au pas de temps horaire pour la crue de novembre 2014. Les valeurs de  $k$  retenues correspondent aux corrélations maximales positives pour les débits, températures, COD\* et turbidité et corrélation négatives pour la conductivité électrique.

		P-Q	P-EC	P-COD*	P-turb.	P-temp.
Rivière souterraine de Fontenotte	$k$	10 h	20 h	15 h	12 h	7 h
	$r(k)$	0.83	-0.70	0.74	0.82	0.45
Source de Fourbanne	$k$	14 h	26 h	28 h	23 h	22 h
	$r(k)$	0.77	-0.66	0.58	0.77	0.76
Source du Dahon	$k$	12 h	7 h	12 h	11 h	16 h
	$r(k)$	0.65	-0.66	0.80	0.84	0.53
Source du Grand Bief	$k$	16 h	16 h	36 h	15 h	15 h
	$r(k)$	0.56	-0.57	0.37	0.86	0.68
Source du Doubs	$k$	7 h	24 h	-	-	-
	$r(k)$	0.71	-0.81	-	-	-

## 2.2. Dynamiques hydrochimiques

La crue du 4 novembre 2014 a fait l'objet d'un suivi hydrochimique détaillé pour les sources de Fourbanne, du Dahon et du Grand Bief. La figure IV.4 illustre l'évolution des paramètres physico-chimiques simultanément aux analyses hydrochimiques afin de comparer les dynamiques distinctes des systèmes karstiques étudiés. La taille de ces systèmes étant variables cela induit donc des débits maximums variables avec 85 L/s à la source du Dahon quand on mesure  $4.2 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  et  $4.7 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  au Grand Bief et à Fourbanne. On rappelle que la source du Dahon et du Grand Bief montre une évolution de la conductivité électrique plus proche avec un delta de variation entre 50 et  $70 \mu\text{S} \cdot \text{cm}^{-1}$  quand il est de  $200 \mu\text{S} \cdot \text{cm}^{-1}$  à la source de Fourbanne en raison de l'importante recharge allochtone de ce système.

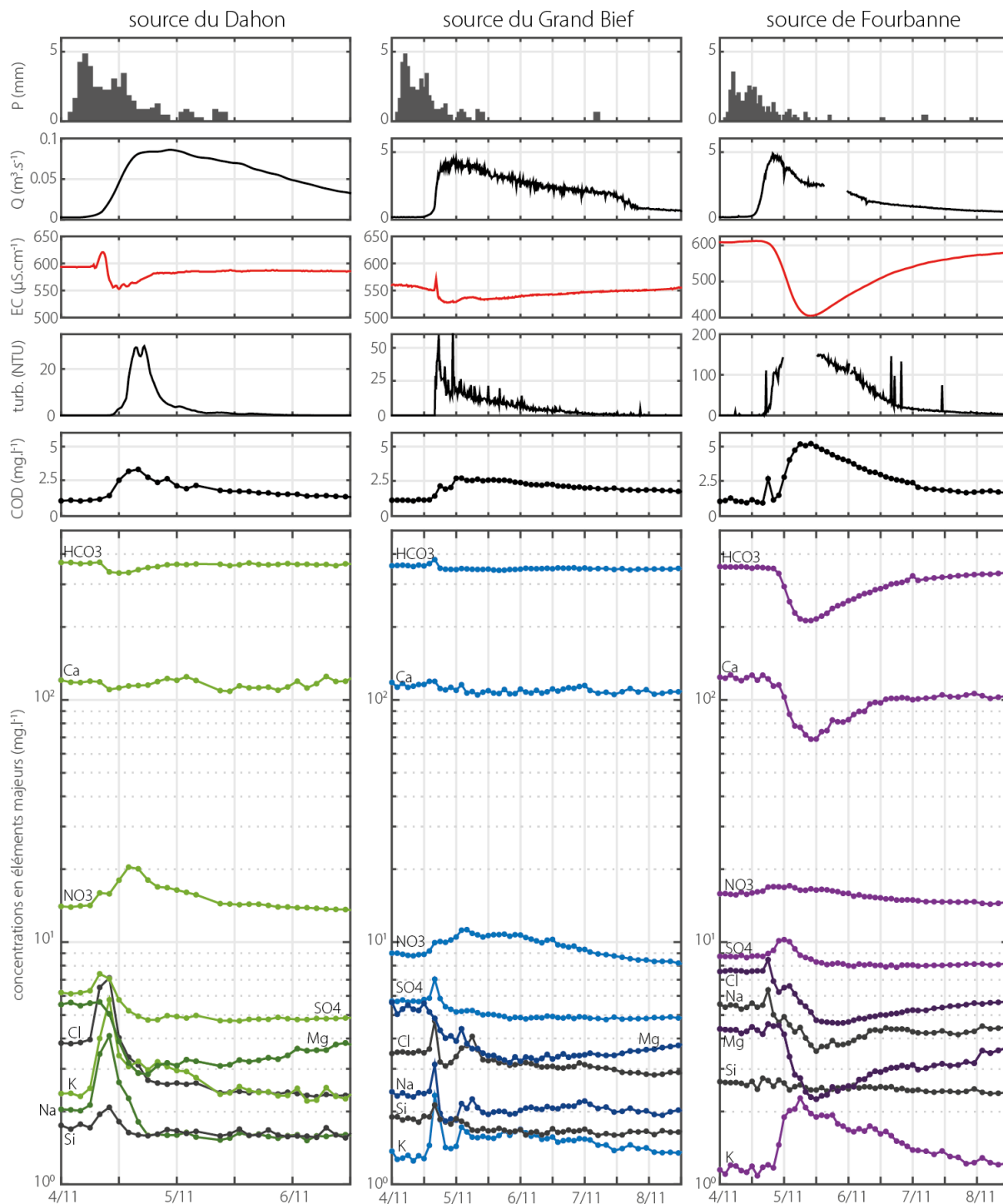
Étant donné que la conductivité électrique des aquifères carbonatées est largement dépendante des concentrations élevées en  $\text{HCO}_3$  et Ca, les faibles variations de conductivité mesurées aux sources du Dahon et du Grand Bief s'expliquent par de faibles contributions d'eaux peu minéralisées. Celles-ci sont en revanche importantes à la source de Fourbanne qui canalise les eaux de ruissellement de ces sous-bassins marneux dans le réseau karstique à travers plusieurs pertes.

- A la **source du Dahon**, les arrivées d'eau plus minéralisées qui apparaissent en montée de crue sont directement en lien avec les augmentations des teneurs en Cl, Na, K, Si,  $\text{SO}_4$  ainsi que  $\text{NO}_3$ . Au vu des concentrations élevées en Mg, elles apparaissent marquées par des eaux déjà présentes dans le système karstique et semblent remobilisées par l'arrivée de la crue et l'augmentation du débit à la source. Les teneurs de l'ensemble diminuent ensuite progressivement sauf  $\text{NO}_3$  qui continue d'augmenter en même temps que l'arrivée du COD et la turbidité.
- A la **source du Grand Bief**, on observe les mêmes genre de dynamique observées à la source du Doubs. On remarque cependant que les arrivées minéralisées qui apparaissent via la conductivité électrique montrent en plus des teneurs de Cl, Na, K, Si et  $\text{SO}_4$ , une augmentation légère de  $\text{HCO}_3$  et Ca tandis que Mg a déjà commencé à diminuer. Cette différence s'explique par la plus grande complexité du fonctionnement de la source du Grand Bief qui se caractérise par une zone de recharge plus hétérogène. On également que contrairement à la source du Dahon, les premières arrivées minéralisées coïncident avec le premier pic de turbidité, ce qui suggère un effet de remobilisation dans le système d'éléments déposés antérieurement.
- A la **source de Fourbanne**, l'évolution hydrochimique montre un fonctionnement différent ou apparaissent de forts effets de dilution pour les teneurs en  $\text{HCO}_3$ , Ca, Mg mais également Na et Cl. A l'inverse, on distingue des arrivées d'eau plus concentrées en  $\text{NO}_3$  et K simultanément au pic de turbidité, ainsi qu'un léger pic de  $\text{SO}_4$  au début des arrivées particulières marquant une partie des apports superficielles du bassin de Verne.

Les teneurs en  $\text{NO}_3$  sont élevées pour les trois systèmes indiquant une forte vulnérabilité aux pratiques agricoles de leur bassin d'alimentation. Huebsch et al. (2014) tente de caractériser différentes réponses des nitrates aux événements de crues pour différents systèmes karstiques. Ils distinguent différents scénarios impliquant des phénomènes de dilution et de mobilisation des nitrates ou encore les deux à la fois. Les trois systèmes étudiés ici indiquent essentiellement des phénomènes de mobilisation. Même le système de Fourbanne qui se dénote par des dilutions importantes dans son réseau fait apparaître majoritairement la mobilisation des nitrates. Cette mobilisation au cours de crue d'automne s'explique par l'augmentation des processus de miné-



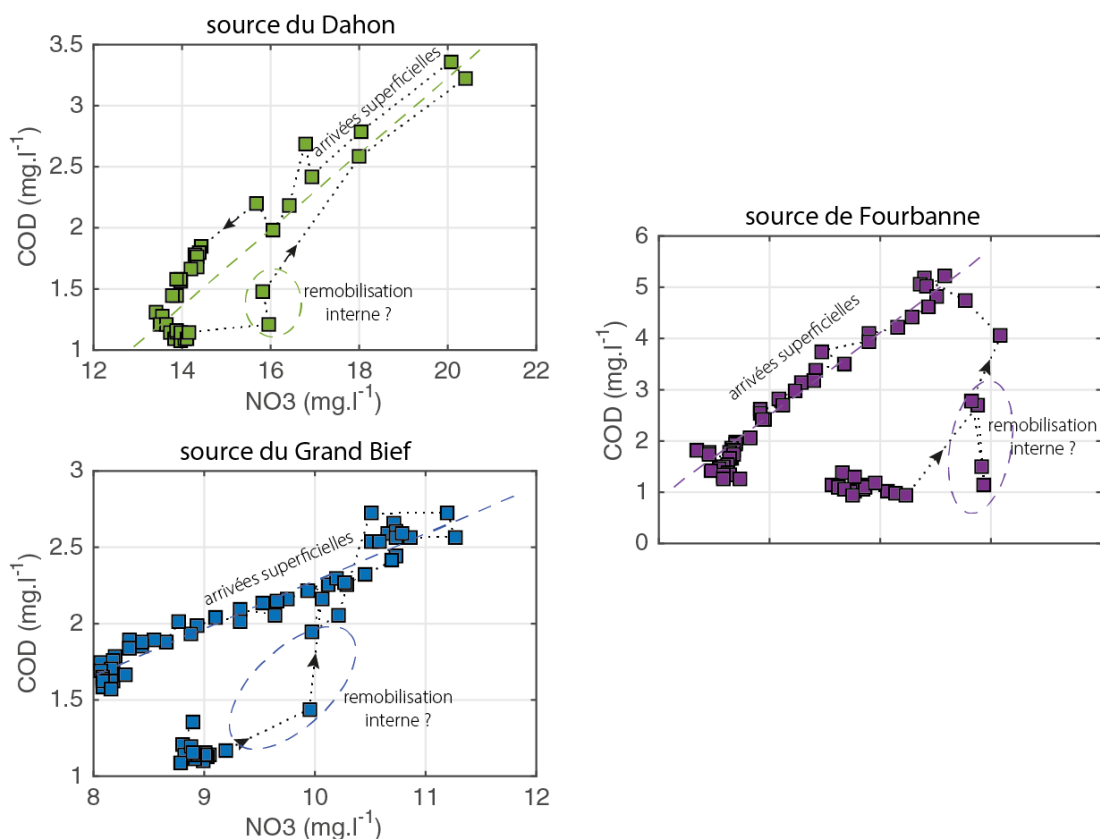
ralisation et de nitrification durant l'été et impliquant donc concentrations plus élevées au cours des crues (Bende-Michl et al., 2013).



**FIGURE IV.4** – Suivi hydrochimique de la crue du 4 novembre 2014 pour les sources du Dahon, du Grand Bief et de Fourbanne

La figure IV.5 montre l'évolution des teneurs en COD en fonction des concentrations de nitrate pour les trois systèmes suivis. Il est intéressant de noter un effet d'hysteresis, en particulier aux sources du Grand Bief et de Fourbanne, reflétant des dynamiques de transport différentes entre le COD et les nitrates. Ces observations montrent dans un premier temps l'arrivée des nitrates

suivis ensuite par le COD et suggèrent une première origine liée à la remobilisation de nitrates déjà présents dans le système et deuxième origine synchronisée avec le COD.

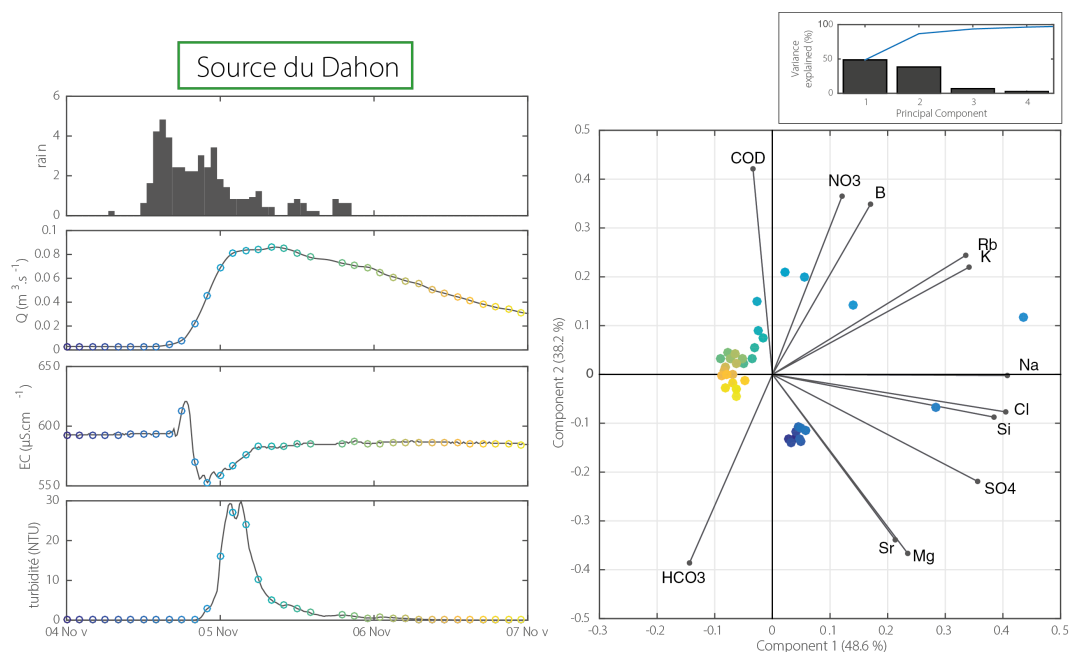


**FIGURE IV.5** – Suivi hydrochimique de la crue du 4 novembre 2014 pour les sources du Dahon, du Grand Bief et de Fourbanne

### 2.3. Modélisation des mélanges sur le système du Dahon

Afin de mieux comprendre le fonctionnement du petit système karstique du Dahon, la méthode EMMA est appliquée sur la crue de novembre 2014. À partir de cette méthode, il est possible d'estimer des proportions de mélanges entre différents apports aux signatures caractéristiques dans le système karstique (cf. Chapitre II) et de valider les hypothèses émises précédemment. Pour cela, nous supposons donc, sur la durée de la crue, un comportement conservatif des éléments modélisés.

L'analyse en composantes principales est réalisée sur les éléments majeurs et quelques éléments traces caractéristiques et identifiés précédemment comme indicateurs d'apports spécifiques (figure IV.6). L'analyse présente deux composantes expliquant 87% de la variance. La première composante (49% de la variance) distingue les individus marqués par la remobilisation interne identifiés précédemment (avec notamment des teneurs élevées en Na et Cl). Lorsque le deuxième axe (38% de la variance) distingue les individus marqués par un temps de séjour long (Mg, HCO<sub>3</sub> et Sr élevés) et ceux marqués par des arrivées d'eau plus récentes (COD, NO<sub>3</sub>).



**FIGURE IV.6** – Analyse en composante principale du suivi de la crue de novembre 2014 à la source du Dahon en relation avec l'évolution des paramètres physico-chimiques.

Ainsi, à partir de ces observations, l'ensemble des prélèvements réalisés à la source du Dahon, incluant des périodes d'étiage et d'autres suivis de crue, et ceux des plaques lysimétriques de Chasnans sont intégrés dans l'espace défini de l'acp.

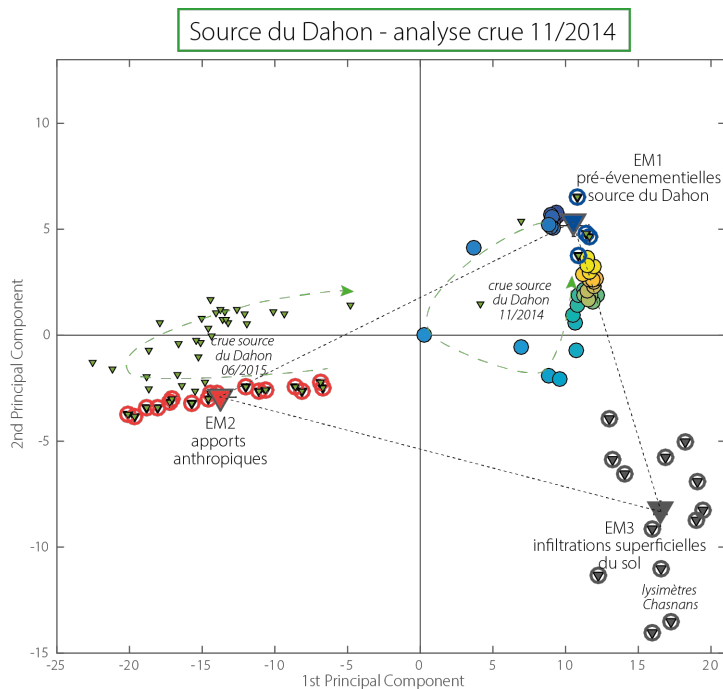
Trois pôles de mélange caractérisant cette crue d'automne sont définis et permettent d'encadrer l'ensemble des individus (figure IV.7 :

**EM1 : signature des eaux pré-événementielles du système du Dahon** à partir des prélèvements à la source en basses eaux et caractérisés par des teneurs élevées en Mg,  $\text{HCO}_3$  et Sr.

**EM2 : signature d'apports anthropiques** à partir des prélèvements de la crue de juin 2015 (détaillée dans la section suivante) marquée par des concentrations élevées en Cl, Na et  $\text{SO}_4$  en lien avec des pratiques agricoles.

**EM3 : signature des eaux d'infiltrations du sol** à partir des mesures lysimétriques récoltées à moins 7 km sur le plateau d'Ornans.

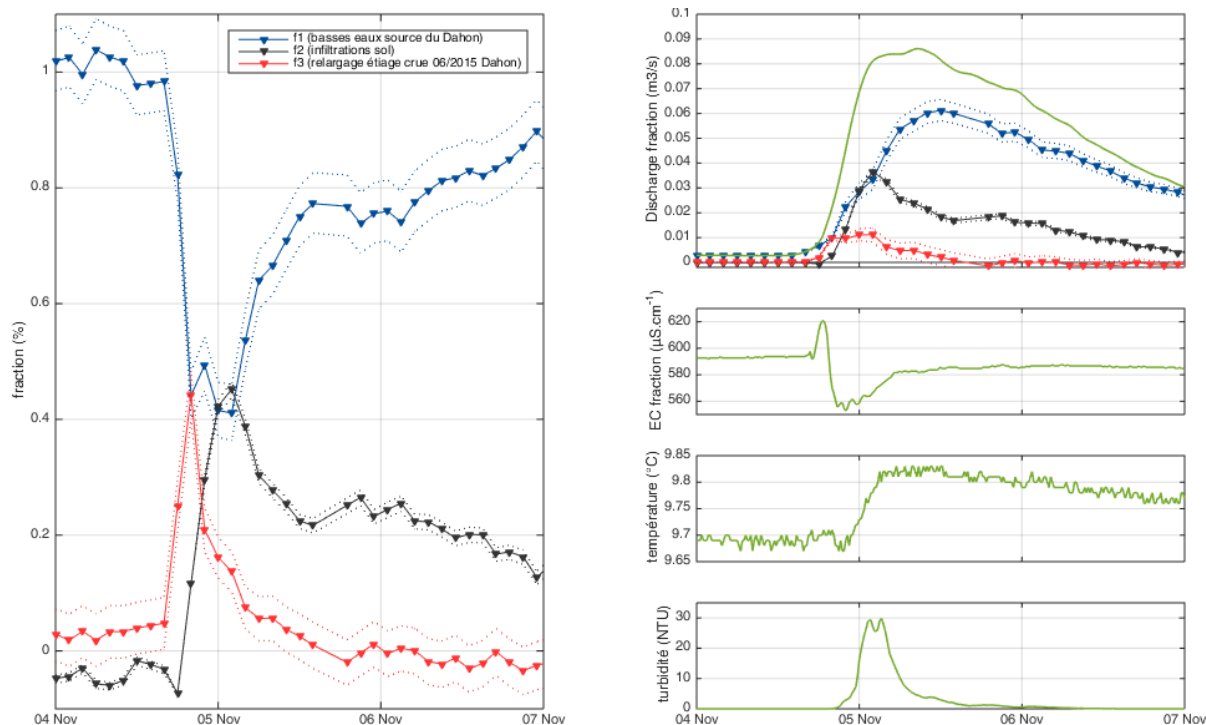
Le modèle de mélange donne alors la possibilité de tracer l'évolution hydrochimique au cours de la crue et d'estimer les contributions de chacun de ces pôles. On dénote qu'une part importante des contributions sont des eaux à long temps de séjour indiquant une part importante des apports matriciels. Cependant l'arrivée des eaux liées à la crue dénote deux arrivées distinctes pouvant représenter chacune jusqu'à 40% des contributions. La première (pôle EM2) est marquée par des apports anthropiques forts et brefs, remobilisée ou reconnectée au système par l'augmentation des débits. Puis, la deuxième (pôle EM3) est marquée par l'infiltration diffuse à travers la couverture pédologique, en lien avec l'augmentation de la température et de la turbidité et caractérisée ensuite par une diminution relativement lente. Finalement, on remarque à la fin des mesures que la contribution de ces deux pôles caractéristiques de la crue est déjà extrêmement faible ce qui démontre que ce petit système karstique revient très vite à son état initial.



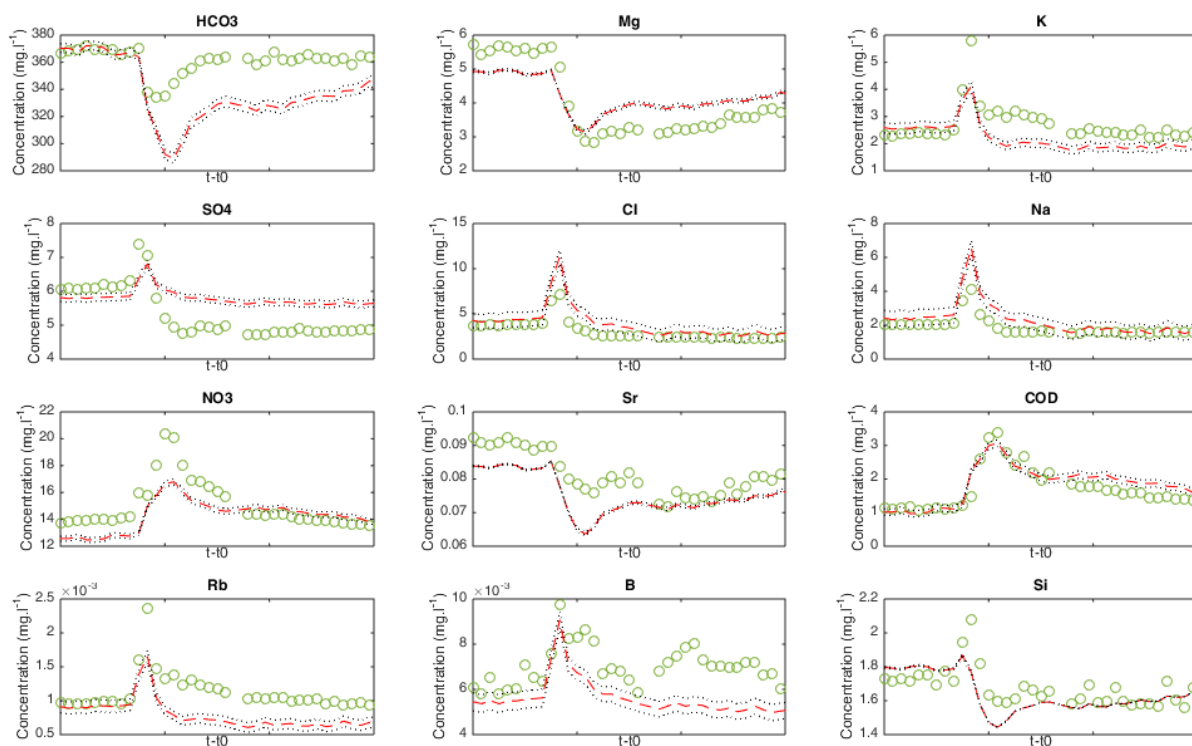
**FIGURE IV.7** – Représentation graphique de l'ACP illustrant l'évolution des individus du suivi de crue de novembre 2014 à la source du Dahon et les trois pôles de mélanges sélectionnés

Le modèle simule relativement bien l'évolution des teneurs d'un grand nombre d'éléments, mais dénote également des écarts de concentrations qui peuvent être relativement importants (figure IV.9). Certains éléments sont sous-estimés par le modèle de mélange en fin de crue ( $\text{HCO}_3$ , B, K et Rb). Les faibles concentrations de  $\text{HCO}_3$  dans le modèle suggèrent une sur-estimation de la dilution induite par les apports du sol (pôle EM3), quand celles de B, K et Rb apparaissent comme un défaut lié aux données des lysimètres qui ne présentent peut-être pas les mêmes pratiques agricoles. C'est également un des explications principales que l'on peut donner pour expliquer la sur-estimation du modèle des teneurs de  $\text{SO}_4$ . Il est également possible que les hypothèses de départ, basées sur un comportement conservatif des éléments au cours de la crue, soient discutables et que certains phénomènes de sorption puissent avoir lieu.

Ce modèle indique donc que ces pôles ne sont pas toujours représentatifs des pratiques agricoles sur le système du Dahon, notamment le pôle EM3 qui utilise les données lysimétriques. Il est également difficile de sélectionner des pôles caractéristiques pour identifier des contributions au cours des crues étant donné que ces pôles ne peuvent évidemment pas être fixes au cours d'une crue, mais évoluent également au cours du temps. Il est cependant très intéressant d'arriver à modéliser l'effet de remobilisation interne exposé précédemment et de l'identifier séparément des contributions du sol plus diffuse. Le système du Dahon de par sa petite taille de bassin semble être un site intéressant pour caractériser des processus de transport qui peuvent avoir lieu à la surface dans d'autres systèmes karstiques plus grands. Ainsi le chapitre (cf. Chapitre V) propose une étude plus détaillée de ce suivi de crue à la source du Dahon dans le but de mieux caractériser les différentes contributions identifiées.



**FIGURE IV.8** – Évolution de la contribution de chacun des pôles au cours de la crue de novembre 2014 dans la source du Dahon avec les incertitudes associées (en pointillées) et en relation avec les paramètres physico-chimiques mesurés.



**FIGURE IV.9** – Comparaison entre concentrations mesurées à la source du Dahon (rond verts) et simulées par le modèle (trait rouge)

### 3. Analyse de crues au cours d'étiages

#### 3.1. Dynamiques physico-chimiques et hydrochimiques

Deux petites crues en période d'étiages sont analysées dans cette section avec une crue en juin 2014 et juin 2015. La première fait l'objet de précipitations extrêmement faibles mais montre de légères variations physico-chimiques et hydrochimiques et donne ainsi des informations complémentaires à la deuxième qui se caractérise par des précipitations plus importantes.

##### 3.1.1. Suivi de la crue de juin 2014

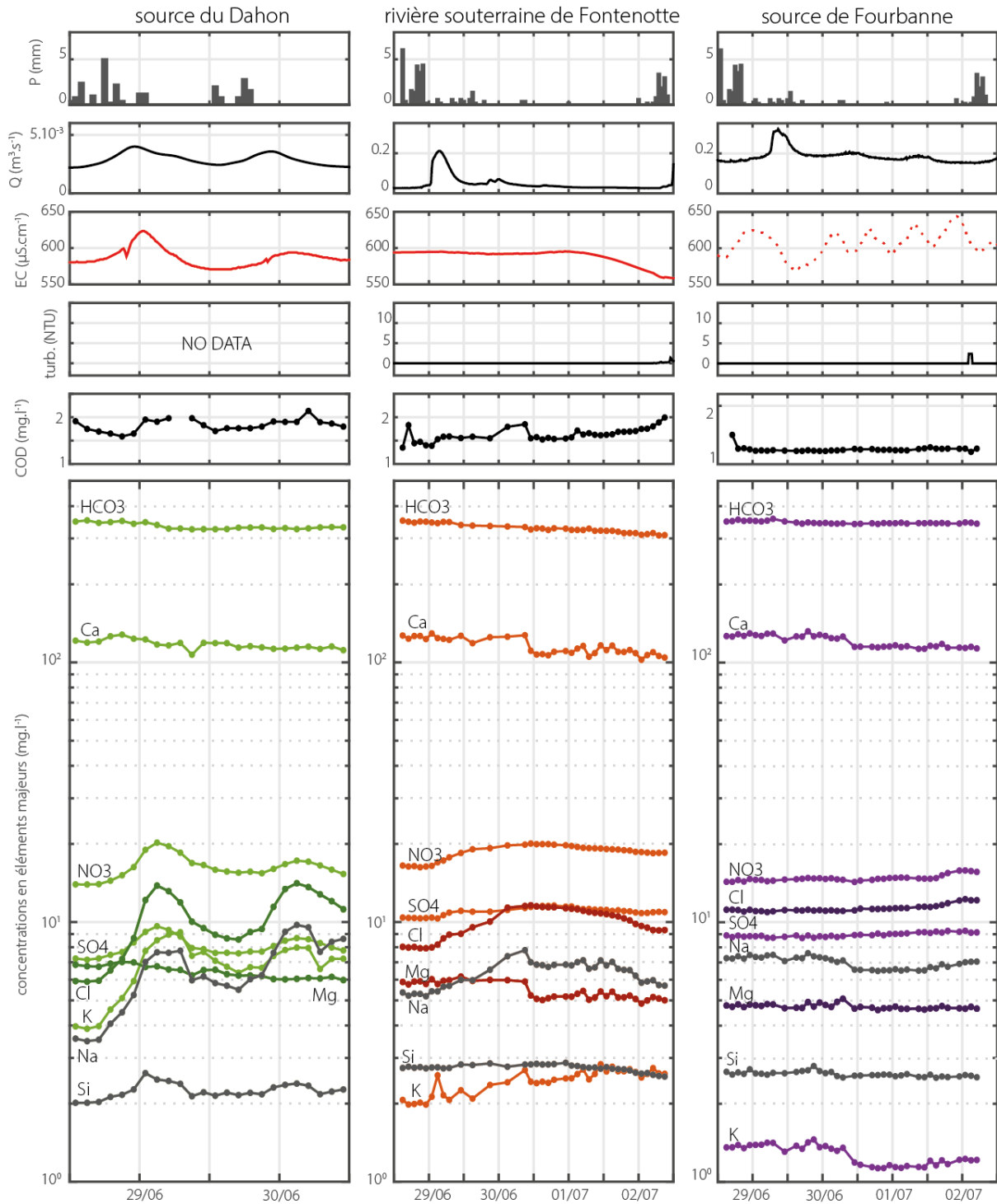
Comparativement aux conditions hydrologiques extrêmement basses à cette période, la crue de juin 2014 se caractérise par des précipitations relativement faibles avec un cumul total de précipitations de 25-30 mm sur les différents systèmes étudiés entre le 28 et le 30 juin 2014. Les débits maximums mesurés au cours de cette crue sont de l'ordre de 4 L/s à la source du Dahon, et de 210 L/s et 310 L/s dans la rivière souterraine et à la source de Fourbanne. Ces variations de débits sont donc extrêmement faibles. On observe malgré tout des variations de conductivité électrique. On ne dénote pas de variation de turbidité et de COD\* sur les sites présentant des mesures en continu<sup>1</sup>. Enfin les températures mesurées aux sources de Fourbanne, du Grand Bief et du Doubs ne sont pas interprétées car elles présentent des anomalies liées aux variations des températures extérieures sur la station de mesures en cette période de canicule. Seules les températures suivies à Fontenotte et Dahon sont interprétées. En effet, elles ne présentent pas d'anomalies car localisées respectivement dans le réseau d'En-Versennes et dans le captage de la source du Dahon. Le détail de ces chroniques se trouve en annexe B sur la figure B.1. De très faibles variations de conductivité sont observées pour les sources du Grand Bief et du Doubs. On note en revanche des arrivées minéralisées à la source du Dahon et un phénomène de dilution tardif à la rivière souterraine de Fontenotte. La conductivité de la source de Fourbanne ne peut être interprétée en raison des anomalies de température de l'appareil de mesure.

La crue du 28 juin 2014 a fait l'objet d'un suivi hydrochimique sur les sources du Dahon et de Fourbanne, ainsi qu'à la rivière souterraine de Fontenotte. Ces variations sont donc relativement faibles au vu des systèmes étudiés. Elles donnent cependant des informations complémentaires pour caractériser certains apports en période d'étiage :

- Ainsi la **source du Dahon**, malgré des variations de débits extrêmement faibles indique une nette évolution de la minéralisation observée à la source. Les teneurs en NO<sub>3</sub>, SO<sub>4</sub>, Cl, Na, K et Si augmentent simultanément au cours des deux petits épisodes de précipitations mesurés sur la zone de recharge. Ces variations sont corrélées au COD (mesures en laboratoire) indiquent des apports anthropiques liés à l'occupation des sols sur le bassin, avec d'une part des apports NO<sub>3</sub>, SO<sub>4</sub> et K pour la fertilisation des sols et d'autre part Cl et Na, déjà abordés dans le chapitre 1, qui semble être liée aux pratiques de plus en plus fréquentes d'ajout de sel pendant la fauche qui a justement lieu à cette période de l'année. Au vu de la faible épaisseur de sol de la zone de recharge alimentant la source du Dahon (cf. Chapitre II), la signature de l'épandage agricole se retrouve donc rapidement à la source au cours des crues. On note d'ailleurs que ces éléments correspondent aux mêmes éléments identifiés précédemment dans la crue de novembre 2014 et déterminés comme provenant de remobilisation interne.

---

1. La rivière souterraine de Fontenotte et la source du Dahon présentent des pannes de fluorimètre au cours de ce suivi



**FIGURE IV.10** – Suivi hydrochimique de la crue du 28 juin 2014 pour la source du Dahon, la rivière souterraine de Fontenotte et la source de Fourbanne

- Le suivi réalisé à la **rivière souterraine de Fontenotte** dénote un comportement distinct qui semble permettre de différencier les apports tardifs des infiltrations localisées du bassin amont et marneux de Verne des autres apports localisés ou diffus de la zone non-saturée. En effet, l'arrivée des écoulements superficiels du principal bassin marneux de Verne n'arrive que très tardivement induisant une diminution de la conductivité ainsi qu'une augmentation des teneurs en COD. Les vitesses de transit sont estimées à environ 2 jours, ce qui



semble cohérent avec les résultats du traçage artificiel réalisé en fort étiage en juillet 2015 depuis la perte de la Verne et qui montre un temps de transit de plus de 7 jours à la station de Fontenotte et de plus de 22 jours à la source de Fourbanne. Avant l'arrivée des apports superficiels de Verne, des augmentations notables et simultanées sont mesurées ainsi que des augmentations en  $\text{NO}_3$  et K.

- A la **source de Fourbanne**, suite au temps de transit lents estimés dans la zone saturée, les variations hydrochimiques mesurées sont extrêmement faibles. La figure ne permet pas de distinguer correctement ces faibles évolutions. On note que 1.5 jours après la fin de la crue une diminution des concentrations en Ca, Na et K apparaît mais elle semble plutôt occasionnée par un problème analytique<sup>2</sup>. Ces variations ne sont donc pas interprétées. Cependant, on remarque également une augmentation des concentrations simultanées en  $\text{NO}_3$ , Cl, Na et K et qui semblent faire référence à l'arrivée des eaux mesurées 3 jours plus tôt dans la rivière souterraine de Fontenotte. Il semble donc que cette crue, au vu des faibles précipitations, n'indique pas d'arrivées plus superficielles ni d'arrivées matricielles autres que celles liées aux apports provenant de la rivière souterraine de Fontenotte.

### 3.1.2. Suivi de la crue de juin 2015

La crue de juin 2015 présente des précipitations orageuses qui touchent de manière plus hétérogène le Massif du Jura mais en quantité plus importante que la crue précédente. Ainsi, on mesure entre le 14 et le 18 juin un total de précipitations de 61 mm sur une période relativement courte à la station de Branne, et de 36 mm et 24 mm sur une période plus dispersée à Epenoy et la Boissau-de-Rochejean. Cette crue a lieu au cours d'une période dominée par un fort étiage induisant des débits en conditions initiales extrêmement bas et un sol très sec. Les variations physico-chimiques des différents systèmes étudiés sont détaillées dans les annexes B sur la figure B.2. Ces précipitations impliquent des augmentations de débit conséquentes avec des débits supérieurs à 500 L/s à Fourbanne et à  $1 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  aux sources de Grand Bief et du Doubs.

La comparaison des différents sites de mesures à partir d'analyses corrélatoires croisées a été également testée sur cette crue. Cependant, étant donné que les précipitations sont beaucoup plus hétérogènes, l'analyse montre des fonctions de corrélation extrêmement dispersées qui ne permettent de ressortir d'information comparative. Seul le corrélogramme pluie-débit montre la présence de plusieurs pics de corrélation pour les différentes stations de mesures et qui illustre la forte non-stationnarité des réponses en contexte d'étiage et pluies relativement hétérogènes. Ces corrélogrammes sont également détaillés en annexes B.

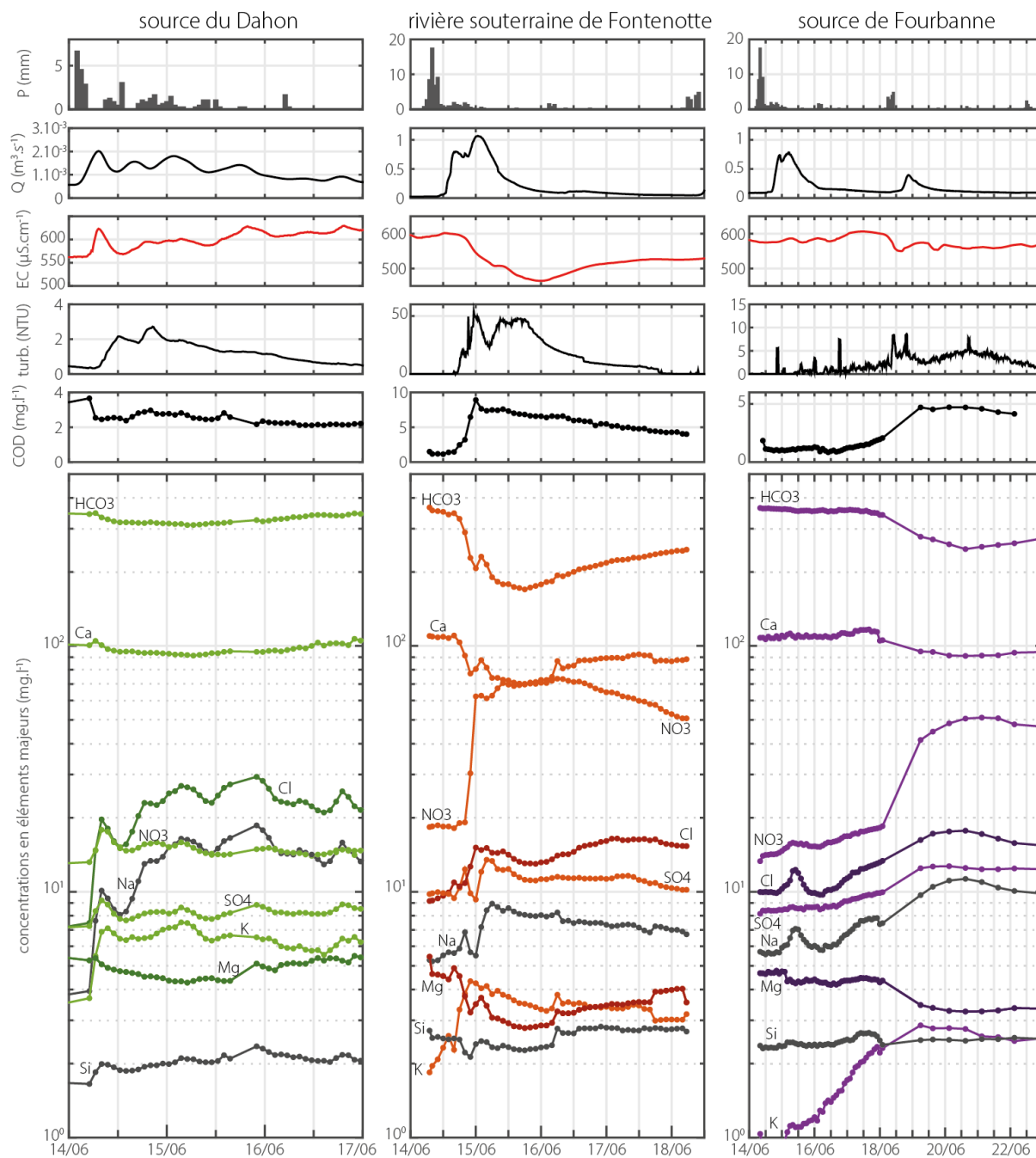
La crue du 14 juin 2015 a fait l'objet d'un suivi hydrochimique équivalent à la crue précédente avec un suivi aux sources du Dahon et de Fourbanne, ainsi qu'à la rivière souterraine de Fontenotte. En comparaison avec la crue de juin 2014, celle-ci montre un cumul de précipitations légèrement plus élevé avec un total de 36 mm sur le système du Dahon de manière relativement dispersée sur 2-3 jours et 61 mm sur le système de Fourbanne sur 1 jour. Les débits maximums mesurés au cours de cette crue sont du même ordre que la crue précédente avec 2 L/s à la source du Dahon, mais plus important sur le système de Fourbanne avec  $1.06 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  dans la rivière souterraine et  $0.75 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  à la source de Fourbanne.

---

2. déphasage lié à la mesure sur l'ICP-AES qui a été réalisée sur deux séries d'analyses différentes exactement au niveau du décalage observé

- La **source du Dahon** montre une dynamique similaire à la crue de juin 2014 avec des augmentations importantes et simultanées des teneurs en  $\text{NO}_3$ ,  $\text{SO}_4$ , K et Si ainsi que Na et Cl. On dénote également de faibles variations similaires pour le COD ainsi qu'une augmentation légère de la turbidité (avec un maximum de 2.5 ntu). On constate également une faible diminution de  $\text{HCO}_3$ , Ca et Mg lié à des effets de dilution avec l'arrivée d'eau événementielle mais qui n'induit de fortes variations au niveau de la conductivité. Celle-ci étant nettement plus influencée par l'augmentation des teneurs des autres éléments caractérisant les apports de surface.
- Étant donné les précipitations plus importantes, l'évolution hydrochimique à la **rivière souterraine de Fontenotte** est plus nette que celle décrite au cours de la crue de juin 2014. Le suivi dans la rivière souterraine de Fontenotte montre une baisse de la conductivité importante ( $-140 \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$ ) liée à la diminution des teneurs en  $\text{HCO}_3$ , Ca et Mg et indiquant un effet de dilution par les eaux événementielles. En parallèle, on constate un pic important en COD avec des teneurs maximales de  $8.9 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  simultanées notamment avec le pic maximal de turbidité (50 NTU) et les teneurs élevées en  $\text{NO}_3$  allant jusqu'à  $73 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ .  
On distingue deux pics de débits ainsi que deux pics de turbidité qui pourraient être provoqués soit par l'hétérogénéité des précipitations soit par les arrivées non concomitantes de points d'infiltrations localisés dans la zone non-saturée. Les suivis hydrochimiques ne permettent pas de privilégier l'une des deux hypothèses.
- A la **source de Fourbanne**, on retrouve de manière relativement simultanée à partir du 17 juin, la forte diminution des teneurs en  $\text{HCO}_3$ , Ca et Mg observées à Fontenotte accompagnée de l'augmentation importante du COD ainsi que les deux pics de turbidité. Cette observation semble donc indiquer l'arrivée à la source des eaux analysées plus de 48 h plus tôt dans la rivière souterraine de Fontenotte. Les prélèvements indiquant les valeurs maximales analysées sont ceux mesurés à partir du 19 juin avec des valeurs atteignant  $5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  en COD,  $40\text{-}50 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  en  $\text{NO}_3$ . Malgré un pas de prélèvement moins précis, on dénote un effet de dispersion et/ou une atténuation liée à la dilution de la matière organique le long du conduit.

Concernant les concentrations en Na et Cl, on observe un premier pic 24 h après les précipitations maximales mesurées, suivi d'un deuxième pic beaucoup plus concentré et dispersé. Le premier pic est corrélé au pic de débit et à une légère augmentation en  $\text{NO}_3$ . Il pourrait être lié à une remobilisation interne dans le système et/ou à des apports de surface en aval de la zone de recharge de la source. En effet, il semble relativement comparable aux apports concentrés mesurés simultanément à la source du Dahon avec cependant moins d'éléments caractéristiques. Le deuxième pic en revanche se caractérise par l'augmentation d'un ensemble d'éléments caractéristiques d'apports anthropiques. Il semble se diviser en deux étapes. Une première étape du 15 au 17 juin liée à des apports de surface avec une augmentation lente des teneurs en  $\text{NO}_3$ ,  $\text{SO}_4$ , Na, Cl, K et Si. Et une deuxième étape à partir du 17 juin dénotant l'arrivée des apports de la zone non-saturée du réseau d'En Versennes et mesurés à Fontenotte avec les effets de dilution induit par la recharge allochtone du système. Dans ce schéma conceptuel on superposerait alors à partir du 17 juin deux arrivées simultanées : (i) la recharge diffuse de la partie aval de la zone de recharge et (ii) la recharge allochtone liée aux sous bassins marneux amont. Ce qui expliquerait notamment les teneurs en Na et Cl plus élevées à la source.



**FIGURE IV.11** – Suivi hydrochimique de la crue du 14 juin 2015 pour la source du Dahon, la rivière souterraine de Fontenotte et la source de Fourbanne

### 3.2. Modélisation des mélanges sur le système de Fourbanne

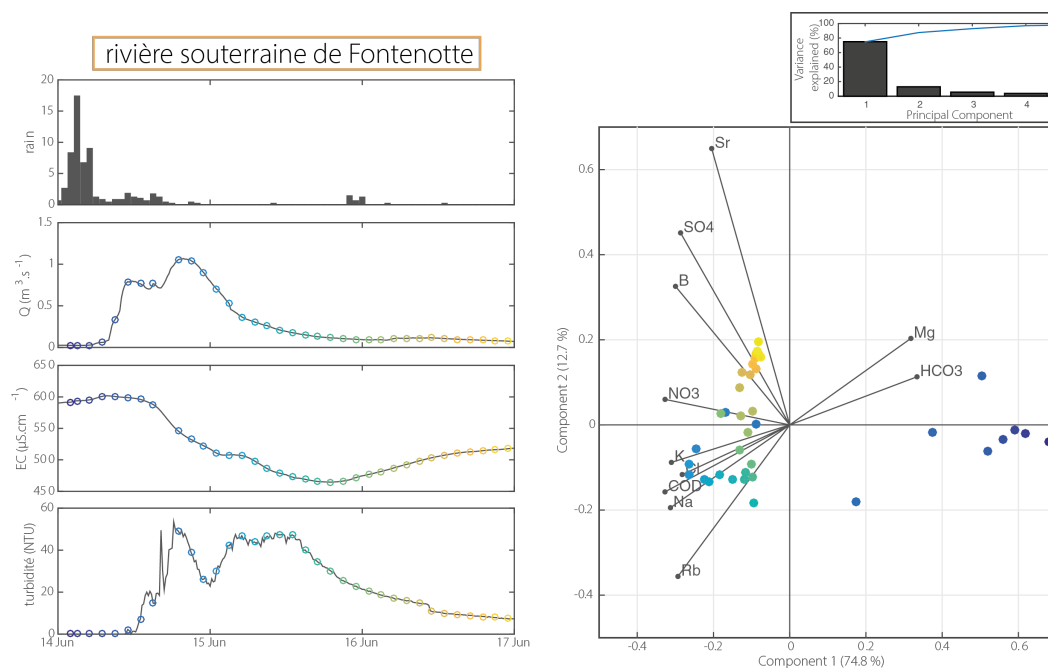
Le suivi de crue de juin 2015 fait apparaître des dynamiques complexes sur le système de Fourbanne. Afin de valider les hypothèses émises précédemment et d'estimer des proportions de mélanges dans le système, un modèle de mélange à partir de la méthode EMMA est appliqué.

Il a été choisi de séparer le système de Fourbanne en deux sous-systèmes et d'identifier les pôles caractéristiques qui contribuent à l'évolution hydrochimique de cette crue précédée de l'étiage sévère de l'été 2015. Ainsi, on distingue :

- le sous-système amont qui a comme exutoire la rivière souterraine de Fontenotte caractérisant la zone non-saturée du système marqué par une recharge allochtone importante ;
- le sous-système aval qui a comme exutoire la source de Fourbanne caractérisant d'une part la zone non-saturée marquée par une recharge diffuse et d'autre part la zone saturée du réseau d'En-Versennes.

### 3.2.1. Sous-système amont

Tout d'abord, le suivi de crue réalisé dans la rivière souterraine de Fontenotte est utilisé pour identifier les contributions principales dans cette partie de la zone non-saturée du réseau d'En-Versennes marquée par une recharge allochtone et localisée importante. L'évolution des paramètres physico-chimiques et l'analyse en composantes principales de ce suivi de crue (figure IV.12) montre qu'une partie importante de la variance (75%) est expliquée par la première composante. Celle-ci distingue des eaux avec des teneurs élevées en  $\text{HCO}_3$  et Mg, caractérisant des eaux dites "pré-événementielles" avec un temps séjour long dans le milieu karstique, et des eaux avec des teneurs faiblement élevées en  $\text{HCO}_3$  et Mg mais chargées en éléments majeurs caractérisant des contributions d'eaux plus récentes et suggérant des apports plus superficiels et/ou anthropiques.

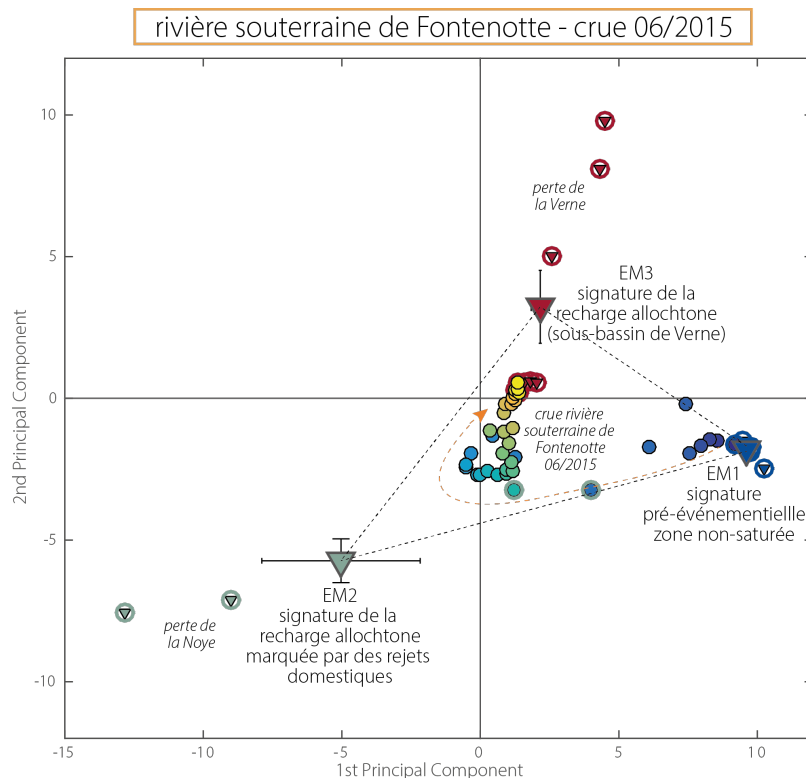


**FIGURE IV.12** – Analyse en composante principale du suivi de la crue de juin 2015 à la rivière souterraine de Fontenotte en relation avec l'évolution des paramètres physico-chimiques.

La deuxième composante explique seulement 13% de la variance mais semble distinguer deux signatures distinctes. Dans un premier temps, des apports suggérant une signature à la fois anthropique et superficielle avec le COD, K, Na, Cl, et Rb. Puis dans un deuxième temps, des apports superficiels marqués par des teneurs élevées en  $\text{SO}_4$  et Sr caractéristiques des apports de surface du sous-bassin de Verne et où affleurent les couches gypsifères du Trias supérieur.

Comme décrit précédemment, la partie amont de la zone de recharge de Fourbanne présente plusieurs sous-bassins marneux sur une surface estimée autour de 7 km<sup>2</sup> et correspondant à plus de 20% de la surface du système de Fourbanne. Cette zone amont est donc caractérisée par un ruissellement important et une recharge allochtone considérable du système karstique. A partir des résultats présentés précédemment et de cette analyse en composante principale, trois pôles ont été identifiés à partir des données récoltées sur le terrain et correspondant aux principaux pôles de mélange caractérisant cette crue de début d'été et en lien avec une période de fort étiage. La figure IV.13 illustre ces trois pôles définissant des signatures hydrochimiques distinctes :

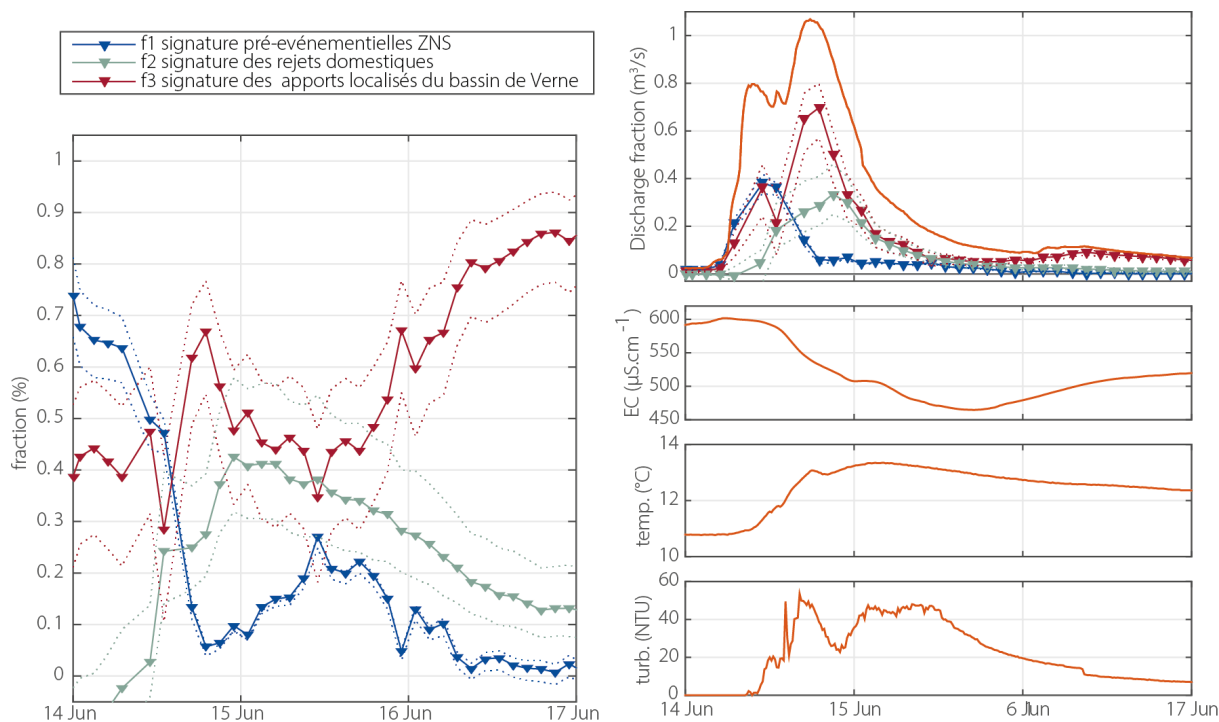
- **EM1 : signature des eaux pré-événementielles de la zone non-saturée** à partir de prélèvements réalisés en basses-eaux dans la rivière souterraine de Fontenotte
- **EM2 : signature des eaux impactées par des apports domestiques et/ou agricoles** en intégrant des prélèvements de la perte de la Noye marquée essentiellement par des rejets domestiques plus ou moins dilués par la station de lagunage traitant les eaux des villages de Verne et Luxiol.
- **EM3 : signature des eaux superficielles du sous-bassin marneux et gypsifère de Verne** intégrant différents prélèvements réalisés sous différentes conditions hydrologiques à la perte de la Verne.



**FIGURE IV.13** – Représentation graphique de l'ACP illustrant l'évolution du suivi de crue dans la rivière souterraine de Fontenotte et les trois pôles de mélange sélectionnés

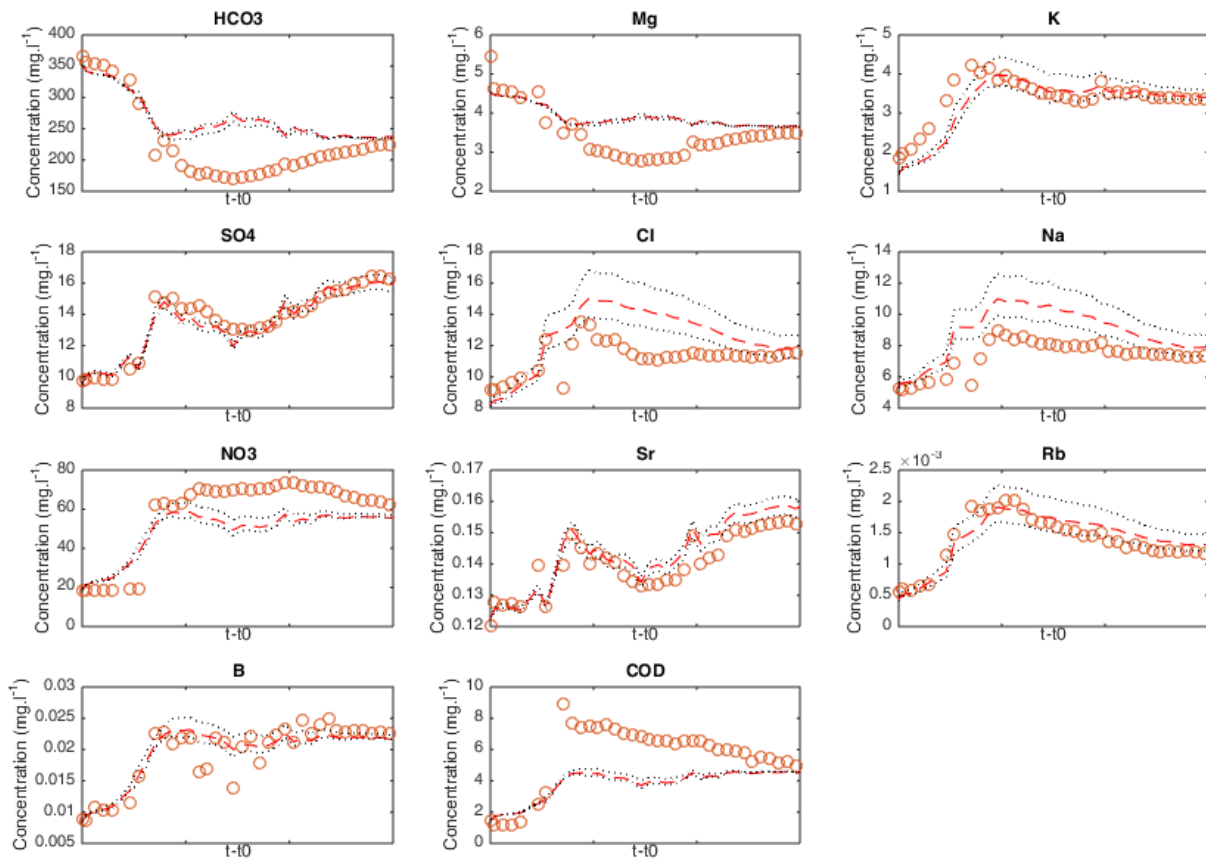
Étant donné que ce modèle de mélange tente de caractériser une crue avec une pluie totale de 61 mm, les pôles définis à partir des mesures aux pertes intègrent à la fois les points de mesures des prélèvements décrits précédemment mais également des points de la crue elle-même dans le but d'associer la signature chimique des pertes avec la dilution liée aux précipitations. La signature des précipitations étant relativement appauvrie en comparaison des pôles sélectionnés est ainsi introduite dans le modèle de mélange.

Les pôles de mélange définis permettent d'encadrer l'ensemble des individus de la crue dans l'acp (figure IV.13). Le début de la crue est définis par le pôle EM1 caractérisant les eaux pré-événementielles, se déplacent ensuite progressivement en direction du pôle EM2 caractérisé par des eaux marquées par des rejets domestiques puis prennent la direction du pôle EM3 marqué par les eaux du bassin de la perte de Verne. La fraction des contributions de chacun de ces pôles est ensuite calculée (figure IV.14). On observe tout d'abord la diminution progressive des contributions des eaux pré-événementielles du pôle EM1. Les apports de EM2 apparaissent en début de crue, pour atteindre 40% puis disparaissent progressivement. Enfin, le pôle EM3 caractérisant la perte de Verne représente déjà 40% des apports en début de crue puis augmente progressivement. On dénote plus tardivement une légère augmentation du pôle EM1, qui pourrait être attribué à des arrivées plus diffuses provenant de la matrice.



**FIGURE IV.14** – Évolution de la contribution de chacun des pôles au cours de la crue de juin 2015 dans la rivière souterraine de Fontenotte avec les incertitudes associées (en pointillées) et en relation avec les paramètres physico-chimiques mesurés.

En multipliant ces fractions avec les débits mesurés à la station de Fontenotte, il est possible de décomposer le débit et d'estimer les contributions en terme de flux de chacun de ces pôles. Ainsi en début de la crue, alors que la conductivité est encore élevée et stable ( $600 \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$ ), les eaux semblent en partie dominées par des contributions pré-événementielles caractérisées par une signature matricielle et marquées également par la signature des bassins sous-marneux de Verne. Lorsque la conductivité diminue et qu'en revanche les mesures de température et de turbidité augmentent, les flux sont essentiellement dominés par des apports superficiels soit liés à la perte de la Verne soit à ceux de la Noye caractérisant une signature anthropique forte mais finalement peu minéralisée. Enfin, le retour à l'état initial montre une diminution progressive de EM2 et le pôle EM3 devient la contribution principale.



**FIGURE IV.15** – Comparaison entre concentrations mesurées à la rivière souterraine de Fontenotte (rond orange) et simulées par le modèle (trait rouge)

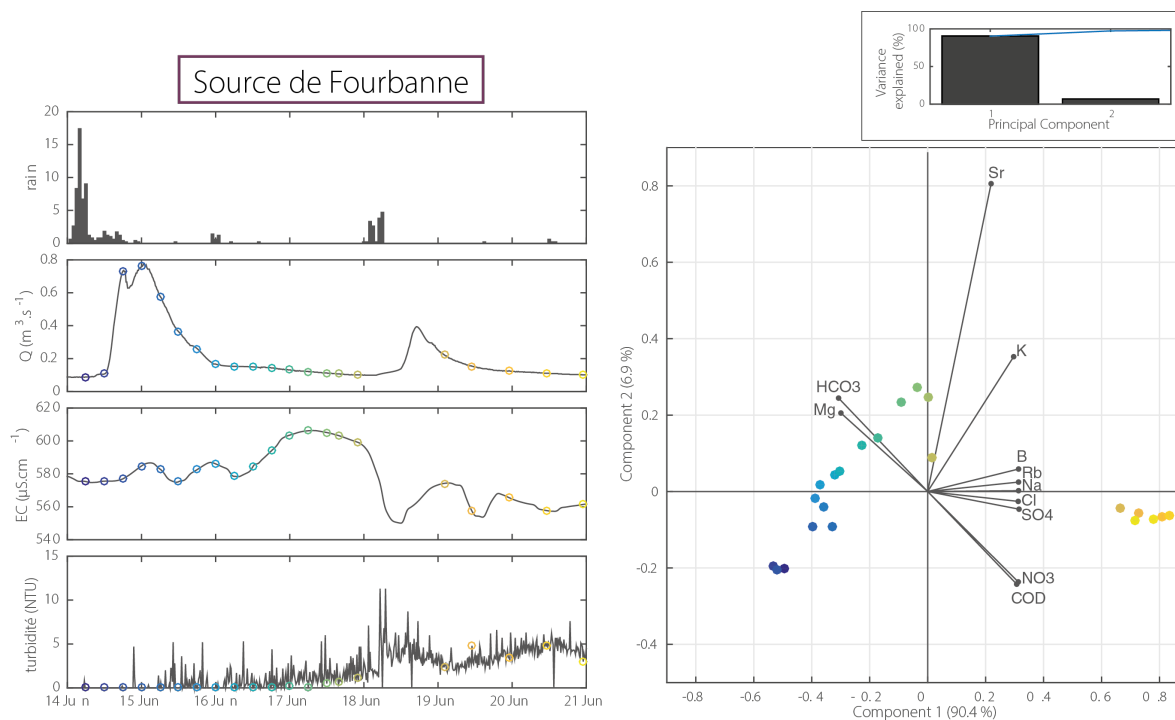
Afin de valider ce modèle, les flux calculés pour les pertes EM3 sont comparés à ceux mesurés. On dénote une sous-estimation des flux mesurés de 45 %. Cet écart peut s'expliquer par le fait que le modèle identifie des pôles de mélange fixes pour caractériser une crue et donc un événement complexe avec des contributions qui évolue au cours du temps. Cependant, ces écarts suggèrent également des échanges plus complexes dans la zone non-saturée. Ainsi, il est possible que l'ensemble des flux mesurés à la perte de la Verne ne sont pas entièrement restitués à Fontenotte, mais qu'une partie pourrait également recharger la matrice calcaire fracturée de l'aquifère.

A partir de ces hypothèses et de ces pôles de mélange, il est possible de reproduire l'évolution de certains éléments au cours de la crue (figure IV.15). La dynamique de certains éléments tels que  $\text{SO}_4$ , Sr, K, Rb et B - caractérisant essentiellement la signature des bassins marneux et gypsifères de la perte de Verne - est reproduite par le modèle de mélange ainsi défini. En revanche, on remarque que les teneurs de  $\text{HCO}_3$  et Mg sont surestimées sur une partie de la crue quand à l'inverse les teneurs en  $\text{NO}_3$  et COD sont sous-estimées. Ces écarts peuvent s'expliquer par le fait que le modèle ne prend pas en compte les contributions du sols via les infiltrations diffuses. En effet, ces contributions auraient probablement pour effet d'augmenter les teneurs en  $\text{NO}_3$  et COD et de diluer la signature matricielle des eaux. Enfin, les teneurs de Na et Cl sont légèrement surestimées par le modèle mais permettent d'expliquer la dynamique observées au cours de la crue. Expliquer les teneurs de Na et Cl dans la zone non-saturée du réseau d'En-Versennes par des rejets anthropiques semblent donc être une hypothèse cohérente.



### 3.2.2. Sous-système aval

Le deuxième sous-système tente maintenant de distinguer les contributions et modéliser les mélanges caractéristiques de la source de Fourbanne. Ce sous-système se caractérise par une recharge diffuse sur un bassin occupé par des forêts sur environ 60% de sa surface et par des cultures et prairies sur les 40% restants. Afin de limiter les effets que pourraient voir le pas de temps d'échantillonnage de cette crue (figure IV.11), celui-ci a été homogénéisé sur l'ensemble de la chronique étudiée.



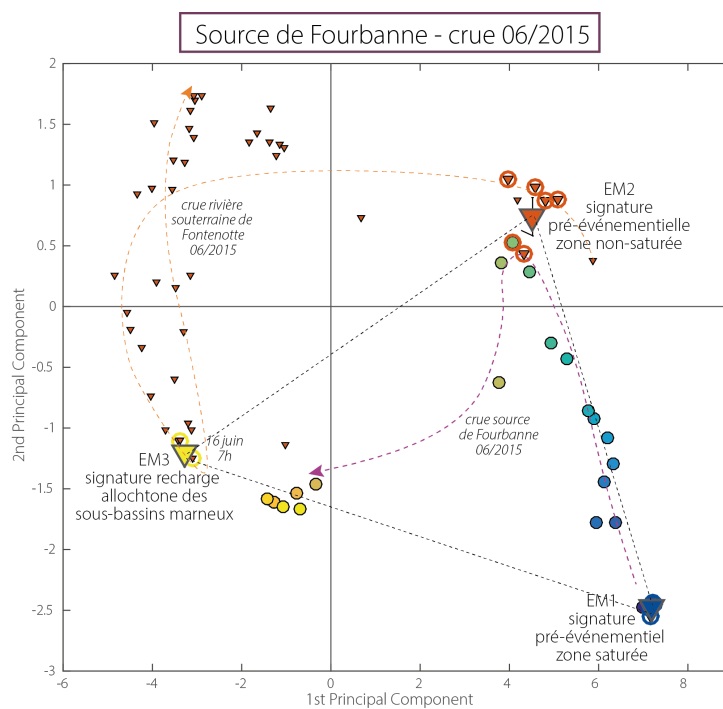
**FIGURE IV.16** – Analyse en composante principale du suivi de la crue de juin 2015 à la source de Fourbanne en relation avec l'évolution des paramètres physico-chimiques.

L'analyse en composantes principales (figure IV.16) est mise en relation avec le suivi physico-chimique de la source. La première composante explique 90% de la variance distinguant une eau avec un temps de résidence long indiqué par des teneurs élevées en  $\text{HCO}_3$  et Mg, d'une eau plus récente liée avec l'événement de crue. L'analyse du suivi détaillé des éléments majeurs au cours de la crue indique d'ailleurs une arrivée plus tardive des eaux récentes à la source et perturbée de plus par un second événement de précipitation le 18 juin (figure IV.11).

L'identification et la définition des pôles de mélange pour encadrer et caractériser les dynamiques observées à la source de Fourbanne sont délicates. Les signatures telles que les pertes de Verne, de la Noye mais également des lysimètres de Chasnans ne permettent pas de constituer des pôles nets car fortement dispersés et ne permettent pas d'encadrer correctement la dynamique de crue observée mesurée à Fourbanne.

Au vu des conclusions tirées des discussions précédentes mettant en avant le rôle prépondérant, bien que tardif, des contributions en provenance de la rivière souterraine de Fontenotte, le choix des pôles du modèle de mélange de ce sous-système est donc déterminé en partie à partir des prélèvements de crues à Fontenotte (figure IV.17) :

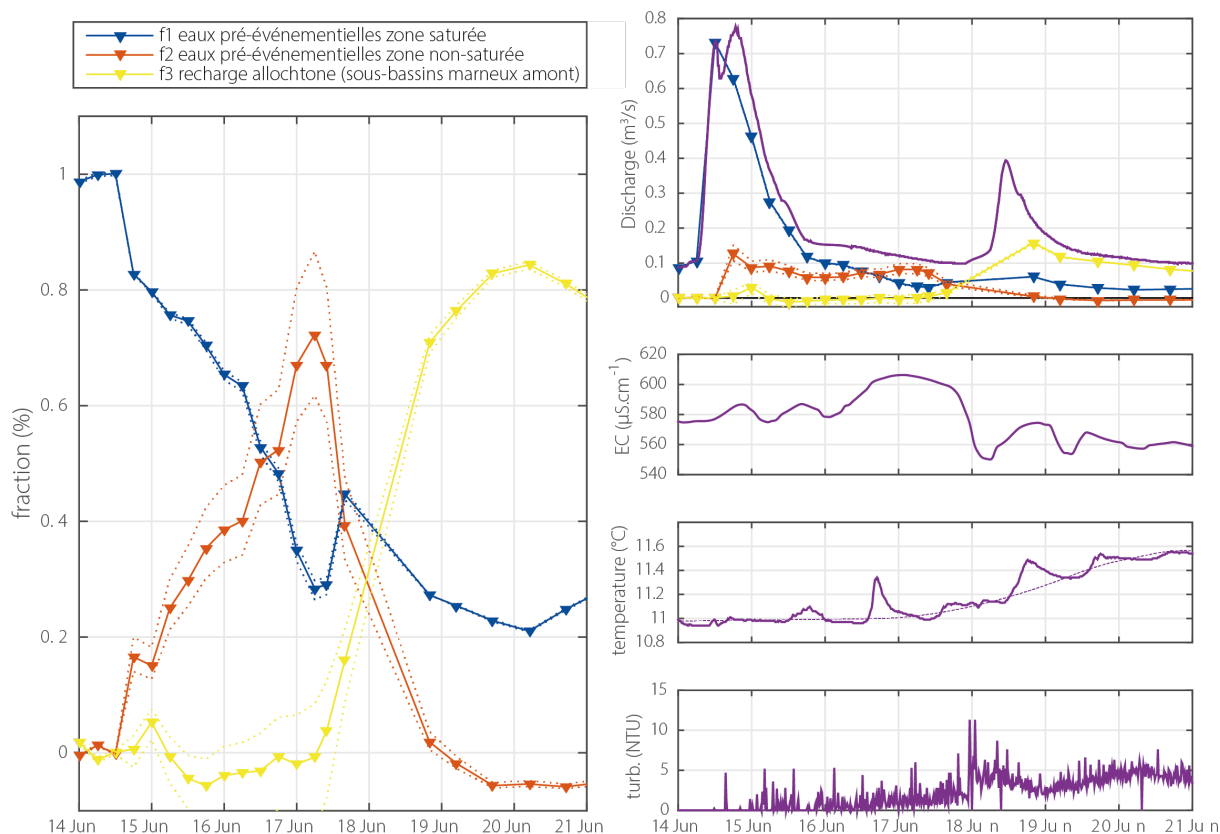
- **EM1 : signature des eaux pré-événementielles de la zone saturée** à partir des prélèvements réalisés à la source au tout début de la crue.
- **EM2 : signature des eaux pré-événementielles de la zone non-saturée** en intégrant les prélèvements dans la rivière souterraine de Fontenotte avant l'arrivée de la crue.
- **EM3 : signature de la recharge localisée des sous-bassins marneux** intégrant de données de crues de Fontenotte du 16 juin entre 5 et 9h caractérisant 20% de noye, 10% matriciel et 70% verne.



**FIGURE IV.17** – Représentation graphique de l'ACP illustrant l'évolution du suivi de crue à la source de Fourbanne et les trois pôles de mélange sélectionnés

Les fractions calculées de chacun de ces pôles semblent indiquer une vidange progressive du conduit karstique. La part des eaux pré-événementielles de la zone saturée diminue progressivement pour laisser la place à celles caractérisant la zone non-saturée et représentant jusqu'à 70% de la fraction totale calculée. Ces arrivées indiquent une légère augmentation de la conductivité jusqu'à environ  $600 \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$ . Enfin, progressivement les apports de la crue sont dominés par des eaux marquées par la recharge localisée des sous-bassins marneux amont. Ces derniers arrivent en même temps que l'augmentation de la température<sup>3</sup> validant le lien avec la recharge localisée du système. De plus, ils sont également synchrones de l'arrivée simultanée de la fraction particulière indiquée par la turbidité et qui semble là encore caractériser une origine principalement allochtone plutôt qu'un origine autochtone liée à une remobilisation interne dans le système.

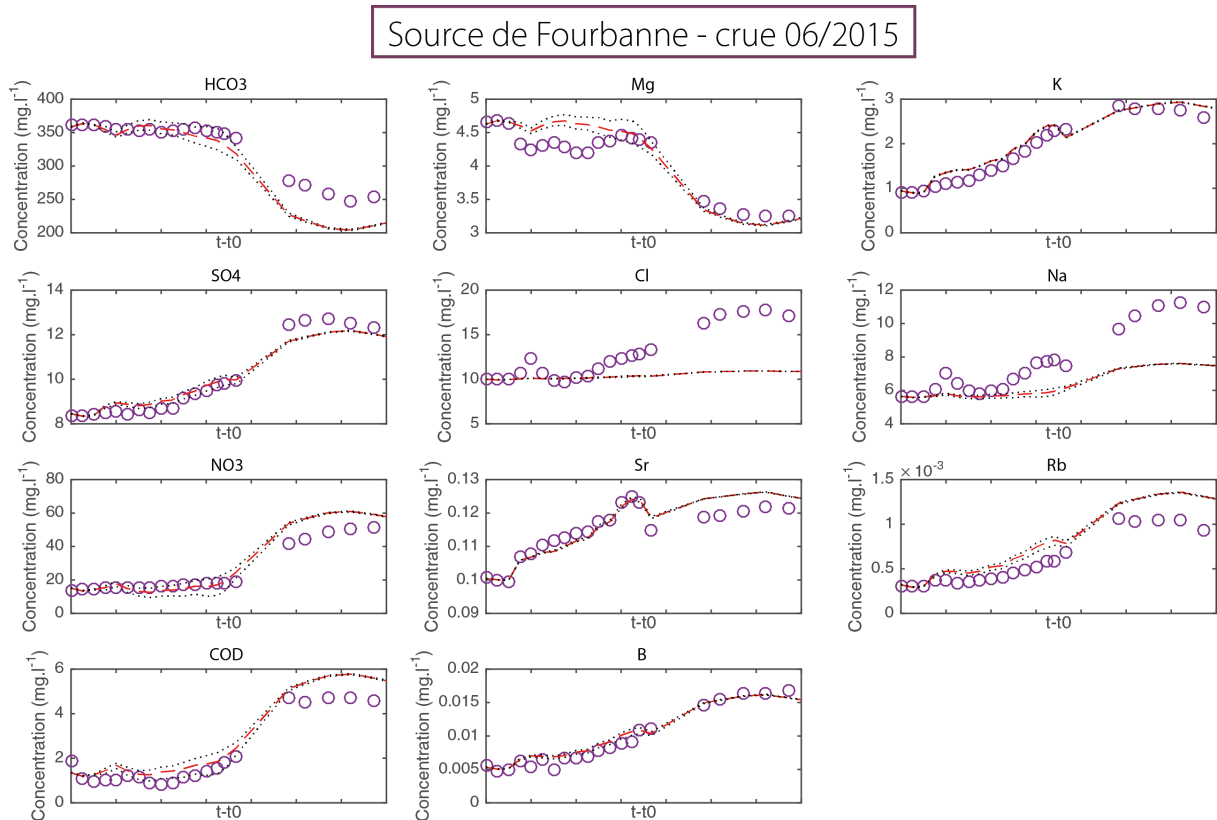
3. Les effets des variations journalières des températures extérieures sur les températures de l'eau dans la vasque de Fourbanne sont filtrés et ajoutés en pointillés



**FIGURE IV.18** – Évolution de la contribution de chacun des pôles au cours de la crue de juin 2015 à la source de Fourbanne avec les incertitudes associées (en pointillés) et en relation avec les paramètres physico-chimiques mesurée.

Les concentrations calculées par le modèle indiquent une bonne estimation des concentrations  $\text{SO}_4$ , K, Sr, Rb et B caractéristiques des apports du bassin de Verne. Les plus grands écarts réalisés par le modèle correspondent aux teneurs de Cl et Na avec une forte sous-estimation de ces teneurs. Ceux-ci s'expliquent plusieurs hypothèse :

- Les apports anthropiques caractérisant des rejets domestiques ne sont pas pris en compte sur ce sous-système. Ils semblent pourtant constituer une part conséquente des apports localisés du système comme cela a pu être constaté pour le modèle de mélange réalisé sur le sous-système amont de Fontenotte ;
- Aucun pôle ne définit ici les apports diffus du bassin. La recharge localisée concentre les eaux de ruissellement sur seulement 25% de la surface du bassin. Bien que cette crue est précédée d'un étiage extrême induisant une sous-saturation des sols sur le bassin, des apports diffus même faibles doivent pouvoir être observés.
- Le modèle ne permet pas non plus de prendre en compte les échanges complexes pouvant exister au cours de la crue, en particulier dans la zone saturée où des phénomènes de mise en charge du système ont lieu et doivent influencer la composition hydrochimique des eaux analysées à la source.



**FIGURE IV.19** – Comparaison entre concentrations mesurées à la source de Fourbanne (rond violet) et simulées par le modèle (trait rouge)

#### 4. Discussion

Afin de caractériser la dynamique physico-chimique et hydrochimique au cours d'événements de crue sur les différents systèmes étudiés, plusieurs méthodes complémentaires sont appliquées dans ce chapitre. Les analyses corrélatoires permettent de caractériser et comparer les réponses impulsionnelles de systèmes marqués par des tailles de bassin et des processus de recharge distincts. Le suivi hydrochimique donne la possibilité d'analyser de manière précise l'évolution au cours de la crue et est ensuite utilisé pour identifier et modéliser des processus de mélange sur les systèmes de Fourbanne et du Dahon :

- Le modèle de mélange réalisé sur le **système du Dahon** caractérise le fonctionnement d'un petit système karstique au cours d'une crue conséquente. Il est défini par une recharge diffuse dominante et montre l'impact de contaminations agricoles importantes sur ce système de faible épaisseur. Au cours de cette crue, on observe les arrivées consécutives de deux signatures hydrochimiques spécifiques caractérisant deux processus distincts, avec une arrivée brève de contaminations agricoles qui semble stockées dans le réservoir aquifère et des arrivées superficielles du sol plus diffuses et chargées par des matières en suspension.
- Sur le système de Fourbanne, le modèle de mélange est séparé en deux sous-systèmes afin de mieux comprendre d'une part les mécanismes de recharge localisée importants à la rivière souterraine de Fontenotte et d'autre part de caractériser l'importance de ces apports localisés à la source de Fourbanne en période d'étiage. A partir des pôles définis on identifie l'importance de cette recharge localisée dans les contaminations anthropiques observée.

Cependant le modèle ne nous permet pas de prendre en compte suffisamment l'ensemble des contributions et des interactions existantes dans le réseau karstique, en particulier dans la zone saturée.

La méthode EMMA apparaît comme un outils pertinent pour mieux comprendre les dynamiques de recharge et estimer les proportions des principaux apports identifiés préalablement. On remarque cependant que l'utilisation d'un modèle de mélange au cours d'une crue est délicate étant donné que les pôles sont supposés constants et ne prennent donc pas en compte la variabilité temporelle des différents apports. En revanche, ce modèle donne la possibilité de confirmer certaines hypothèses et apporte des indices supplémentaires sur ce qui n'a pas été suffisamment pris en compte dans les pôles sélectionnés.

Les phénomènes de remobilisation identifiés au cours de la crue de novembre 2014 notamment dénotent des processus de transport distincts. Les arrivées de matières organiques et de matière en suspension posent maintenant la question du lien entre les éléments dissous mesurés et les apports particuliers induits par les mécanismes de recharge et les vitesses d'écoulements de ces milieux hétérogènes. Quel sont notamment les rôles de ces particules et comment impactent-ils le réservoir aquifère? Et quels outils peuvent être mis en place afin de caractériser différents mécanismes de transport au cours des crues? Ces questions sont abordées dans la partie 2.

Finalement le modèle de mélange ne permet pas de caractériser la variabilité temporelle des apports identifiés dans les différents systèmes. Il est également difficile de comparer des comportements au cours de crues différentes, étant donné que les pôles de mélange peuvent évoluer en fonction des conditions hydrologiques et saisonnières (cf. Chapitre III). Comment alors faire le lien entre les transferts hydrodynamiques et hydrochimiques au cours des processus de recharge? Et quelle est l'importance des échanges existants dans le système karstique notamment entre le conduit et la matrice calcaire fracturée? Ces questions sont posées dans la partie 3 où une nouvelle approche de modélisation est proposée pour identifier et estimer la variabilité temporelle de ces échanges.

## PARTIE 2

Nature et dynamique du transport  
particulaire au cours des crues





---

# Utilisation des ETM pour caractériser le transport particulaire

Ce chapitre reprend le travail en cours de préparation intitulé "Characterizing dissolved and suspended matter related flood fluxes of trace metals in a karst aquifer using Rare Earth Elements as provenance indicator" écrit en collaboration avec Marc Steinmann<sup>1</sup>, Jean-Baptiste Charlier<sup>2</sup> et Sophie Denimal<sup>1</sup>.

## Structure

Résumé . . . . .	106
Abstract . . . . .	106
1. Introduction . . . . .	107
2. Study site and methods . . . . .	108
2.1. Study site, field sampling and monitoring . . . . .	108
2.2. Analytical methods . . . . .	109
2.3. Presentation of Rare Earth Element data . . . . .	110
3. Results . . . . .	111
3.1. Physico-chemical parameters and major elements . . . . .	111
3.2. Trace elements . . . . .	112
3.3. Rare Earth Elements (REE) . . . . .	113
4. Discussion . . . . .	115
4.1. Contributions of pre-event and event water . . . . .	115
4.2. Origin of SPM and NPC hosted trace elements . . . . .	115
4.3. Origin of the chemical load of autochthonous SPM . . . . .	116
4.4. Trace element partitioning between "dissolved" and particulate fractions . . . . .	117
5. Conclusions . . . . .	118

---

1. Chrono-Environnement, UMR 6249 UBFC/CNRS, Université de Bourgogne Franche-Comté, F-25000 Besançon, France

2. BRGM, 1039 rue de Pinville, F-34000 Montpellier, France

## Résumé

La plupart des études portant sur les crues dans les systèmes karstiques se basent sur l'analyse des échantillons filtrés, malgré le rôle potentiellement important de la matière en suspension pour les flux chimiques lors des crues. Le but de ce travail est de quantifier et de comparer les flux de matières dissoutes et en suspension dans un système karstique dominé par une recharge diffuse. Plusieurs traceurs naturels (notamment les éléments traces métalliques dont les Terres Rares) sont utilisés pour identifier l'origine des différentes fractions. L'événement de crue est caractérisé par les arrivées successives de deux fractions distinctes de matière en suspension (SPM). Le premier pic a pu être caractérisé par sa composition chimique mais n'aurait pu être identifié en analysant uniquement le poids de la matière en suspension ou de la mesure de turbidité. Ce pic correspond à des particules autochtones piégées dans le système et remobilisé à la mise en charge du système au début de la crue. Un second pic de matières en suspension apparaît ensuite simultanément aux eaux d'infiltration rapide de surface. Il est caractérisé par de concentrations élevées en Al, Fe, Mn et K, et correspond aux arrivées allochtones de particules du sol, entraînant ainsi des valeurs élevées de turbidité et des quantités importantes de matières en suspension. Ce second pic est accompagné, dans la fraction dissoute, par un pic de divers éléments traces peu solubles, que nous interprétons comme la présence de nanoparticules et colloïdes (NPCs). Les motifs de distribution des Terres Rares (REE) montrent que les NPCs et la matière en suspension proviennent tous de particules du sol. Les données de ces Terres Rares indiquent également que la matière en suspension autochtone du premier pic était simplement composée de sédiments piégés de crues précédentes et excluent les précipités d'oxyhydroxydes Fe-Mn en provenance à la dissolution de la matrice comme source significative de sédiments autochtones.

## Abstract

Most hydrochemical studies on flood events in karst systems are based on filtered samples, in spite of the potentially important role of suspended matter for chemical fluxes during flood events. The aim of the present paper was to quantify and to compare the fluxes related to dissolved and suspended matter during a flood event at the spring of a karst aquifer mainly recharged by diffuse infiltration. Various natural tracers, including the Rare Earth Elements (REE), were used to identify the provenance of the contributing dissolved and suspended fractions. The flood event was characterized by the temporally delayed arrival of 2 different fractions of suspended particulate matter (SPM). A first SPM peak was only recognizable in the chemical composition of the SPM and did not influence SPM weight and turbidity. Regardless to that, it contributed to up to 20% of the total mass balance for some trace metals such as Al, Fe, and REE. This first SPM peak corresponded to autochthonous conduit-sediments mobilized by piston-effect at the beginning of the flood. A second SPM peak with elevated values for turbidity and suspended matter appeared together with waters from rapid surface infiltration. It was characterized by high concentrations of Al, Fe, Mn, and K, which we related to the arrival of allochthonous soil particulates. In the dissolved fraction this second SPM peak was accompanied by a peak of various poorly soluble trace elements (Al, Mn, Ni, Co, REE), which we interpreted by the presence of nanoparticles and colloids (NPCs). The REE distribution patterns allowed to show that the NPCs and the SPM were all derived from soil particles whatever the flood stage, suggesting that the SPM of the first stage were reworked cave sediments from earlier floods and exclude seep deposits as a significant source for autochthonous sediments.

## 1. Introduction

About one quarter of the global population is at least partly dependent on drinking water from karst aquifers (Ford and Williams, 2013). This number is growing because increasing desertification of semi-arid areas and increasing water demand lead to an intensified exploitation of karst aquifers (Drew and Hotzl, 1999; Andreo et al., 2006). Karst aquifers are a highly vulnerable water resource due to the absence of deep filtering soils, and the presence of preferential pathways in the infiltration zone. Large conduits in the underground network result in rapid water flow during floods (White, 2002; Goldscheider and Drew, 2007; Hartmann et al., 2014). These fast flows mobilize allochthonous particles from soil erosion in the infiltration zone and autochthonous particles by remobilization of sediments inside the conduit network, leading to high turbidity peaks and elevated concentrations of suspended particulate matter (SPM), and nanoparticles and colloids (NPCs) (Mahler and Lynch, 1999; Shevenell and McCarthy, 2002; Amraoui et al., 2003; Massei et al., 2006; Fournier et al., 2009).

Karst waters are characterized by circumneutral to basic pH values. Many organic and inorganic pollutants are not or only poorly soluble under these conditions and therefore not transported in dissolved form, but sorbed on SPM and NPCs (Vesper et al., 2001; Vesper and White, 2003; Morasch, 2013). The occurrence of bacteria in karst springs is often similarly correlated with SPM peaks (Mahler et al., 2000; Pronk et al., 2006, 2009a), demonstrating that the SPM fraction is not only important for the transport of chemical but also of bacterial pollution. Flood events with SPM peaks are therefore the "hot moments" for pollution transfer in karst systems.

Several studies have investigated chemical and isotopic signatures of karstic springs during floods at high temporal resolution (Lee and Krothe, 2001, 2003; Aquilina et al., 2006; Mudarra and Andreo, 2011; Bicalho et al., 2012; Charlier et al., 2012). They showed, that chemical spring hydrograph separation may help to characterize water origin, to differentiate between pre-event and event water, and to identify the contributions of the different aquifer compartments (epikarst/-vadoze/storage zones). However, most hydrochemical studies on flood events in karst systems were based on filtered samples, in spite of the potentially important role of the SPM fraction. This shortcoming is probably due to analytical difficulties and costs. However, as a consequence, only little is known on the quantitative partitioning between dissolved and SPM fractions for chemical transfers during flood events.

The origin of the SPM and NPC load in karst systems, i.e. autochthonous vs. allochthonous, is difficult to determine. Most methods (e.g. mineralogical or isotopic approaches) are not applicable at high temporal resolution and therefore unable to identify rapid changes of SPM and NPC composition. New chemical tracers are therefore needed. Such a tracer must not only be applicable at high frequency, but also be operational with volumes recoverable by automatic sampling. Rare Earth Elements (REE) have been used in the past to identify specific NPC and SPM sources in rivers (Tepe and Bau, 2014, 2015). For soils developed on limestone bedrock it was shown that the different soil horizons had specific REE distribution patterns, in function of mineralogy and redox conditions, which were different from the limestone bedrock (Laveuf et al., 2012; Brioschi et al., 2013). REE are therefore potentially suitable to characterize the origin of the NPC and SPM in karst systems. The interest of the REE over other fingerprinting methods (e.g. mineralogical or isotopic approaches) is that they can be analyzed by ICP-MS jointly with other trace metals without specific preparation or additional sample volumes, allowing monitoring at high temporal resolution and at reasonable costs.

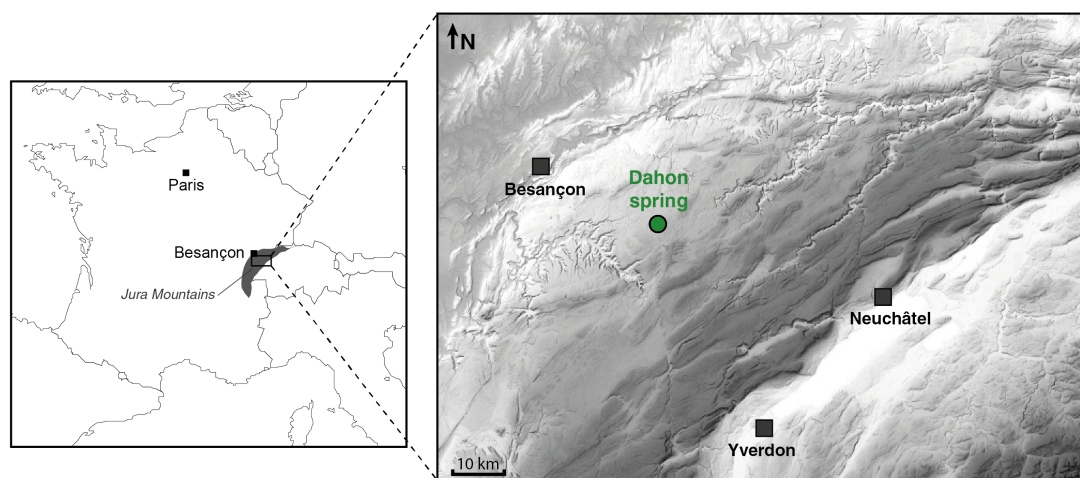
The aim of this paper is to quantify chemical fluxes related to dissolved and suspended matter during a flood event in a karst aquifer, using various natural tracers. We will first analyze the course of the flood on the base of classical hydrochemical tracers, i.e. major elements and organic carbon of filtered samples. We will then complete this scheme with trace metal and REE data for the filtered and the SPM fraction. The origin of the NPC and SPM will be discussed, completed in the last Section by a quantification of the metal fluxes related to the different fractions.

## 2. Study site and methods

### 2.1. Study site, field sampling and monitoring

The study site was the Dahon karst spring in the Jura Mountains in eastern France close to the village of Epenoy at an altitude of 720 m (Fig. V.1). It is a perennial spring used for drinking water supply with an average flow of 15.6 L/s (min. 0.4 L/s, max. 200 L/s). Water pH varied between 7.1 and 7.7. The site is located at the foot of a 30 m high cliff in a small blind valley cut into a plateau of Upper Jurassic limestone (Kimmerdigian) and delimited at its base by a laterally continuous, about 1-2 m thick clay layer, which acts as aquiclude.

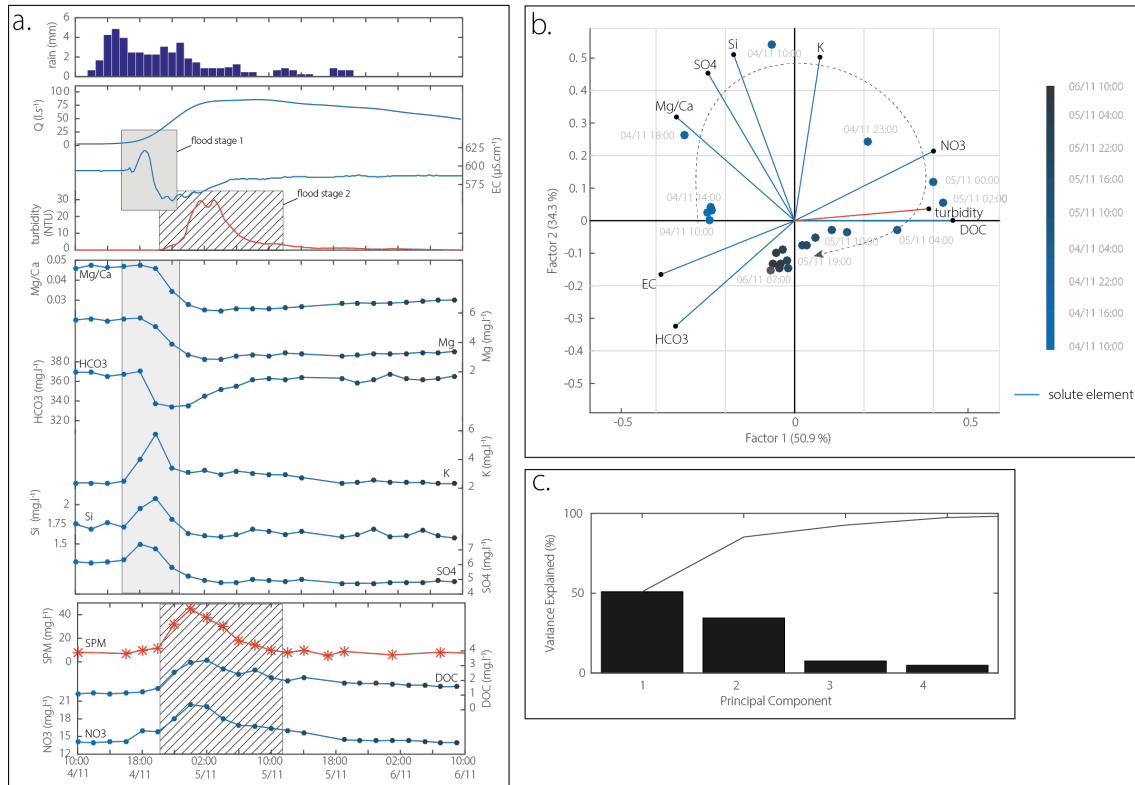
The recharge area on the plateau covers about 1 km<sup>2</sup> and is mainly covered by grassland and some forest. Swallow holes and large dolines are absent in the infiltration zone, suggesting that the site is an unary system mainly recharged by diffuse infiltration. The mean annual precipitation is about 1400-1500 mm/year and the mean annual temperature 9.5°C (Meteo France).



**FIGURE V.1** – Location of the Dahon spring next to the village of Epenoy

The flood event of November 4, 2014 was triggered by a continuous rainfall event of 46 mm within 30 hours after 13 days without rain (Fig. V.2). Flood monitoring in 2 h intervals began on November 3 at 4 pm until November 7 at noon (47 samples), and was continued in 3 h intervals until November 10 at 9 am (23 samples). However, in the following only the samples from November 4, 10 am to November 6, 9 am will be used (23 samples, Table 1). Water samples were collected with an automatic sampler (Teledyne ISCO) with 24 PE bottles previously rinsed with distilled water. For rainfall, hourly data of the Meteo France station of Epenoy were used, located 0.7 km E of the experimental site. Water level, water temperature and electrical conductivity were monitored at 15-minute intervals with a CTD probe (OTT Hydromet), and turbidity with a Ggun FL-30 field fluorimeter at the same frequency.

Soil and rock samples were collected in direct vicinity of the sampling site for comparison with the flood water samples. Soil samples included pasture soil, forest soil, and the infill of a karst pocket. In order to characterize bedrock composition, massif limestone beds and marly limestone interbeds were sampled. For each lithology 3 subsamples were taken and analyzed separately.



**FIGURE V.2** – Evolution of rainfall, discharge, physico-chemical parameters, major element and DOC concentrations of 0.22  $\mu\text{m}$  filtered samples during the flood event (a), together with the corresponding PCA diagram of the individuals (b) and the contributions of the individual factors (c).

## 2.2. Analytical methods

The samples were filtered within 48 hours in the laboratory using mixed cellulose ester membranes of 47 mm diameter with a pore size of 0.22  $\mu\text{m}$  (Millipore GWSP) and a Nalgene polysulfone filtering unit with an electric vacuum pump. Each filter was rinsed with 150 mL of ultra-pure water prior to filtering. We will call the 0.22  $\mu\text{m}$ -filtered fraction "dissolved fraction" in the following. However, it has to be kept in mind that this fraction does not only contain really dissolved ions ( $< 5 \text{ nm}$ ), but also poorly-soluble elements sorbed on nanoparticles and colloids (NPCs) with a hydrodynamic diameter  $< 0.22 \mu\text{m}$  (Atteia et al., 1998; Vesper and White, 2003; Gaillardet et al., 2003; Goldscheider and Drew, 2007).

In addition to the  $< 0.22 \mu\text{m}$  dissolved fraction we also analyzed the  $> 0.22 \mu\text{m}$  suspended particulate matter (SPM) fraction of a selected series of samples by complete digestion of the filter membranes in a clean-lab. The filters were dried after filtering at 40°C and the SPM weight was determined by subtracting the weight of the empty filter prior to filtering. For chemical analyses, one half of the filters was ashed in Savillex Teflon vials at 200°C, completely dissolved in sub-boiled distilled 15 M HNO<sub>3</sub> and HF 40% of supra pure quality (Merck), evaporated, and finally redissolved in 30 ml of 0.5 M HNO<sub>3</sub> for ICP analysis. The absolute SPM elemental concen-

trations were calculated by multiplying the analyzed concentrations with the 30 mL of solution volume and normalized to the particle weight contained in the filter half. Filter blanks were determined by digestion of 3 new filters of the same batch. The average elemental concentrations of these blanks were compared with the average values obtained for the 21 SPM analyses. The results showed that the filter membranes contained astonishingly high concentrations of trace elements and that the blank contributions represented more than 10% of the analyzed SPM loads for the following elements : Ba, Cd, Co, Cr, Eu, La, Mn, Mo, Na, Ni, Pb, S, Sc, Sn, Sr, U. These elements were therefore omitted, the SPM data presented in Table 2 contain only elements with blank contributions < 10%. The high blank contributions from the filters were probably also responsible for the anomalously high concentrations of La and Eu of the filtered samples. Therefore no La and Eu data are presented for the dissolved fractions.

The soil and bedrock samples were leached with distilled water in order to simulate water/soil interaction under controlled conditions according to the standard procedure AFNOR W31-210. 2 g of sample were continuously agitated during 24 h in 20 mL of distilled water in 50 mL centrifuge tubes. Afterwards the samples were centrifuged, the supernatant was filtered, acidified and analyzed according to the same procedure as the spring water samples.

All chemical analyzes were performed at the Chrono-Environnement institute (CNRS-University of Burgundy/Franche-Comté, Besançon, France). Major cations and trace elements were determined by ICP-AES (Thermo iCap 6500) and ICP-MS (Thermo Xseries 2), respectively, with a precision of <math>\pm 10\%</math>. Anion analyses of  $\text{SO}_4$ ,  $\text{NO}_3$ , and Cl were performed by HPLC (Dionex DX 100) with detection limits of 0.1 ; 0.05 and 0.1 mg/L, respectively. The  $\text{HCO}_3$  concentrations were determined by acidic titration with 0.02 M  $\text{H}_2\text{SO}_4$  within 48 hours after sampling. Organic carbon was analyzed by catalytic combustion using an Elementar vario TOC cube. All ionic balances were better than 5%, validating sampling and chemical analyses.

### 2.3. Presentation of Rare Earth Element data

A short introduction to the geochemistry of REE for readers not familiar with this tracer is given here. For a more detailed presentation the reader is referred to the recent outline of Brioschi et al. (2013). The REE include the lanthanide group and yttrium. REE data are typically presented as distribution patterns with the individual REE, listed in the order of their atomic number, as categories on the x-axis and with the corresponding concentrations as normalized logarithmic values on the y-axis. For surface environments the REE are typically normalized to average upper continental crust (UCC). We use in the present study the PAAS standard (Post Archean Australian Shales ; Taylor and McLennan, 1985), which is the most commonly used standard for UCC normalization.

The REE series can be separated into three sub-groups : the light REE (LREE, La-Sm), the medium REE (MREE, Eu-Td) and the heavy REE (HREE, Dy-Lu). Specific peaks of REE distribution patterns are called "anomalies". Commonly occurring anomalies are Cerium anomalies and Europium anomalies, which are quantified by  $\text{Ce}/\text{Ce}^*$  and  $\text{Eu}/\text{Eu}^*$  ratios, respectively. These ratios basically compare normalized Ce and Eu sample concentrations with  $\text{Ce}^*$  and  $\text{Eu}^*$  values, which are interpolated "reference" values based on the measured concentrations of the neighbor elements of Ce and Eu, respectively. In the present paper we will only use  $\text{Ce}/\text{Ce}^*$  values, which are usually calculated by the formula (McLennan, 1989) :

$$\text{Ce}/\text{Ce}^*_{PAAS} = \frac{3 \text{Ce}_{PAAS}}{2 \text{La}_{PAAS} + \text{Nd}_{PAAS}} \quad (\text{V.1})$$

with the subscript "PAAS" standing for PAAS-normalized values and the term "2 La + Nd" in the denominator corresponding to the interpolated value for  $\text{Ce}^*$ . However, in the present case we

could not apply this formula because of the high filter blanks for La (Section 2.2). An alternative formula based on Nd and Pr concentrations was used instead (Zhou et al., 2008, 2012) :

$$\text{Ce}/\text{Ce}_{PAAS}^* = \frac{\text{Ce}_{PAAS}}{2 \text{Pr}_{PAAS}^2 / \text{Nd}_{PAAS}} \quad (\text{V.2})$$

Anomalies with  $\text{Ce}/\text{Ce}^*$  ratios  $> 1$  appear as positive peaks in a REE pattern and are therefore referred to as "positive anomalies", whereas  $\text{Ce}/\text{Ce}^* < 1$  yield negative peaks and are called "negative anomalies".

Cerium anomalies are related to the specific redox behavior of Ce in surface environments. Under oxidizing conditions Ce does not occur in trivalent form as the other REE, but as insoluble  $\text{Ce}^{4+}$ , fixed in most cases in Fe-Mn oxyhydroxides (Henderson et al., 1984; Braun and Pagel, 1990; Brioschi et al., 2013; Laveuf et al., 2012). This leads during soil/water interaction to preferential retention of Ce in Fe-Mn oxyhydroxide bearing soil particles and to depletion of Ce in the corresponding soil water fraction. As a result, waters having interacted with Fe-Mn oxyhydroxide bearing soils under oxidizing conditions will be characterized by negative Ce-anomalies, whereas the Ce-anomaly of the corresponding soil will be positive, and become more and more accentuated with ongoing water/soil interaction. Negative Ce-anomalies of surface and groundwaters becoming less negative during floods may fundamentally reflect shorter water/soil interaction, or admixture of Fe-Mn oxyhydroxide particles with positive anomalies. In most cases such diminishing negative Ce-anomalies are coupled with increasing total REE concentrations, showing that the latter case is the most common one. The admixed particles may be in the NPC or SPM size fraction, depending whether the trend was observed in the dissolved or in the SPM fraction (Steinmann and Stille, 2008).

The total REE concentration of a sample is often described in the literature by the sum of the individual REEs ( $\Sigma\text{REE}$ ). However,  $\Sigma\text{REE}$  values are strongly influenced by the anomalous behavior of specific REE such as Ce or Eu. We will therefore use the concentrations of neodymium (Nd) rather than the  $\Sigma\text{REE}$  because they give a more reliable measure for the overall REE content of a sample.

### 3. Results

#### 3.1. Physico-chemical parameters and major elements

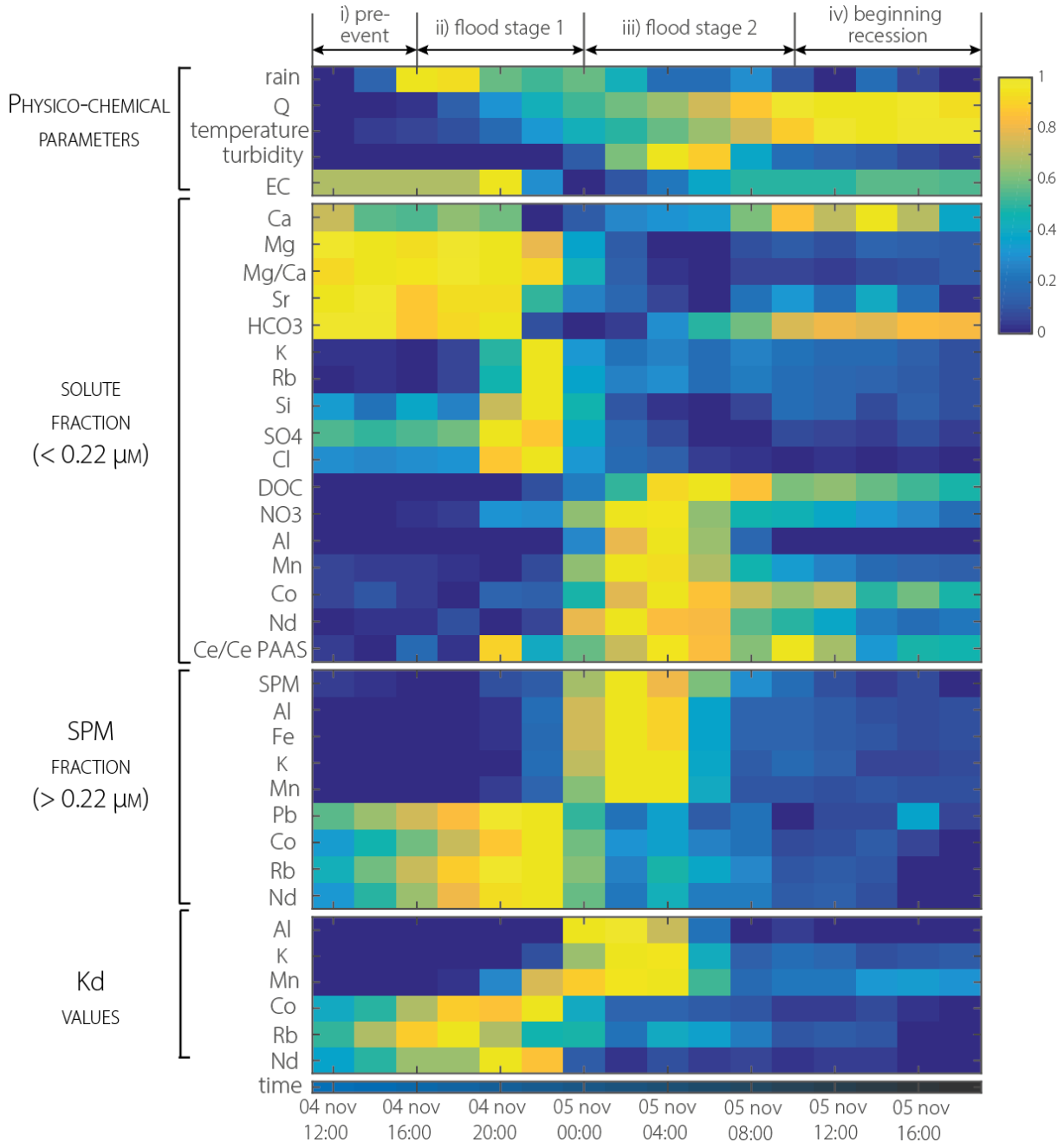
The evolution of rainfall, discharge, physico-chemical parameters, major elements and DOC concentrations of 0.22  $\mu\text{m}$  filtered samples during the flood event are shown in Fig. V.2a. The evolution was characterized by a positive peak for electrical conductivity (EC) occurring 7 hours after the beginning of the rain event. This EC peak was synchronous with positive peaks for K, Si, and  $\text{SO}_4$  and marked the beginning of discharge increase, leading almost immediately to decreasing  $\text{HCO}_3$  concentrations and Mg/Ca ratios. This first series of peaks and shifts are marked in Fig. V.2a by a grayed field. They were followed by positive peaks for turbidity, suspended matter, dissolved organic carbon (DOC), and nitrate (hatched field in Fig. V.2a).

This succession of 2 distinct stages is also shown by the PCA of the individuals (Fig. V.2b). The secondary axis, explaining 35% of the variance, is related to Si,  $\text{SO}_4$ , K, and high Mg/Ca ratios and represents flood stage 1. The primary axis, explaining 50% of the variance, is related to turbidity, DOC and  $\text{NO}_3$  and corresponds to flood stage 2. It distinguishes the event infiltration water (high DOC and  $\text{NO}_3$  contents) of the flood stage 2 from the pre-event water with high Mg/Ca ratios and  $\text{HCO}_3$  concentrations (negative correlation). The individual samples start to shift towards stage 1 after 24 hours, followed after 30 hours by a second shift towards stage 2.



### 3.2. Trace elements

Figure V.3 presents a synthesis of the temporal evolution of the dissolved and particulate trace element concentrations and compares them with the data presented in in Fig. V.2. Each line of the figure corresponds to a color-coded normalized parameter varying between 0 (dark blue, minimum) and 1 (bright yellow, maximum).



**FIGURE V.3** – Synthesis of the evolution of rainfall, discharge, physico-chemical parameters, and the chemical composition of the solute and the particulate fraction during the flood event, expressed as normalized values (from 0 in dark blue color to 1 in bright yellow). The lowermost block shows the SPM/dissolved load partition coefficients  $K_d$  for elements analyzed in both fractions.

The representation in Fig. V.3 allows to subdivide the flood into 4 intervals according to the yel-

low peak zones : i) pre-event conditions with high EC, Mg, Sr,  $\text{HCO}_3$  and Mg/Ca, ii) flood stage 1, iii) flood stage 2 (as defined in Section 3.1), and iv) peakflow and beginning of the recession period. Figure V.3 shows that the peak concentrations of some elements of the dissolved and the SPM fractions were related to flood stage 1, whereas others achieved highest concentrations during stage 2. For the dissolved fraction only Rb and Sr were related to stage 1, whereas all other trace elements (Al, Mn, Ni, Co, Nd) showed highest concentrations during stage 2. For the SPM fraction Rb, Cr, Co, Pb, Nd were related to stage 1 and K, Al, Fe, and Mn to stage 2.

Figure V.4 shows a PCA analysis for the trace element data of the SPM fraction, which reaffirms the existence of two flood stages of the SPM fractions. It shows that the trace elements of stage 1 (Rb, Cr, Co, Pb, Nd) were positively correlated with dissolved Mg/Ca, whereas K, Al, Fe, and Mn of stage 2 were correlated positively with dissolved  $\text{NO}_3$ , turbidity, and DOC. The individual samples described a counterclockwise loop going first to stage 1 and then to stage 2.

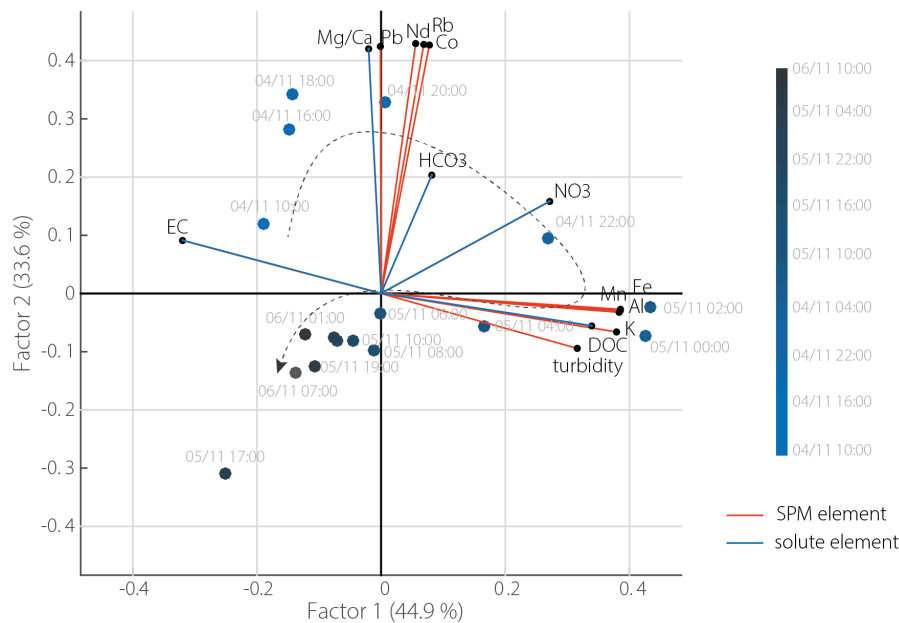


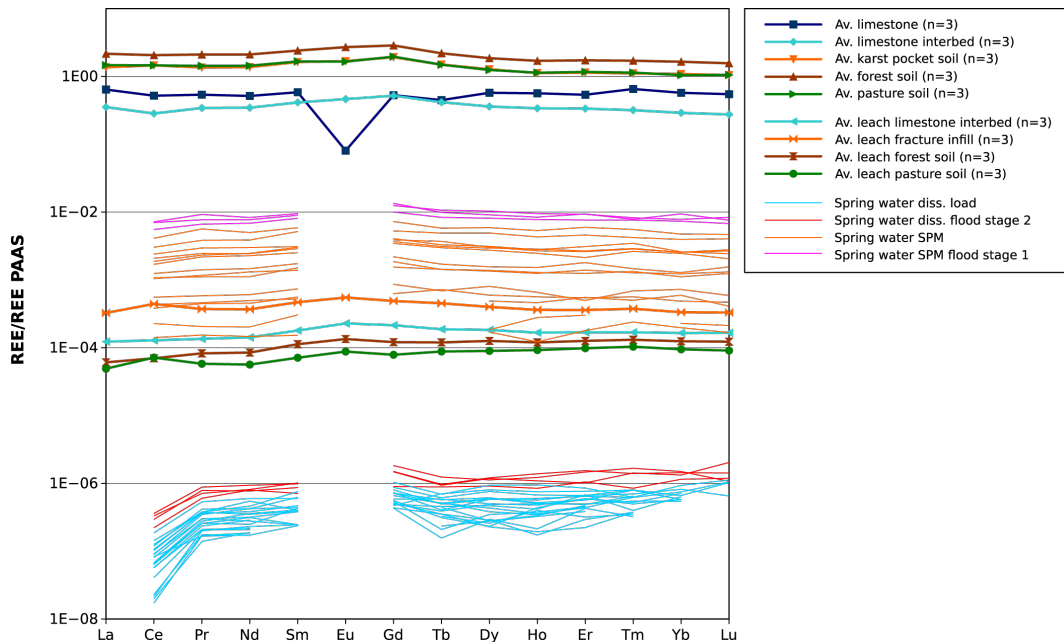
FIGURE V.4

### 3.3. Rare Earth Elements (REE)

The REE concentrations of the dissolved fraction, monitored by Nd, achieved their highest concentrations like most other trace elements of the dissolved fraction during flood stage 2, which was also characterized by elevated DOC and  $\text{NO}_3$  concentrations (Fig. V.3). The PAAS-normalized REE patterns of the dissolved fractions had negative Ce anomalies with Ce/Ce around 0.1 at the beginning of the flood (Figs V.5-V.6). Towards the flood peak the anomalies became less negative, reaching values above 0.5. This evolution was thus identical as for Nd concentrations, showing that the REE of the dissolved fraction arriving at the karst spring during flood stage 2 were derived from a REE source with less negative Ce anomalies than pre-event water.

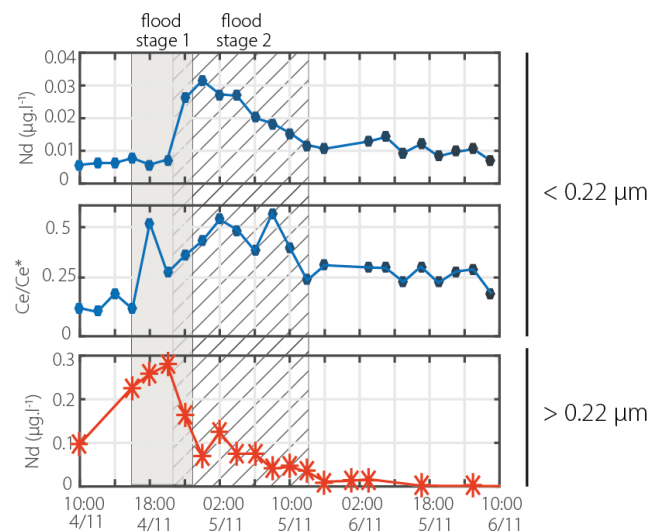
The REE concentrations of the SPM fraction were about 10-fold higher than for the dissolved fraction. The PAAS-normalized REE patterns were almost flat and had, in contrast to the dissolved fraction, no negative Ce-anomaly (Fig. V.5). This flat shape of the REE patterns did not evolve during the flood peak. In contrast, the Nd concentrations of the SPM fraction showed

as the dissolved fraction a clear peak, which however appeared not like the dissolved fraction during flood stage 2, but during flood stage 1 (Fig. V.6), together with Rb, Cr, Co, Pb of the SPM fraction (Fig. V.3).



**FIGURE V.5** – Upper Continental Crust (PAAS) - normalized REE distribution patterns of spring water, soil and rock samples. The soil and rock leachates are laboratory batch leachates with distilled water. All soil and rock data are average values from 3 subsamples. No La and Eu data are given for spring water samples because of the filter blank problem mentioned in Section 2.2. The SPM fractions reach highest REE concentrations during flood stage 1 (patterns in pink), and the dissolved fractions during flood stage 2 (patterns in red). The REE patterns of the SPM fractions remain always flat, thus similar to soil. In contrast, the dissolved spring water fractions have less negative Ce-anomalies during flood stage 2, indicating a stronger contribution of soil-derived REE.

In order to compare the REE patterns of spring water with potential REE sources, samples of local limestone, limestone interbeds, and soils were analyzed. The averaged REE patterns of the bulk analyses of these samples are presented in Fig. V.5, together with distilled water-leachates of the soil samples and limestone interbeds. The patterns of the PAAS-normalized bulk samples were flat, except the limestone who showed negative Eu-anomalies. Some leachates were slightly enriched in the middle REE. The patterns of the distilled water-leachates were like the bulk samples almost flat.



**FIGURE V.6** – Evolution of Nd concentrations and Ce-anomalies of the dissolved spring water fractions, and of Nd concentrations of the particulate fractions during the flood event.

## 4. Discussion

### 4.1. Contributions of pre-event and event water

The flood event was characterized by two stages with contrasted hydro-chemical signatures. The first stage with high values for EC, K, Si, and  $\text{SO}_4$  occurred at the beginning of discharge increase. At the same time Mg/Ca ratios and  $\text{HCO}_3$  concentrations started to decrease (Fig. V.2). High Mg and  $\text{HCO}_3$  concentrations are like elevated Mg/Ca ratios good indicators for long residence-time karst water (Batiot et al., 2003; Celle-Jeanton et al., 2003; Binet et al., 2006), suggesting that the first peak corresponded to pre-event water pushed out of the system at the beginning of the flood by piston-effect. This pre-event water was enriched in well soluble ions such as K, Rb, Sr, Si, and  $\text{SO}_4$ . Flood stage 2 occurred just before maximum discharge and was characterized by high SPM load and turbidity, and high DOC and  $\text{NO}_3$  concentrations, which is typical for event water from rapid surface infiltration (Mudarra et al., 2014).

Flood stages 1 and 2 thus reflect the classical scheme for flood events in karst aquifers with pre-event water expelled by piston-effect at the beginning of the flood, followed by event water from surface infiltration (White, 2002). In our study case, pre-event water represented only 5% of the total flood flow, showing that piston-type flow is a minor process compared to surface infiltration. Even if pre-event/event water contributions may vary with time according to hydrological conditions (Charlier et al., 2012), this contribution of pre-event water is beneath literature values, where typical values from 20 to 100% are given (Lee and Krothe, 2003; Aquilina et al., 2006; Charlier et al., 2012).

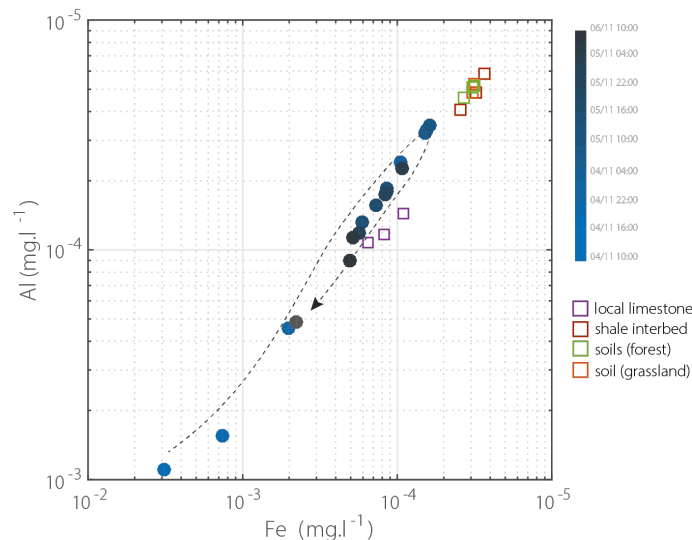
### 4.2. Origin of SPM and NPC hosted trace elements

The SPM peaks of flood stages 1 and 2 had distinct chemical signatures. SPM peak 1, rich in Pb, Co, Rb and Nd, arrived together with pre-event water, suggesting that these particulates were of autochthonous origin. It has to be underlined that this SPM peak appeared only in the chemical data and was not visible in the SPM load and turbidity data (Fig. V.2). However, the contribution of pre-event water to total flood flow was, as shown in Section 4.1, beneath literature values. It can therefore be expected that the relative contribution of SPM peak 1-hosted trace elements may be higher in other karst aquifers.

The SPM associated with flood stage 2 had high concentrations of Al, Fe, Mn, and K. Particulate Al and K in soils are usually derived from clay particles, whereas Fe-Mn oxyhydroxides are a common source for particulate Fe and Mn (Steinmann and Stille, 1997; Brioschi et al., 2013). Therefore we interpret the concentration peaks of Al, Fe, Mn, and K of SPM peak 2 by the arrival of allochthonous Fe-Mn oxyhydroxide and clay particles washed out from the soils of the infiltration zone, together with dissolved organic carbon and nitrate, leading at the same time also to high SPM loads and turbidity values. This relation between SPM and soil particles is corroborated by Fig. V.7, which shows that the Fe and Al concentrations of SPM approached progressively values typical for local soil during flood stage 2.

Simultaneously with SPM peak 2 occurred peaks for Al, Mn, Ni, Co, and Nd in the dissolved fraction (Fig. V.3). These elements are poorly soluble trace metals and their presence in the dissolved fraction at basic pH is indicative for the presence of NPCs (Atteia, 1992; Vesper and White, 2003; Gaillardet et al., 2003; Andersson et al., 2006; Dahlqvist et al., 2007; Göppert and Goldscheider, 2008). The synchronous arrival of these NPCs and with SPM peak 2 suggests that the NPCs represented essentially the fine fraction of SPM and that both were together washed out from the soils. This hypothesis is ascertained by the evolution of the Ce-anomalies of the NPC load. The Ce/Ce\* values were correlated with Nd concentrations, showing that the REE of the dissolved fraction were controlled by binary mixing between pre-event water with strong negative Ce-anomalies ( $\text{Ce}/\text{Ce}^* \approx 0.1$ ) and a REE end-member with  $\text{Ce}/\text{Ce}^* > 0.6$ , i.e.

most probably local soil (Figs. V.5 V.6). Hartland et al. (2012) showed similarly in dripwaters of karst caves that soil-derived NPCs and SPM appeared simultaneously in karst caves during flood events, and that the soil-derived NPCs were mainly composed of Fe-bearing humic-like organic matter, which is a well-known vector for trace element transport in aquatic systems (Dahlqvist et al., 2007; Pokrovsky et al., 2016).



**FIGURE V.7** – Fe and Al concentrations of the SPM load compared with local rock and soils. The SPM samples reach highest Al and Fe concentrations during flood stage 2, approaching values typical for soils and shale interbeds.

In summary, our data document the existence of 2 distinct SPM peaks. The first peak was composed of autochthonous particulates, whereas the second peak contained allochthonous, soil-derived SPM. The SPM peak 2 was in contrast to peak 1 accompanied by trace element-bearing NPCs, which can be considered as the fine fraction of SPM. Based on turbidity data, a similar succession of autochthonous and allochthonous SPM peaks has already been described in the literature for karst systems with localized surface recharge – i.e. binary karst systems (Massei et al., 2003; Pronk et al., 2007, 2009b). Our data thus document a similar behavior for a unary system, i.e. a karst system without localized infiltration from a surface watershed, but recharged only by diffuse infiltration. The first SPM peak was in our case not visible in the turbidity record, but only in the chemical composition of the SPM fraction. This difference is probably due to the lower intensity of the remobilization of autochthonous particles, due to a slower head increase after recharge.

### 4.3. Origin of the chemical load of autochthonous SPM

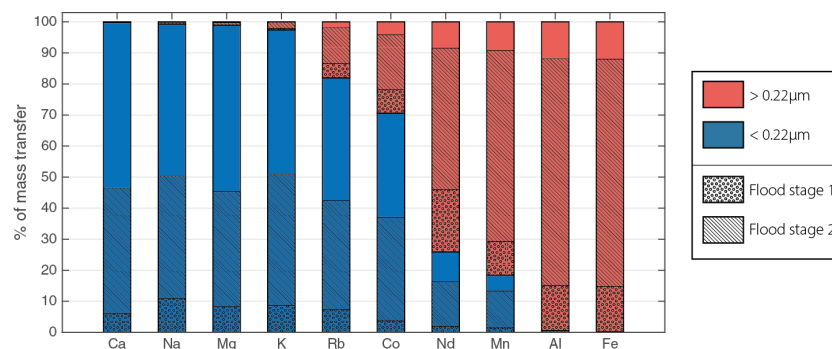
The chemical load of the autochthonous SPM peak 1 can basically be derived from allochthonous particulates deposited during previous floods or result from internal dissolution/precipitation processes during groundwater seepage through the micro-fractured rock matrix (Friedrich et al., 2011; Friedrich and Catalano, 2012; Vesper and White, 2003b; White et al., 2009). Oxyhydroxides are in both cases the main trace element carrier phase. Seep deposits are mainly composed of authigenic Fe and Mn oxyhydroxides, whereas cave stream deposits may contain soil-derived detrital Fe-Mn oxyhydroxides and authigenic Mn oxides, but no authigenic Fe-oxides (Friedrich et al., 2011).

Dissolution/precipitation processes of Fe-Mn oxyhydroxides during groundwater seepage are lar-

gely controlled by changing redox conditions. Under such conditions, REE distribution patterns are strongly fractionated, leading in particular to strongly positive or negative Ce-anomalies (see Section 2.3; Feng, 2011, 2010; Zhou et al., 2012). The REE distribution patterns observed in our case for SPM peak 1 are flat and there is no difference with respect to local soil (Fig. V.5). This demonstrates that the chemical load of SPM peak 1 is not derived from seep deposits, but from reworking of soil-derived allochthonous particulates from previous floods. However, SPM peak 2, which we have related to soil particles mobilized by surface infiltration, contained mainly Al, Fe, Mn and K, but only little REE. But SPM peak 2 was accompanied by a REE-rich NPC fraction. We therefore propose that the reworked autochthonous particulates of SPM peak 1 corresponded to soil-derived NPCs from previous floods, whose particle size increased to  $> 0.22 \mu\text{m}$  during the stay in the cave stream sediments.

#### 4.4. Trace element partitioning between "dissolved" and particulate fractions

Figure V.8 shows the partitioning of the trace metals between the dissolved and the SPM fractions during the flood event, together with the typically soluble major cations (Na, K, Ca, Mg) for comparison. The values are based on total fluxes integrated over the entire flood event. The diagram furthermore details the proportions of element transport related to flood stages 1 and 2.



**FIGURE V.8** – Partitioning of elemental transfers between the  $< 0.22 \mu\text{m}$  dissolved (in blue) and the  $> 0.22 \mu\text{m}$  SPM fraction (in red). The values are based on total fluxes integrated over the entire flood event. Note that the "dissolved" fractions of Cd, Nd, Mn, and Al are not really dissolved but related to NPCs. The portions of mass transfer related to flood stages 1 and 2 are superposed as hatchures. Flood stage 1 lasted from 04/11/2014 16h00 to 04/11/2014 23h00, flood stage 2 from 04/11/2014 23h00 to 05/11/2014 12h00.

The major cations were indeed almost entirely transported as dissolved ions. They were continuously present during the entire flood event, flood stages 1 and 2 represented less than 50% of the total fluxes of these elements. Only a few percent of K and some Mg were related to the SPM fraction of flood stage 2. Aluminum and iron showed, with respect to the major cations, a completely opposite behavior. They were exclusively transported by the SPM fraction, mainly during flood stage 2, demonstrating that the transport of these elements was entirely controlled by soil particles. The  $K_d$  values of Al were therefore highest during flood stage 2 (Fig. V.3). For Fe no  $K_d$  values are available, because the concentrations in the  $< 0.22 \mu\text{m}$  fraction were beneath detection limits.

The trace elements Rb, Co, Nd, and Mn showed an intermediate behavior. The SPM fraction was most important for Mn, followed by Nd, Co, and Rb. The  $K_d$ -values of Mn reached maximum values during flood stage 2, suggesting that Mn was like Fe and Al strongly controlled by soil particles. In contrast, the  $K_d$  values of Rb, Co and Nd were highest during flood stage 1, showing

that they were primarily related to autochthonous particles. However, figure V.8 also shows, that considerable amounts of Rb, Co, Nd, and Mn were related to the  $<0.22 \mu\text{m}$  fraction, which we interpret, as discussed in Section 4.2, by the arrival of soil-derived NPCs during flood stage 2.

## 5. Conclusions

The aim of the present paper was to quantify chemical fluxes over time related to dissolved and suspended matter during a flood event in a karst aquifer, using various natural tracers. The combined utilization of major, trace, and rare earth elements (REE) allowed us to identify the origin of the suspended particulate matter (SPM) during two subsequent flood stages. The SPM peak of flood stage 1, corresponding to autochthonous sediments mobilized at the beginning of the flood, contributed to up to 20% of the total mass balance for some trace metals such as Al, Fe, and REE, in spite of the fact that the SPM weight and the turbidity related to this fraction was negligible. In contrast, SPM peak 2 appeared as a clear peak in the SPM weight and turbidity record. SPM peak 2 was associated with event infiltrated water and its chemical composition was typical for soil particles. However, many trace elements of flood stage 2 were not related to SPM, but to the  $<2 \mu\text{m}$  dissolved fraction. We suggest, that these trace elements were not really dissolved, but sorbed on nanoparticles and colloids (NPCs), which had passed the filter membranes. The Ce/Ce\* values of this NPC fraction approached values typical for local soil, showing that the NPC were mobilized in the soils together with the SPM. The REE distribution patterns of SPM peak 1 were flat and similar to local soil and marly limestone interbeds, suggesting that the autochthonous SPM of peak 1 were not derived from authigenic seep deposits, but simply reworked allochthonous particulates from previous floods or from marly limestone interbeds. The REE distribution patterns thus allowed to identify the origin of the trace elements, and to exclude seep deposits as a significant source for autochthonous SPM. A similar succession of autochthonous and allochthonous SPM peaks was already known for karst systems with localized surface recharge, but our data document to our knowledge for the first time a similar behavior for a karst system recharged only by diffuse infiltration. In conclusion, our study demonstrates that NPCs and SPM are important transport vectors for trace metals in karst aquifers and that they should therefore systematically be included in future studies.

## Acknowledgements

The authors wish to thank Bruno Régent for his active contribution during fieldwork. We would also like to thank the municipality of the village of Epenoy for giving access to their drinking water supply station. The Jurassic Karst hydrogeological observatory is part of the INSU/CNRS national observatory for karstic aquifers, SNO KARST (<http://www.sokarst.org/>). The present paper profited from fruitful discussions with various colleagues of this network. This work was carried out with the financial support of the Regional Council of Burgundy/Franche-Comté and the French Geological Survey BRGM, which is kindly acknowledged.



# Influence du type de recharge sur les transferts dissous/particulaires

## Résumé

Ce chapitre présente des résultats préliminaires et complémentaires au chapitre précédent. Il tente d'identifier les mécanismes liés aux transports d'éléments dissous, colloïdaux et particulaires. Il compare l'évolution de la fraction filtrée ( $< 0.22 \mu\text{m}$ ) et de la fraction particulaire ( $> 0.22 \mu\text{m}$ ) des éléments traces métalliques (ETM) au cours de la crue de juin 2015 sur les systèmes de Fourbanne et du Dahon. Les ETM apparaissent alors comme des sources d'informations riches pour caractériser les différents mécanismes de recharge et de transport.

## Structure

1. Problématique et cadre d'application . . . . .	120
2. Protocole d'analyse de la fraction totale. . . . .	120
3. Bilan des transferts . . . . .	120
4. Dynamique dissous/particulaire . . . . .	122
5. Discussion . . . . .	125

## 1. Problématique et cadre d'application

Nous avons déjà pu observer des dynamiques distinctes en terme de transport dissous au cours de la crue de juin 2015 pour les sources du Dahon et de Fourbanne ainsi que la rivière souterraine de Fontenotte. Ce chapitre tente ici d'identifier leurs relations avec les arrivées particulières au cours de cette même crue et de déchiffrer certains mécanismes. Les variations de débits sont extrêmement faibles à la source du Dahon tandis que l'onde de crue observée sur le système de Fourbanne montre des variations beaucoup plus importantes comparativement à l'état initial du système. Ceci s'explique bien évidemment par la différence de taille des bassins mais également par des précipitations plus importantes sur le bassin de Fourbanne (total de 61 mm) comparé au bassin du Dahon (total de 36 mm). Les mesures de turbidité sont relativement faibles pour les sources du Dahon et Fourbanne avec respectivement des maximales de 2.8 NTU et 8 NTU. En revanche, la turbidité est élevée à la rivière souterraine de Fontenotte avec des mesures jusqu'à 50 NTU indiquant qu'elle est fortement marquée par la recharge allochtone des sous bassins marneux de Verne.

## 2. Protocole d'analyse de la fraction totale

L'analyse de la fraction particulaire, présentée dans le chapitre précédent, est réalisée à partir de la digestion complète des filtres 0.22  $\mu\text{m}$ . Afin, d'éviter d'éventuelles contaminations par les filtres<sup>1</sup>, il a été choisi pour les analyses concernant le suivi de crue de juin 2015 d'analyser la totalité de l'échantillon prélevé et de la comparer à la fraction inférieure à 0.22  $\mu\text{m}$ .

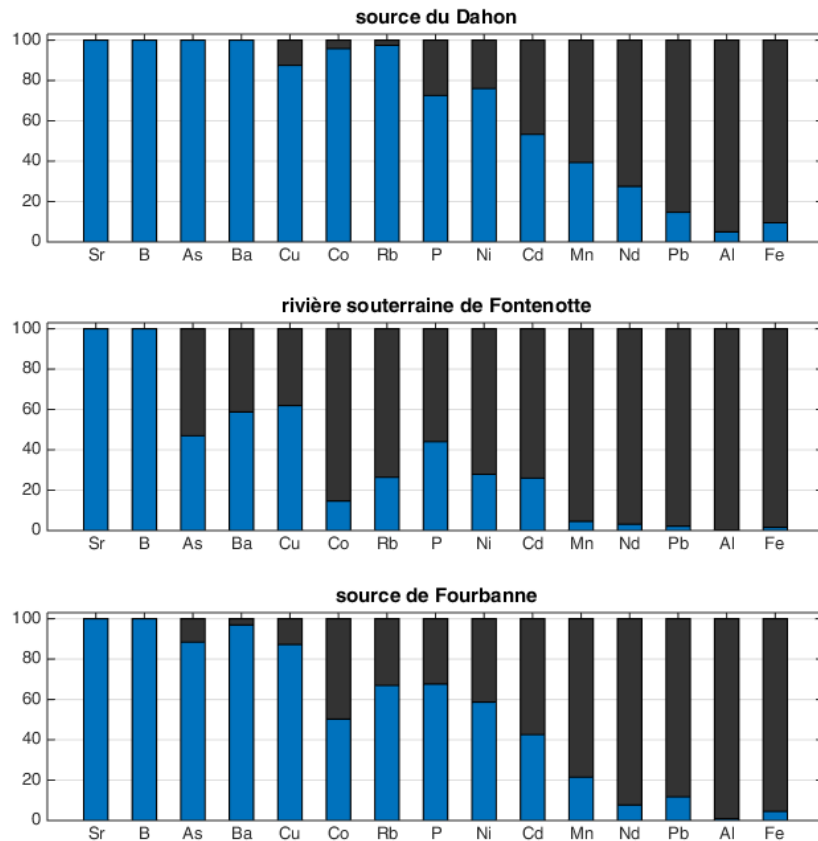
Les prélèvements sont dans un premier temps pesés puis séchés dans des tubes en téflon (Savillex) à 40°C . Les résidus sont ensuite digérés par  $\text{HNO}_3$  (15M) et HF (40% qualité supra pure) puis évaporés en plusieurs séries successives. Après digestion complète, ils sont redissous avec 30 ml de  $\text{HNO}_3$  (0.5M) pour l'analyse ICP. Les concentrations de la fraction totale sont ensuite définies en multipliant les concentrations analysées par le volume de la solution (30mL) et divisées par le volume de l'échantillon avant évaporation. On obtient alors des teneurs en  $\text{mg.L}^{-1}$  . Les concentrations de la fraction particulaire sont calculées en soustrayant les concentrations de la fraction inférieure à 0.22  $\mu\text{m}$  par les concentrations totales.

## 3. Bilan des transferts

Afin de faire un bilan des éléments transférés par la fraction inférieure à 0.22  $\mu\text{m}$  et la fraction supérieure à 0.22  $\mu\text{m}$  (définie ici comme fraction particulaire) les masses totales par élément sont calculées pour chaque fraction en intégrant les flux élémentaires instantanés au cours de la crue. Il est alors possible d'estimer le pourcentage de transfert par élément via les deux fractions et de comparer ces transferts pour les trois stations suivies (figure VI.1). La source du Dahon qui indique une turbidité relativement faible au cours de cette crue. On observe qu'un grand nombre d'éléments peu solubles (tels que Co, Cu, P et Ni) est transféré par la fraction inférieure à 0.22  $\mu\text{m}$ , ce qui laisse penser qu'ils sont transportés sous forme colloïdale. Pour les trois stations de mesures le Al, Fe et Mn sont essentiellement transférés par la fraction particulaire, en cohérence avec les résultats du chapitre précédent. La rivière souterraine de Fontenotte montre un plus grand nombre d'éléments transférés essentiellement par la fraction particulaire en raison d'une turbidité élevée au cours de cette crue et caractérisée sans doute par une gamme plus large de granulométrie et de composition des particules.

---

1. constatées pour l'analyse des filtres de la cure de novembre 2014 (cf. Chapitre V)

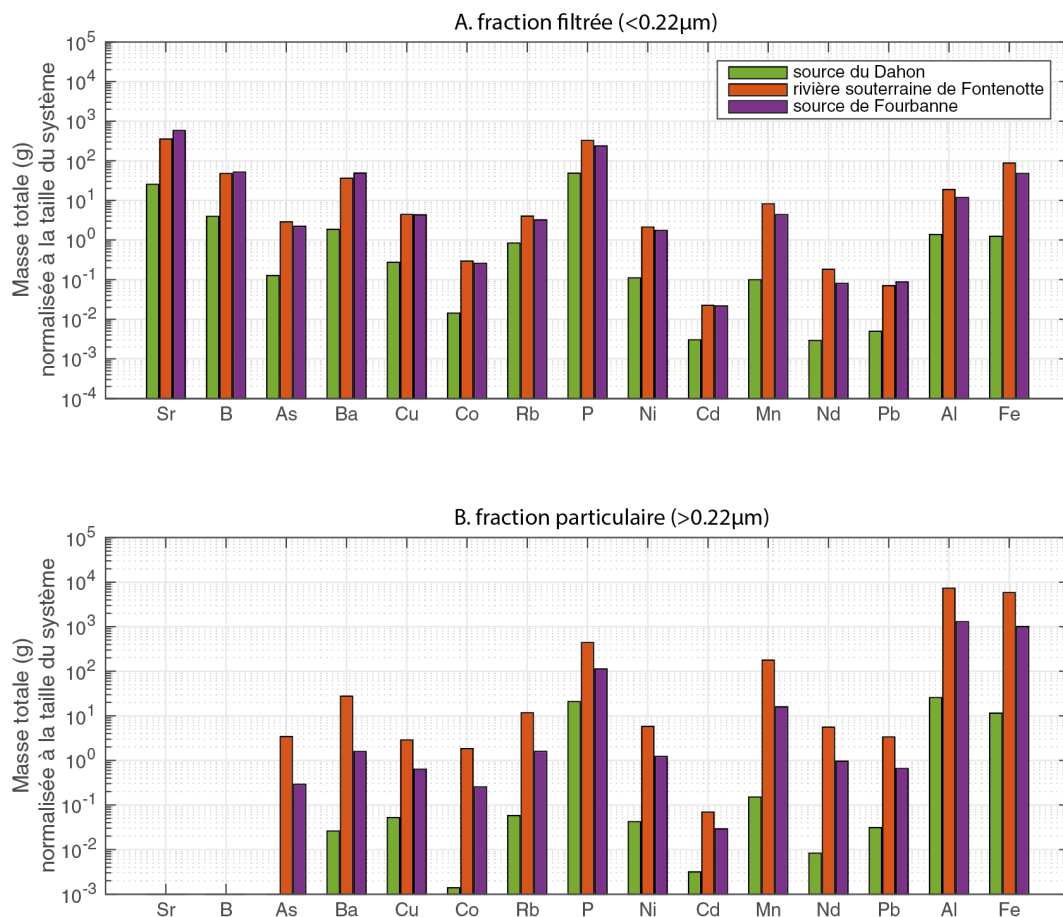


**FIGURE VI.1** – Pourcentage de transfert des ETMs par la fraction inférieure à  $0.22 \mu\text{m}$  sous forme dissoute ou colloïdale (en bleu) et par la fraction particulaire supérieure à  $0.22 \mu\text{m}$  (en gris)

Dans le but de comparer la masse totale transférée par la fraction particulaire pour les trois stations de mesures celle-ci est divisée par la surface totale du système correspondant ( $1 \text{ km}^2$  pour la source du Dahon et  $30 \text{ km}^2$  pour le système de Fourbanne). Si l'on regarde dans un premier temps la masse totale normalisée dissoute (figure VI.2(A.)), on observe des masses relativement proches entre les deux stations de Fontenotte et Fourbanne. Ce qui suggère qu'une majeure partie des éléments relargués par la fraction particulaire et transportés sous forme dissoute ou colloïdale ( $< 0.22 \mu\text{m}$ ) sont transportés jusqu'à l'exutoire, limitant le stockage interne dans le système.

En revanche, les masses totales de la fraction particulaire (figure VI.2(B.)) récupérées à la source de Fourbanne sont bien inférieures à celle mesurées dans la rivière souterraine de Fontenotte. Ces résultats suggèrent donc des phénomènes de sédimentation dans le conduit. Ces dépôts induisent donc un stockage important d'éléments traces métalliques dans le système de Fourbanne et qui pourront être remobilisés par la suite (Vesper and White, 2004).

La source du Dahon montre globalement des masses bien inférieures pour les deux fractions en lien avec des précipitations plus faibles mais également une recharge plus diffuse qui est susceptible de limiter le transport des éléments, comparé à des systèmes possédant une recharge localisée importante tels que le système de Fourbanne.

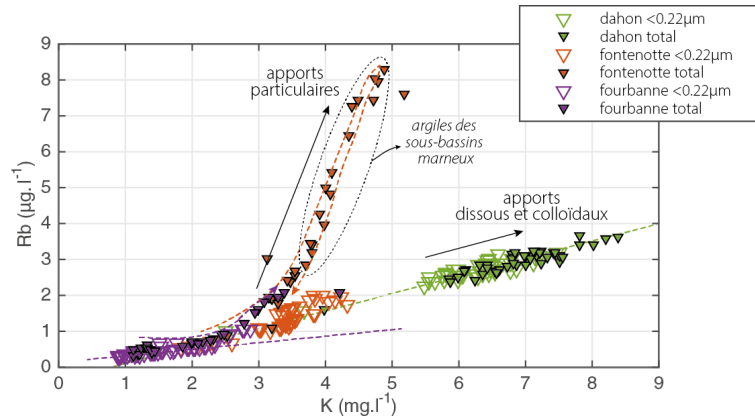


**FIGURE VI.2** – Masses totales transférées au cours de la crue de juin 2015 (a) via la fraction  $> 0.22\mu\text{m}$  et (b) la fraction totale, au cours de la crue du 14 juin 2015 à la source du Dahon (vert), rivière souterraine de Fontenotte (orange) et source de Fourbanne (violet)

#### 4. Dynamique dissous/particulaire

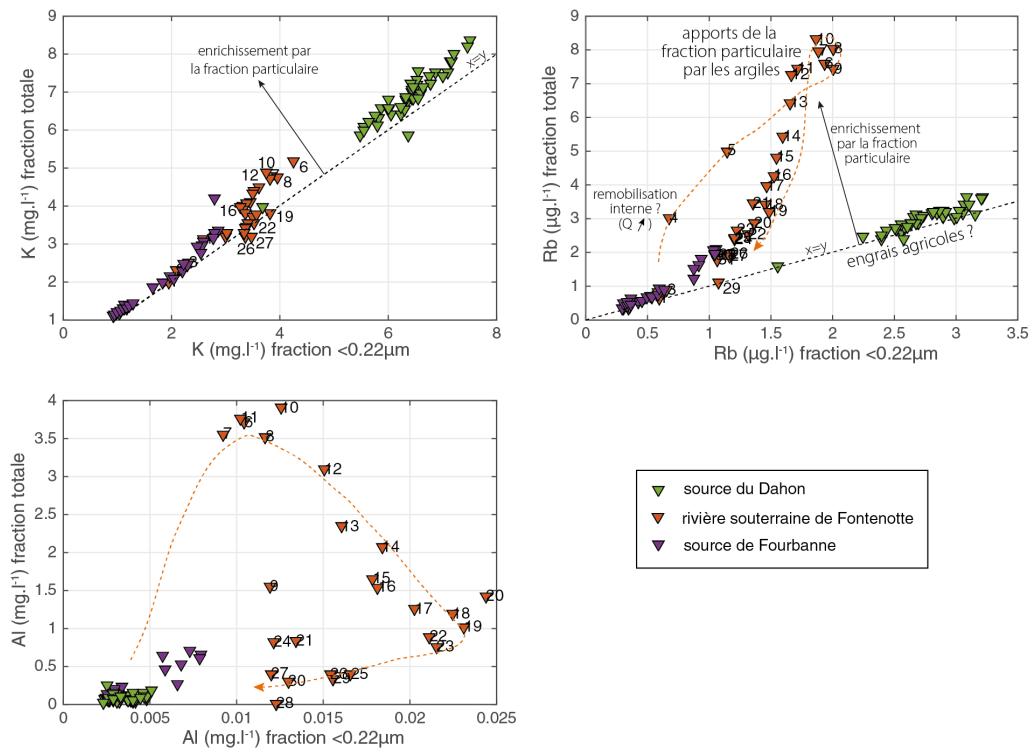
La relation entre K et Rb au cours des crues sur l'analyse de la fraction dissoute identifie des contributions distinctes (cf. Chapitre III). Le rubidium, qui présente un potentiel ionique faible, est un élément très bien soluble. Il indique des apports de la fraction particulaire importants dans la rivière souterraine de Fontenotte au cours de la crue. La figure VI.3 suggère que le décalage identifié dans la fraction filtrée (figure VI.3) et observé dans le chapitre 1 (figure III.21), est produit par l'arrivée des argiles en provenance des sous-bassins marneux via l'infiltration localisée. On dénote aussi les effets de ces apports à la source avec l'apparition simultanée des arrivées turbides et l'augmentation des teneurs en COD et  $\text{NO}_3$ .

A la source du Dahon, on ne remarque aucun décalage lié à l'arrivée de la fraction particulaire. Ces observations peuvent s'expliquer par le fait que le processus de recharge dominant est diffus et que la crue de juin 2015 reste une crue d'étiage qui n'a pas engendré d'arrivées particulières importantes. Ces arrivées présentant des teneurs élevées pour le potassium comme pour le rubidium et semblent donc confirmer le lien avec des apports anthropiques liées aux pratiques agricoles et à la faible épaisseur de sol sur ce petit bassin.



**FIGURE VI.3** – Relation entre K et Rb au cours de la crue de juin 2015 pour la fraction filtrée (<0.22µm) et la fraction totale (>0.22µm)

Si l'on met en relation les teneurs dissoutes et les teneurs totales mesurées, il est intéressant de noter certaines dynamiques au cours de la crue (figure VI.4). Le potassium qui est un élément très soluble est faiblement influencé par la fraction particulaire au cours de la crue. En revanche, le rubidium dénote une dynamique complètement différente entre les systèmes de Fourbanne et du Dahon. La source du Dahon montre que les apports de rubidium au cours de la crue sont sous-forme dissoute d'origine agricole. En revanche, sur le système de Fourbanne et en particulier à la rivière souterraine de Fontenotte, on remarque un enrichissement important de rubidium par la fraction particulaire provenant des sous-bassins marneux. Le rubidium semble donc pertinent pour différencier ces deux origines bien distinctes.



**FIGURE VI.4** – Dynamiques entre la fraction filtrée et la fraction totale au cours de la crue de juin 2015 pour le potassium, le rubidium et l'aluminium. Les numéros indiqués correspondent aux prélèvements successifs à la rivière souterraine de Fontenotte.

Enfin, l'aluminium indique dans un premier temps un enrichissement par la fraction particulaire puis, avec des concentrations très faibles, un transfert vers la fraction inférieure à  $0.22 \mu\text{m}$ , qui au vu de son potentiel ionique, correspond à de l'aluminium sous forme colloïdale. Cet effet d'hystérésis illustre des dynamiques de transport différentes entre la fraction particulaire et colloïdale. Plusieurs hypothèses permettent d'expliquer cette dynamique qui s'observe sur de nombreux autres éléments traces métalliques (cf. annexe C) :

- par des phénomènes de sédimentation progressive des particules dans le système au cours de la décrue et induisant donc le transport plus dispersé des colloïdes au cours de la crue ;
- par des arrivées d'origines différentes avec la fraction particulaire résultant de la recharge localisée des sous-bassins marneux ; mais également des arrivées colloïdales provenant de la recharge diffuse du bassin.

La relation entre le COD et la turbidité au cours de la crue donne également quelques points de discussion intéressants entre les dynamiques de transport dissous et particulaire (figure VI.5). Bien que les augmentations de la turbidité et du COD sont relativement faibles à la source du Dahon, on dénote une relation linéaire entre ces deux bassins qui confirme une dynamique de transport commune via les infiltrations diffuses. La rivière souterraine de Fontenotte montre une dynamique plus complexe. On note au même moment de l'augmentation du débit des arrivées turbides peu chargées en COD suggérant une légère remobilisation interne qui est directement suivi par les arrivées plus concentrées de la recharge allochtone. Les points de mesure les plus concentrés en COD correspondent à la période où les apports de la perte de la Noye (marqués par des rejets domestiques) sont les plus importants d'après le modèle de mélange (cf. Chapitre IV).

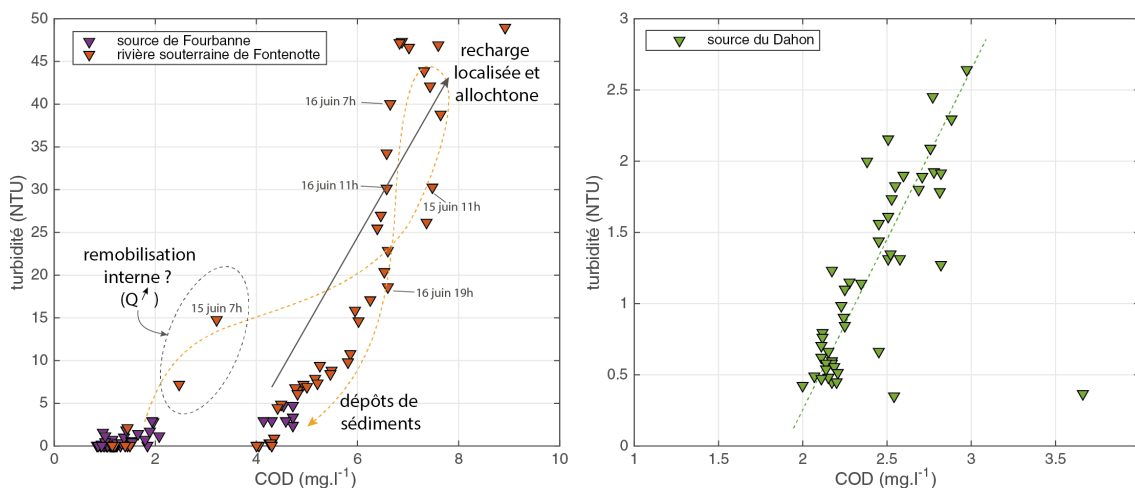
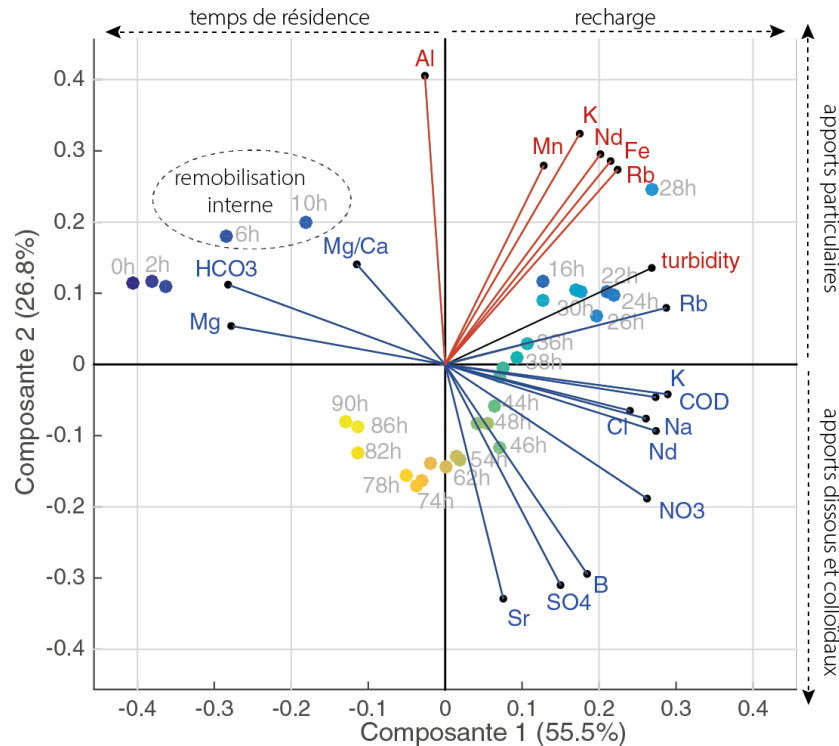


FIGURE VI.5 – Dynamiques entre turbidité et COD au cours de la crue

Dans le but de décomposer les dynamiques de la crue à Fontenotte, l'évolution de certains éléments dissous et particulaires caractéristiques sont intégrés dans une même analyse en composantes principales. La première composante explique la majeure partie de la variance avec 55.5% distinguant d'une part les eaux matricielles à temps de résidence long ( $\text{Mg}$  et  $\text{HCO}_3$ ) et les apports de la recharge essentiellement localisée ( $\text{SO}_4$ , turbidité,  $\text{Rb}$ ). La deuxième composante (expliquée par une variance de 27%) semble différencier les individus essentiellement marqués par la fraction particulaire ( $> 0.22 \mu\text{m}$ ) de ceux marqués par la fraction filtrée ( $< 0.22 \mu\text{m}$ ).



**FIGURE VI.6** – Analyse en composantes principales pour la crue de juin 2015 à la rivière souterraine de Fontenotte combinant à la fois les teneurs mesurées dans la fraction filtrée ( $< 0.22 \mu\text{m}$ ; en bleu) et celles mesurées dans la fraction particulaire ( $> 0.22 \mu\text{m}$ ; en rouge).

On remarque de nouveau les premières arrivées particulaires en lien avec une remobilisation interne dans le système suivi par les apports de la recharge localisée marquée d'abord essentiellement par la fraction particulaire puis par la fraction filtrée. Ces observations mettent en avant une décroissance plus rapide de la fraction particulaire vis à vis de la fraction filtrée. Celles-ci s'expliquent principalement par les phénomènes de dépôts de la fraction particulaire provenant de la recharge localisée dans le réseau, et donc le transport plus diffus des éléments de la fraction filtrée, sous-formes dissoutes et colloïdales, qui ne se dépose pas au cours de la crue. Ces éléments de la fraction filtrée peuvent trouver leurs origines à la fois par la recharge localisée ou par une recharge diffuse. On rappelle cependant que le modèle de mélange réalisé au cours de cette même crue sur le sous-système amont identifié par l'exutoire de Fontenotte explique la majorité des variations hydrochimiques dissoutes par la recharge localisée via les pertes de la Verne et de la Noye. On note la présence des éléments dissous  $\text{SO}_4$ , Sr et B dans les apports dissous identifiés sur la figure VI.6.

## 5. Discussion

Cette étude préliminaire apporte des informations complémentaires au chapitre précédent pour mieux comprendre le rôle de la fraction particulaire au cours des crues et notamment en comparant deux systèmes aux dynamiques de recharge distinctes. Les éléments traces métalliques apparaissent comme des marqueurs intéressants pour mieux caractériser les phénomènes de dépôt et de remobilisation dans le système karstique.

Dans le cadre de ce chapitre, la rivière souterraine de Fontenotte est la station suivie qui réagit le plus à l'événement de crue avec un apport particulaire important. Nous identifions cette ma-



tière en suspension comme provenant essentiellement des apports allochtones des sous-bassins marneux via les infiltrations localisées du système. En revanche, en raison de mécanismes de transport plus lents dans la zone saturée, la source de Fourbanne montre une réactivité plus lente à l'événement de crue et évacue une quantité de matières en suspension beaucoup plus faible. Ces observations mettent en avant les phénomènes de dépôts qui ont lieu dans le conduit et induisent donc un stockage d'ETM allochtone dans le système.

Au vu de la complexité des mécanismes existants entre les éléments dissous, colloïdaux et particulaires et en lien avec les vitesses d'écoulement variées dans les différents compartiments du système karstique, il apparaît encore difficile de distinguer clairement les contributions provenant des infiltrations localisées ou diffuses. En effet, d'une part, les processus de transports entre les éléments dissous et des différentes fractions particulaires sont complexes avec des vitesses de transport distinctes (Goldscheider et al., 2008; Luhmann et al., 2012), bien que relativement négligeables au cours des crues (Göppert and Goldscheider, 2008). D'autre part la granulométrie de la matière en suspension va induire des dépôts pour les particules grossières quand les colloïdes ne seront pas déposés (Atteia and Kozel, 1997; Vesper and White, 2004). Ainsi, il est difficile de distinguer les colloïdes provenant des infiltrations localisées et diffuses.

Cependant, on remarque que les systèmes de Fourbanne et du Dahon montrent des variations très contrastées entre les éléments potassium et rubidium. On peut en effet différencier dans ce cas deux origines : (i) les sous-bassins marneux via la recharge localisée (système de Fourbanne) et (ii) des apports d'origines agricoles via la recharge diffuse (système du Dahon). Afin de mieux comprendre ces dynamiques, il apparaît nécessaire de mieux déterminer les ETM spécifiques qui pourront nous permettre de différencier les apports principaux existant dans un même système.

Ces résultats permettent d'améliorer le schéma conceptuel des processus de transport entre les éléments dissous, colloïdaux et particulaires en mettant en évidence les déphasages qui existent entre ces fractions, ainsi que les exportations massiques qui varient spatialement. L'existence d'une infiltration localisée semble être un des déterminants majeurs à la dynamique du transport et aux quantités de matières en suspension exportées. L'utilisation des ETM ouvrent de nombreuses perspectives pour mieux comprendre les mécanismes de transport existants au cours des événements de crues.

PARTIE 3  
Mécanismes de transport le long d'un  
conduit karstique



# Modélisation des échanges latéraux au cours des crues

Ce chapitre reprend le travail soumis dans le journal *Hydrology and Earth System Sciences* (HESS) intitulé "Assessing lateral flows and solute transport during floods in a conduit-flow-dominated karst system using the inverse problem for the advection-diffusion equation" écrit en collaboration avec Jean-Baptiste Charlier<sup>1</sup>, Roger Moussa<sup>2</sup>, Marc Steinmann<sup>3</sup> et Sophie Denimal<sup>3</sup>.

## Structure

Résumé . . . . .	130
Abstract . . . . .	131
1. Introduction . . . . .	132
2. Modelling approach . . . . .	134
2.1. Assessing lateral flows . . . . .	134
2.2. Framework . . . . .	138
3. Study site . . . . .	140
3.1. Field situation . . . . .	140
3.2. Field monitoring and data processing . . . . .	141
3.3. Model application to the study site . . . . .	142
4. Results . . . . .	143
4.1. Simulation of lateral exchanges . . . . .	143
4.2. Variability of lateral exchanges . . . . .	145
4.3. Transport dynamics along the conduit network . . . . .	146
5. Discussion . . . . .	148
5.1. Modelling framework . . . . .	148
5.2. Functional scheme . . . . .	150
6. Conclusion . . . . .	152
7. Résultats complémentaires et perspectives . . . . .	153
7.1. Contribution des traceurs artificiels à la caractérisation des échanges latéraux . . . . .	153
7.2. Synthèses des traçages . . . . .	154
7.3. Discussions et perspectives . . . . .	156

---

1. BRGM, 1039 rue de Pinville, F-34000 Montpellier, France  
2. INRA, UMR LISAH, 2 Place Pierre Viala, F-34060 Montpellier, France  
3. Chrono-Environnement, UMR 6249 UBFC/CNRS, University of Burgundy Franche-Comté, Besançon, 25000, France

## Résumé

L'objectif de cette étude est de présenter une méthodologie donnant de nouvelles clés d'interprétation pour caractériser la variabilité spatio-temporelle des échanges latéraux dans les conduits karstiques au cours des crues. Ces échanges sont analysés en termes de flux hydriques et de flux massiques à partir des équations de l'onde diffusante et d'advection-diffusion, traitées avec la même approche mathématique assumant des échanges latéraux hydriques et massiques uniformément répartis le long du tronçon étudié. Une méthode inverse, basée sur une solution analytique du modèle de l'onde diffusante, est alors appliquée sur des données de stations de mesures localisées au niveau de l'entrée et de la sortie du tronçon. Cette méthode permet alors de simuler la dynamique des échanges hydriques et massiques au cours d'évènements de crue. Le site d'étude correspond au réseau karstique d'En-Versennes, localisé dans l'aquifère de Fourbanne dans le Massif du Jura. Le dispositif de mesure installé sur site permet de caractériser deux tronçons distincts : (R1) de la perte localisée de Verne à la rivière souterraine de Fontenotte, caractérisant la zone non-saturée ; (R2) de la rivière souterraine de Fontenotte à la source de Fourbanne, caractérisant à la fois la zone non-saturée et saturée. Ce modèle est appliqué sur les débits et les éléments totaux dissous (TDS), après la séparation des composantes de flots de base et de crue, afin d'estimer et de comparer les échanges hydriques et massiques ainsi que d'identifier les origines des apports.

Les résultats montrent la variabilité spatiale des contributions latérales le long du conduit entre les tronçons R1 et R2, ainsi que leurs variabilités temporelles en fonction des conditions hydrologiques. Les deux tronçons présentent des réponses distinctes à la propagation de crue, avec des apports latéraux importants sur le tronçon R1 et des pertes significatives sur le tronçon R2. En combinant ces résultats avec les échanges de solutés et l'analyse de la distribution des paramètres de propagation de crue, nous démontrons que les apports latéraux sur le tronçon R1 correspondent à la fois aux infiltrations diffuses et localisées via le réseau karstique secondaire de la zone non-saturée. Ceci s'observe pour toutes les conditions hydrologiques sauf au cours des crues caractérisées par des étiages intenses. Sur le tronçon R2, nous observons des apports de flots de base mais également des pertes latérales au cours des crues. Cette observation est attribuée au phénomène d'inversion de gradient entre le conduit et la matrice induisant des mélanges complexes dans la zone saturée. A partir de ces résultats, un schéma de fonctionnement du système karstique de Fourbanne est proposé. Il montre l'impact de la zone saturée sur les échanges conduits/matrice dans ce système et souligne le rôle important de la zone non-saturée pour les phénomènes de stockage et de transfert dans le système.

---

## Abstract

The aim of this study is to present a framework that provides new ways to characterize the spatio-temporal variability of lateral exchanges for water flow and solute transport in a karst conduit network during flood events, treating both the diffusive wave equation and the advection-diffusion equation, with the same mathematical approach assuming uniform lateral flow and solute transport. A solution to the inverse problem for the advection-diffusion equations is then applied to data from two successive gauging stations to simulate flows and solute exchange dynamics after recharge. The study site is the karst conduit network of the Fourbanne aquifer in the French Jura Mountains, which includes two reaches characterizing the network from sinkhole to cave stream to the spring. The model is applied after separation of the base from the flood components on discharge and total dissolved solids (TDSs) in order to assess lateral flows and solute concentrations and compare them to help identify water origin. The results showed various lateral contributions in space - between the two reaches located in the unsaturated zone (R1), and the zone that is both unsaturated and saturated (R2) - as well as in time, according to hydrological conditions. Globally, the two reaches show a distinct response to flood routing, with important lateral inflows on R1 and large outflows on R2. By combining these results with solute exchanges and the analysis of flood routing parameters distribution, we showed that lateral inflows on R1 are the addition of diffuse infiltration (observed whatever the hydrological conditions) and localized infiltration in the secondary conduit network (tributaries) in the unsaturated zone, except in extreme dry periods. On R2, despite inflows on the base component, lateral outflows are observed during floods. This pattern was attributed to the concept of reversal flows of conduit-matrix exchanges, inducing a complex water mixing effect in the saturated zone. From our results we build the functional scheme of the karst system. It demonstrates the impact of the saturated zone on matrix-conduit exchanges in this shallow phreatic aquifer, and highlights the important role of the unsaturated zone on storage and transfer functions of the system.

## 1. Introduction

Hydraulic transfers and solute transport processes in karst aquifers are known to be very complex due to the organization of underground void structures leading to preferential drainage axes through a conduit network embedded in a less permeable fissured matrix (Király, 2003; Ford and Williams, 2013). Flow processes are driven by the spatial variability of the geometrical elements that constitute the conduit network as full pipes, open channels, or pipe constrictions (Covington et al., 2009), leading to rapid transitions from free-surface to pressurized flows, after recharge events. In such heterogeneous media, transport parameters are also dependent on scale effects, as mentioned by Hauns et al. (2001) who showed that retardation factor is dominant at a local scale but vanishes at the benefit of an increase in dispersivity with increased distances. In addition to the interaction between conduit and matrix compartments (Martin and Dean, 2001; Binet et al., 2017), solute concentration evolutions in the conduit network are strongly influenced by the mixing with inflows from tributaries (Perrin et al., 2007) or with flooded areas (Dewaide et al., 2016). These papers pointed out the various and complex lateral exchanges along the conduit network, which remains an open question calling for new tools to investigate it.

Natural and artificial tracers are commonly used in catchment hydrology to better understand the spatial variability of lateral exchanges in order to study flows and the corresponding solute exchanges between the main channel and adjacent hydrological units. Ruehl et al. (2006) highlighted strong channel losses despite storage exchange fluxes and lateral inflows. By analysing exchanges between consecutive reaches in a mountainous headwater stream, Payn et al. (2009) emphasized the importance of the geomorphological context as a driver for the spatial variability of gaining and losing reaches. Moreover, they demonstrated that many of reaches studied were concurrently losing and gaining. Szeftel et al. (2011) simulated exchanges using the OTIS model (Runkel and Chapra, 1993; Runkel, 1998), which is a 1-D finite-difference model solving solute transport in the streams accounting for transient storage. By testing the influence of different conceptualizations of hydrologic exchanges on the estimation of transient storage parameters, they showed the complexity to model tracer evolution. This is related to the difficulty of modelling spatial patterns of tracer concentrations as well as magnitudes of lateral inflows and outflows. The same model was recently used by Dewaide et al. (2016) to simulate lateral exchanges in karst conduits in both unsaturated ("river stretches") and saturated zones ("flooded area"). This study furthermore showed that the parametrization of solute transport in the system had to account for interactions within the saturated zone. However, all these works were designed for low-flow periods and are therefore not suitable to investigate the temporal evolution of lateral flows during flood events in conduit-flow-dominated karst systems with large-magnitude flash flows.

The Saint-Venant equations (SVE) may be used to assess hydrodynamic processes as they describe unsteady flow in partially filled conduits (Saint-Venant, 1871) and are generally used to simulate discharge in conduit-flow-dominated karst aquifers. As the conduit flow in the unsaturated zone is mainly controlled by free-surface conditions, Manning's equations are favoured, although they under-estimate head losses due to turbulent flows (Jeannin and Marechal, 1995). Equations to be used for the saturated zone should be adapted for pressurized conditions, such as the Preissmann slot model in ModBraC (Reimann et al., 2011), or the Darcy-Weisbach equation in pipe-flow models like the Storm Water Management Model (SWMM) (Jeannin, 2001; Campbell and Sullivan, 2002; Peterson and Wicks, 2006; Chen and Goldscheider, 2014). However, the application of these models is problematic, because detailed but often unavailable information on hydraulic parameters is required, particularly concerning the location and the geometry of conduits. As a consequence, such physically-based models are often applied in a degraded mode (Le Moine et al., 2008), and are sometimes over-parametrized even in the case of relatively well-

known conduit networks. An alternative approach to model hydraulic processes would be to test the ability of simplified SVE with parsimonious parameters. For that, the diffusive wave equation can be considered as a relevant simplification of the full SVE (Moussa and Bocquillon, 1996). This approach was used successfully by Charlier et al. (2015) to assess lateral flows in karst rivers with numerous lateral in- and outflows. It is therefore a promising alternative to the more complex approaches cited above.

In most practical applications, the acceleration terms in the Saint-Venant equations can be neglected, and consequently by combining the differential continuity equation and the simplified momentum equation, the Saint-Venant system is reduced to a single parabolic equation : the diffusive wave equation (DWE; Moussa, 1996; Fan and Li, 2006; Wang et al., 2014). The two parameters of the equation, celerity and diffusivity, are usually taken as functions of the discharge. Methods based on the finite-difference discretization techniques are generally used to solve this equation, but these methods may induce problems of stability and accuracy (Moussa and Bocquillon, 1996). However, if celerity and diffusivity can be assumed constant, and if lateral flow is negligible, the diffusive wave equation has an analytical solution : the Hayami (1951) model. Moussa (1996) extended this analytical solution to the case of uniformly distributed lateral flow which can be either positive (lateral inflow) or negative (lateral outflow). In the following, the Moussa (1996) model allows the calculation of the outflow using as input the inflow and the lateral flow uniformly distributed, and using the two parameters celerity and diffusivity. Moreover, Moussa (1996) proposed an analytical solution which enables the calculation of the temporal distribution of the lateral flow (under the hypothesis of uniformly distributed flow) by an inverse problem approach using both the inflow and the outflow as input and using the two parameters celerity and diffusivity. Contrary to classical modelling approach where the measured output hydrograph is used only to validate a model, the inverse problem developed herein uses all information available in both input and output data. In comparison to numerical methods, the advantage of the Hayami solution extended by Moussa (1996) is an easy-to-use analytical solution. The solution of the inverse problem proposed is part of the hydrological model MHYDAS (Distributed Hydrological Modelling of AgroSystems; Moussa et al., 2002).

To model conservative solute transport along a 1D flow path, the advection-diffusion equation (ADE) is largely used in hydrology (Runkel, 1996; Baeumer et al., 2001) and karst hydrology (Hauns et al., 2001; Luhmann et al., 2012). In agreement with the mass conservation law, solute transport can be expressed by ADE. However, ADE is more challenging to implement in the case of unsteady-state flow conditions, especially when lateral exchanges occur. The diffusive wave equation and the advection-diffusion transport equation have very similar mathematical expressions, but of course do not describe the same processes. The diffusive wave equation is derived from Saint-Venant continuity and momentum equations and can be applied to a wide range of phenomena in different fields as exposed by Singh (2002) for the kinematic wave, such as flood routing model but also for solute transport (Cimorelli et al., 2014). The advection-diffusion equation is derived from the mass conservation principle applied for matter dissolved in the water and taking into account two basic processes of transport : advection and diffusion in which the Fick's law leading to the diffusive term was applied. Under some hypotheses, the physical equations of both the diffusive wave equation and the advection-diffusion equation can lead to the same similar mathematical expressions which can justify the use of the same resolution approaches. In the present study, following Singh (2002), the diffusive wave equation and the advection-diffusion equation are treated using the same mathematical approach : the Hayami (1951) analytical solution extended by Moussa (1996) to the case of uniformly lateral flow (and solute transport) using an inverse problem approach.



For practical application in karst systems, the knowledge of the temporal distribution of lateral flows and concentrations allows for better characterization of interactions along the conduit during a flood and the hydrogeological functioning of the aquifer. In fact, most karst systems are only accessible locally, leaving large portions of the system inaccessible for direct observation. Thus, the modelling of the lateral exchanges by solving the inverse problem is a tool to decipher the hydrological functioning of such inaccessible conduits located between two monitoring stations. The total volume of water and mass balance of lateral exchanges can be easily estimated by the difference between input and output average values. Thus, the benefit of simulating temporal variability is that it allows for the characterization of the evolution of lateral flows and their mineralization during the flood. This is important because these exchanges can be successively positive or negative during a single flood. The existence or not of a complex dynamic of lateral exchanges cannot be identified without a temporal analysis.

The aim of this paper is to propose a new framework based on a solution of the inverse problem for the advection-diffusion equations (Moussa, 1996) to identify the temporal distribution of lateral flows and their concentrations. We consider the general case where only flow (and eventually solute concentration) is measured at gauging stations without any additional information on lateral flow. The aim is to simultaneously use both measured input and output hydrographs (and eventually input-output solute concentrations) in order to identify lateral inflow-outflow temporal distribution and solute concentration. The framework is tested on discharge and total dissolved solids data from two reaches of a karst conduit in the French Jura Mountains, for several flood events under various hydrological conditions. The study case corresponds to the case generally encountered in practice where the spatial variability is unknown. The model simulations - describing the temporal variability of the lateral exchanges - are then used to better characterize the interactions existing along the conduit during floods.

## 2. Modelling approach

### 2.1. Assessing lateral flows

#### 2.1.1. Diffusive wave model without lateral flows

The diffusive wave equation is an approximation of the Saint-Venant equations used to model 1D unsteady flow in open channels (Moussa and Bocquillon, 1996) :

$$\frac{\partial Q}{\partial t} + C_Q \frac{\partial Q}{\partial x} - D_Q \frac{\partial^2 Q}{\partial x^2} = 0 \quad (\text{VII.1})$$

where  $x$  (L) is the length along the channel,  $t$  (T) is the time and the celerity  $C_Q$  (L T<sup>-1</sup>) and the diffusivity  $D_Q$  [L<sup>2</sup> T<sup>-1</sup>] are functions of the discharge  $Q$  [L<sup>3</sup> T<sup>-1</sup>].

Between two stations  $I$  (inflow) and  $O$  (outflow), the model is applied on the flood component ( $Q_{I,flood}(t)$  and  $Q_{O,flood}(t)$ ) of the total discharge ( $Q_{I,tot}(t)$  and  $Q_{O,tot}(t)$ ), which can be deduced by using the inflection point on the hydrograph recession and then removing the baseflow components  $Q_{I,base}(t)$  and  $Q_{O,base}(t)$  :

$$Q_{I,flood}(t) = Q_{I,tot}(t) - Q_{I,base}(t) \quad (\text{VII.2})$$

$$Q_{O,flood}(t) = Q_{O,tot}(t) - Q_{O,base}(t) \quad (\text{VII.3})$$

Eq. (1) is of parabolic type and its resolution requires appropriate initial and boundary conditions imposed at the limit of the solution domain ( $0 \leq x \leq L$  and  $t \geq 0$ ,  $L$  being the channel length).

Hayami (1951) assumed the following domain  $0 \leq x < \infty$  and  $t \geq 0$ . The initial condition is set for  $t = 0$ ,  $Q(x, t) = 0$  for  $x \in [0, \infty]$  with the following boundary conditions : for  $x = 0$ ,  $Q(x, t) = \delta(t)$  and for  $x \rightarrow \infty$ ,  $Q(x, t) = 0$  where  $\delta(t)$  is the Dirac delta function. The resolution of Eq. (1) can be obtained using either a numerical method or a convolution. We choose the convolution approach instead of a numerical method for two reasons. First, an analytical solution for the advection-diffusion equations proposed by Moussa (1996) is available and easy to use. Moreover, the use of a convolution enables us to avoid the need for choosing adequate space and time steps in numerical methods (subdividing the reach into space steps  $dx$ , and the time into time steps  $dt$ ) which may introduce numerical instabilities. Based on the Hayami assumptions (Hayami, 1951), considering  $C_Q$  and  $D_Q$  as constant parameters over time along a channel network of length  $L$ , the diffusive wave equation without lateral exchange can be written as follows (Moussa, 1996) :

$$Q_{I,routed}(t) = \int_0^p Q_{I,flood}(t-T)K_Q(T)dT = Q_{I,flood}(t) * K_Q(t) \quad (\text{VII.4})$$

where  $p$  is the time memory of the system, and the symbol  $*$  represents the convolution operator. As there is no problem of calculation time, the term  $p$  must be large in comparison to the travel time on a channel reach.

In Eq.(4), the Hayami kernel function  $K_Q(t)$  is expressed as follows :

$$K_Q(t) = \frac{L}{2(\pi D_Q)^{1/2}} \frac{\exp[\frac{C_Q L}{4D_Q}(2 - \frac{L}{C_Q t} - \frac{C_Q t}{L})]}{(t)^{3/2}} \quad (\text{VII.5})$$

Eq. (4) is then used to compare  $Q_{I,routed}(t)$  to  $Q_{O,flood}(t)$  and to perform the parametrization of  $C_Q$  and  $D_Q$  as described afterwards (Section 2.3 & 3.3.2).

### 2.1.2. Diffusive wave model with lateral flows

By considering the existence of lateral flow exchanges along a channel reach, we obtain the following (Moussa, 1996) :

$$\frac{\partial Q}{\partial t} + C_Q(\frac{\partial Q}{\partial x} - q) - D_Q(\frac{\partial^2 Q}{\partial x^2} - \frac{\partial q}{\partial x}) = 0 \quad (\text{VII.6})$$

where  $q(x, t)$  [ $L^2T^{-1}$ ] is the lateral flow rate per unit length as a function of distance along the channel reach  $x$ . The expression  $q(x, t)$  may be positive or negative depending on the occurrence of lateral inflow or outflow, respectively (Fig.VII.1).

In the case of the diffusive wave equation with lateral flows, an analytical resolution is proposed by Moussa (1996) based on the Hayami assumptions, accounting for uniformly distributed lateral flow between two gauging stations  $I$  (inflow) and  $O$  (outflow).

$$Q_{I,routed}(t) = \Phi_Q(t) + (Q_{I,flood}(t) - \Phi_Q(t)) * K_Q(t) \quad (\text{VII.7})$$

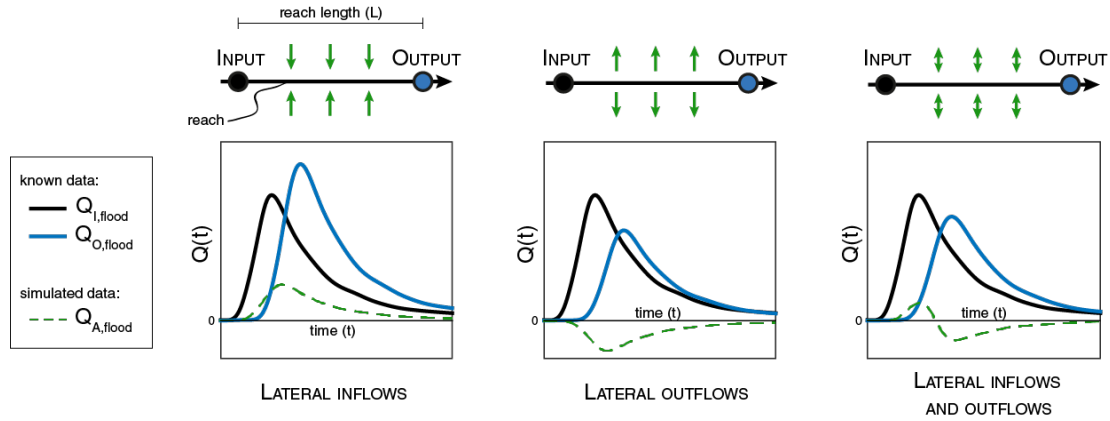
$$\text{with } \Phi_Q(t) = \frac{C_Q}{L} \int_0^t (Q_{A,flood}(\lambda) - Q_{A,flood}(0))d\lambda \quad (\text{VII.8})$$

Note that Eq. (6) gives the general form of the diffusive wave equation for any spatio-temporal distribution of  $q(x, t)$  while Eqs. (7 and 8) give the resolution of Eq. (6) in the particular case of uniformly distribution of  $q(x, t)$  along the reach, under the hypotheses used in the Hayami model ( $C_Q$  and  $D_Q$  constant).

Then the term  $Q_{A,flood}(t)$  is expressed as follows :

$$Q_{A,flood}(t) = \int_0^L q(x,t) dx \quad (\text{VII.9})$$

If the hypothesis of uniform lateral distribution is assumed, then  $q(x,t)$  does not depend on  $x$  and the right-hand side of Eq. (9) can be simplified.



**FIGURE VII.1** – Diffusive wave equation to model lateral flood flow exchanges along a channel reach of length  $L$ . The black curve  $Q_{I,flood}$  depicts the evolution of the flow rate with time at the beginning of the channel (input), and the blue curve  $Q_{O,flood}$  at the end (output). The dashed green curve  $Q_{A,flood}$  corresponds to the lateral flow exchanges which are positive for lateral inflows or negative for lateral outflows.

The inverse problem enables the identification of the temporal distribution of the lateral inflows or outflows  $q(x,t)$  over the channel reach. According to Moussa (1996), by knowing  $Q_{I,flood}(t)$  and  $Q_{O,flood}(t)$ , it is possible to calculate  $Q_{A,flood}(t)$ . Eq. 7 then gives the following :

$$A_Q(t) = Q_{O,flood}(t) - Q_{I,flood}(t) * K_Q(t) \quad (\text{VII.10})$$

$$\text{with } \Phi_Q(t) - \Phi_Q(t) * K_Q(t) = A_Q(t) \quad (\text{VII.11})$$

The solution of equations (10) and (11) requires first the identification of  $K_Q(t)$  using equation (5), and consequently a predetermination of the two parameters  $C_Q$  and  $D_Q$ , to calculate afterwards lateral flow  $Q_A(t)$  as follows :

$$Q_{A,tot}(t) = Q_{A,base}(t) + Q_{A,flood}(t) \quad (\text{VII.12})$$

$$\text{with } Q_{A,flood}(t) = \frac{L}{C_Q} \frac{d\Phi_Q}{dt} \quad (\text{VII.13})$$

$$\text{and } Q_{A,base}(t) = Q_{O,base}(t) - Q_{I,base}(t) \quad (\text{VII.14})$$

The Hayami analytical solution of the diffusive wave model assumes a uniformly distributed flow rate  $q(x,t)$  along the reach which is the simplest hypothesis when no additional information from the field is available. Moreover, under this hypothesis, and under the hypotheses used in the Hayami model, the unknown  $q(x,t)$  is reduced to  $q(t)$  in the analytical solution of the inverse problem. Even if the spatial distribution of  $q(x,t)$  is unknown, the simulated  $q(t)$  under the hypothesis of uniform spatial distribution will give to the modeller important information on the temporal variability of lateral exchanges, because it enables us to distinguish three cases : i) negative  $q(t)$  during the whole event ; ii) positive  $q(t)$  during the whole event ; iii) alternating

positive and negative  $q(t)$  during an event. It also enables us to calculate the temporal distribution of lateral flow  $q(t)$ , and the maximum and minimum values of  $q(t)$ .

The classical 1D advection-diffusion equation (ADE) for steady-state flow conditions is analogous to the DW equation (1), replacing discharge by solute concentration, and celerity and diffusivity parameters by advective velocity and diffusion parameters, respectively. In unsteady-state flow conditions, and when lateral fluxes occur, the application of ADE is not so straightforward. We propose here to assess lateral solute transport (defined by Eq. 15) during a flood, applying the DW model as a transfer function to account for lateral exchanges. Thus, the analytical solution of Moussa (1996) is used to resolve the conservative solute transport respecting the mass conservation law and accounting for uniformly distributed lateral fluxes.

$$M(t) = S(t).Q(t) \quad (\text{VII.15})$$

where  $M(t)$  is the solute flux rate [ $\text{M T}^{-1}$ ],  $S(t)$  is the solute concentration [ $\text{M L}^{-3}$ ] and  $Q(t)$  is the discharge [ $\text{L}^3 \text{T}^{-1}$ ].

As previously described for water flows, the model involves first the determination of the flood ( $M_{I,flood}(t)$  and  $M_{O,flood}(t)$ ) and base ( $M_{I,base}(t)$  and  $M_{O,base}(t)$ ) components of the total fluxes ( $M_{I,tot}(t)$  and  $M_{O,tot}(t)$ ) based on mass-chemograph separation, corresponding to the evolution of solute transport as a function of time :

$$M_{I,flood}(t) = M_{I,tot}(t) - M_{I,base}(t) \quad (\text{VII.16})$$

$$M_{O,flood}(t) = M_{O,tot}(t) - M_{O,base}(t) \quad (\text{VII.17})$$

Then, following the method described above for water flows, lateral solute exchange  $M_A(t)$  is calculated by adapting Eqs. (5), (7), (10) and (11) as follows :

$$M_{O,flood}(t) = \Phi_M(t) + (M_{I,flood}(t) - \Phi_M(t)) * K_M(t) \quad (\text{VII.18})$$

$$\text{with } \Phi_M(t) = \frac{C_M}{L} \int_0^t (M_{A,flood}(\lambda) - M_{A,flood}(0)) d\lambda \quad (\text{VII.19})$$

By analogy with Eq. (5), the kernel function for the solute transport,  $K_M(t)$ , is expressed as :

$$K_M(t) = \frac{L}{2(\pi D_M)^{1/2}} \frac{\exp[\frac{C_M L}{4D_M}(2 - \frac{L}{C_M t} - \frac{C_M t}{L})]}{(t)^{3/2}} \quad (\text{VII.20})$$

As we use similar mathematical resolution technique for both DWE and ADE, the resolution of the ADE needs two parameters  $C_M$  and  $D_M$ , corresponding to the celerity and the diffusivity of solute flux, respectively.  $C_M$  and  $D_M$  of the ADE play a similar role that the two parameters  $C_Q$  and  $D_Q$  of the DWE.

Finally, this modelling framework combining the calculation of both lateral water flows  $Q_A(t)$  and solute fluxes  $M_A(t)$ , allows the assessment of the solute concentration of the lateral flows  $S_A(t)$  in the case of positive or negative  $Q_A(t)$  and  $M_A(t)$  :

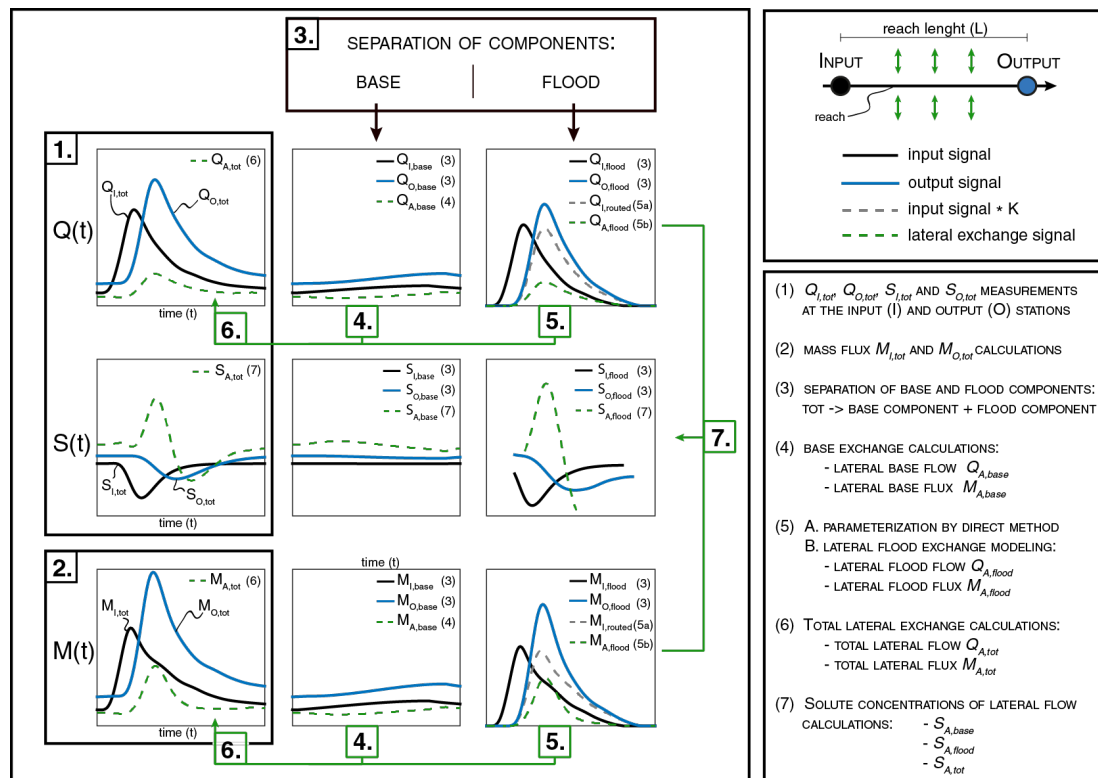
$$S_A(t) = \frac{M_A(t)}{Q_A(t)} \quad (\text{VII.21})$$

## 2.2. Framework

We propose in this section a step-by-step structure to help readers using our framework to investigate the exchange dynamics of water flows and conservative solute transport along a channel reach between two gauging stations. To simulate lateral exchange flows  $Q_A$  and solute fluxes  $M_A$  during floods, the required data are discharge and solute time series from both stations covering a complete flood event. The simulated lateral flow and solute fluxes are then used to better characterize the temporal variability of the exchanges occurring during the flood into the karst conduit, giving additional information to better characterize the hydrogeological functioning of the karst aquifer. We assume a priori linearity of both processes : the diffusive wave equation for flow transfer and the advection-diffusion equation for solute transfer. As a consequence of such assumption, a superposition is valid (separation of the base flow and the base solute transport can be done) as well as the convolution approach can be applied. Consequently, because of the assumed linearity, both problems, unsteady flow and unsteady solute transport, are analysed using a uniform approach because both problems are described using the same type of equation. Therefore, in this framework, both the diffusive wave equation and the advection-diffusion equation are treated using the same mathematical approach : the Hayami (1951) analytical solution extended by Moussa (1996) to the case of uniformly lateral flow (and solutes). When the observations at the upstream and downstream ends are known then determination of the lateral inflow-outflow constitutes some kind of inverse problem. The problem is solved using the same analytical techniques applied to both the diffusive wave equation and the advection-diffusion transport equation describing both flow and transport. The modelling of the lateral flood component includes four parameters corresponding to  $C_Q$  and  $D_Q$  for water flow and  $C_M$  and  $D_M$  for solute transport. A relationship may exist between the diffusive wave celerity  $C_Q$  and the flow velocity  $C_M$  in the advection-diffusion equation (for example for rectangular sections,  $C_Q = 5/3 C_M$ ). Figure VII.2 gives a graphical representation of this framework whose 7 stages are listed below.

- (1) Collection of discharge ( $Q_{I,tot}$  &  $Q_{O,tot}$ ) and concentration ( $S_{I,tot}$  &  $S_{O,tot}$ ) data from input and output stations.
- (2) Calculation of the total solute fluxes  $M_{I,tot}$  and  $M_{O,tot}$  using Eq. (15).
- (3) Determination of the base and flood components from the hydrograph ( $Q_{I,tot}$ ,  $Q_{O,tot}$ ) separation defined by Eqs. (2) & (3) and mass-chemograph ( $M_{I,tot}$  and  $M_{O,tot}$ ) separation defined by Eqs (16) & (17). The base and flood components are separated with the constant slope method (McCuen, 2004) by using the inflection point on the hydrograph recession. The inflection point determined on the hydrograph is used to separate base and flood components for both hydrograph and mass chemograph.
- (4) Calculation of the lateral base component for water flow ( $Q_{A,base}(t)$ ) and solute fluxes ( $M_{A,base}(t)$ ), using Eq. (14).
- (5) Modelling of the lateral flood exchanges using two steps.
  - A. First, Eq. (4) is used to parametrize  $C_Q$  &  $D_Q$  and  $C_M$  &  $D_M$  with a trial-and-error optimization, calculating  $Q_{I,routed}$  and  $M_{I,routed}$  to get the best fit with  $Q_{O,flood}$  and  $M_{O,flood}$ , respectively. The model is parsimonious with only two parameters (celerity and diffusivity) to optimize. Nevertheless, if the user needs to optimize more parameters, an automatic optimization procedure is necessary.
  - B. Afterwards, the inverse problem is applied to simulate lateral flood exchanges  $Q_{A,flood}(t)$  and  $M_{A,flood}(t)$ , using Eqs. (10), (11) & (13).
- (6) Simulation of the total lateral exchanges  $Q_{A,tot}(t)$  and  $M_{A,tot}(t)$ , using Eq. (12).
- (7) Calculation using Eq. (21) of the solute concentrations of lateral base and flood flows  $S_{A,base}(t)$  and  $S_{A,flood}(t)$ , respectively. The determination (if possible) of the total solute

concentration  $S_{A,tot}(t)$  follows then.



**FIGURE VII.2** – Framework to investigate lateral exchange dynamics of water flows and solute fluxes along a channel reach.

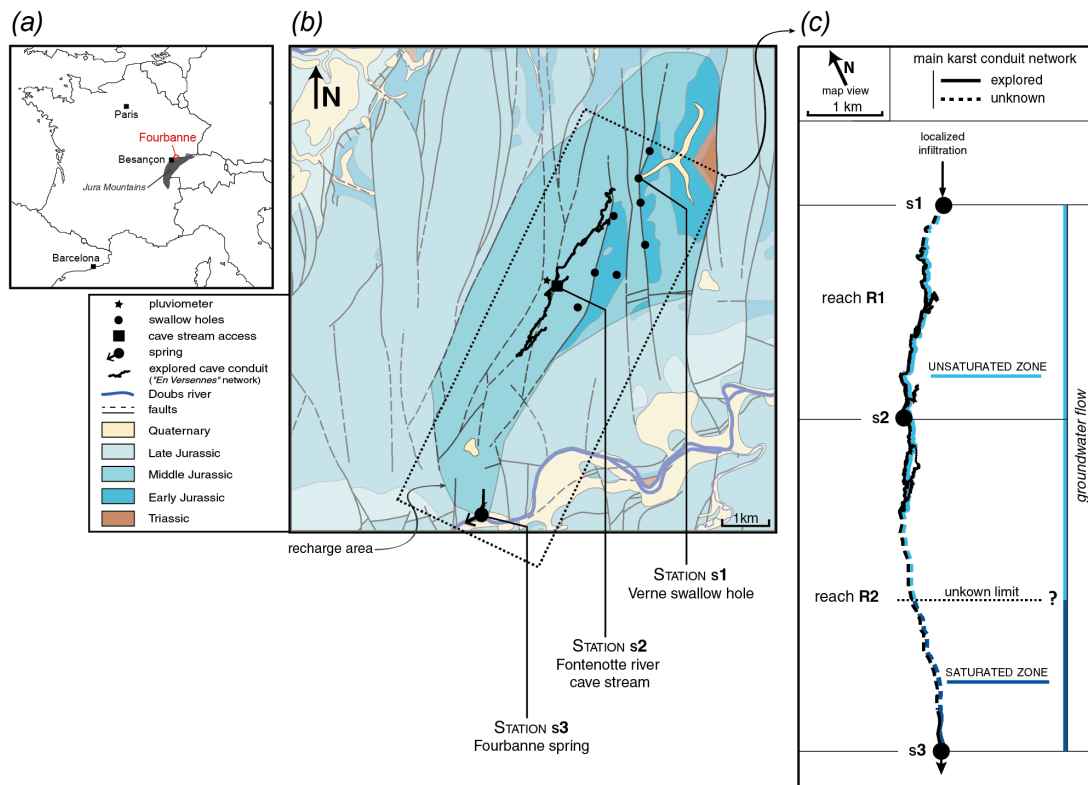
The proposed framework is generic enough to explore saturated and unsaturated conditions, base flow and floods, water and suspended particulate matter or any other tracer concerned by the advection-diffusion equation, considering the analogy with the diffusive wave equation. Moreover, an analytical solution is used for the diffusive wave taking into account uniformly distributed lateral flows (or solutes).

In our study, the application of this framework is done separately on various selected flood events. Hence, the two parameter sets ( $C_Q$  &  $D_Q$  and  $C_M$  &  $D_M$ ) are calibrated for each event. Then, the relationships between the parameters and the variations of water flow and solute transport are analysed. It can be expected for example that  $C_Q$  &  $D_Q$  should increase with more pronounced flood peaks. Furthermore, the model simulations performed along the reaches allow estimating the temporal variability of the lateral exchanges. The simulations can hardly be compared to punctual field measurements, however they are used as a diagnostic tool to better characterize the exchange dynamics occurring along the conduit during flood. The compilation of all results leads us to define a functional scheme of the studied karst system.

Note that if additional information on lateral fluxes is available, as for example punctual inputs/outputs on the reach, information on the amplitude of the spatial distribution of lateral flows, or measurements of solute concentrations on different points, the framework proposed herein is generic and can be easily used. In this case, the studied zone has to be subdivided into different reaches with eventually punctual inputs/outputs on some nodes; then the inverse problem can be applied on each reach. Moreover, if additional variables are measured, as for example piezometer levels or hydrographs on tributaries (or concentrations in the water table or tributaries), a validation can be undertaken by comparing the measured variable to the simula-

ted lateral flow hydrograph. But the gain in understanding the complexity of the studied karstic systems is worth the relative loss of "lateral" precision, that is, soon as the tributaries are not the key concern, i.e. the main reaches can be properly identified.

### 3. Study site



**FIGURE VII.3** – The Fourbanne karst system : (a) geographical localization, (b) hydrogeological map, (c) scheme of the main karst conduit network.

#### 3.1. Field situation

The study site is located in the Doubs river valley at the northern limit of the Jura Mountains in eastern France, near the village of Fourbanne ( $47^{\circ}19'54''N6^{\circ}18'15''E$ , Fig. VII.3a). The Fourbanne site is one of the experimental sites of the "Jurassic Karst" hydrogeological observatory (<http://zaaj.univ-fcomte.fr/spip.php?article13>) and monitored continuously since December 2013. The local geological structure is characterized by tabular Jurassic limestones and shales, crosscut by N-S trending normal faults (Charmoille, 2005). The recharge area of the site covers about  $30\text{ km}^2$ . The site was selected for its dominantly allogenic recharge and its well-developed, partially accessible conduit network.

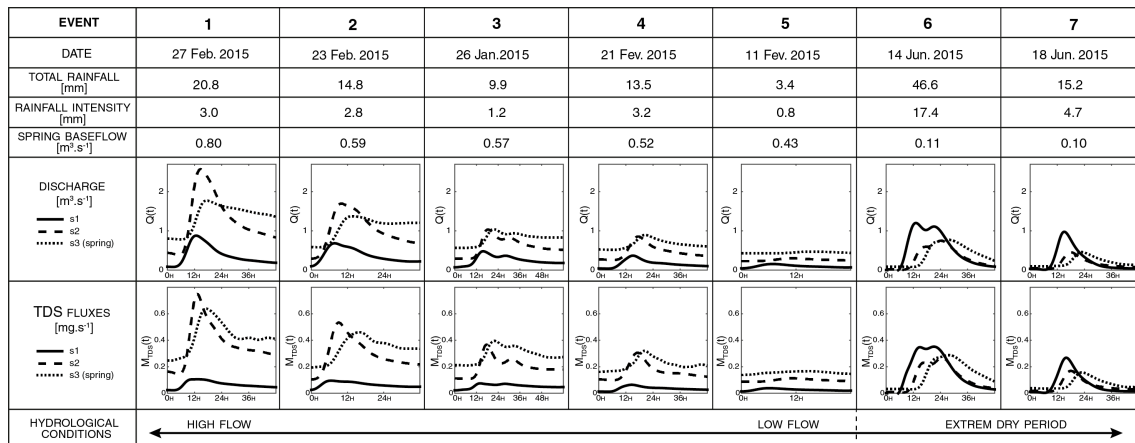
The upstream recharge area corresponds to a surface watershed underlain by impervious lower Jurassic marls. The conduit network is fed by swallow holes located at normal faults, bringing into contact lower Jurassic shales and karstified middle Jurassic limestones (Fig. VII.3b). The Verne swallow hole constitutes the main infiltration point of the Fourbanne karst system and corresponds to monitoring station s1. The allochthonous recharge joins the well-developed cave stream of the "En-Versennes" cave, which is explored over a distance of about 8 km. An artificial well near the village of Fontenotte gives direct access to the cave stream, where monitoring

station s2 was installed, about 5 km downstream of station s1. The Fontenotte cave stream can be followed for another 2 km downstream of station s2, where it disappears into an inaccessible conduit network. Finally, it joins the Fourbanne spring, which is fed by a saturated siphon of 25 m depth and explored by cave-divers up to the last 500 m. Monitoring station s3 was installed at the Fourbanne spring.

The climate is temperate with both oceanic and mountainous influence. Rainfall averages 1200 mm/year, occurring mainly in autumn and winter, but with slightly higher intensities in summer (Vermot-Desroches, 2015). Based on long-term records in the Jura Mountains, the number of rainy days per year is 140 on average (Charlier et al., 2012), corresponding for the most part to low-intensity rainfall events : 50% of rainy days had less than 3 mm of rainfall, whereas days with between 15 and 30 mm of rainfall represented only 10% of rainy days.

### 3.2. Field monitoring and data processing

Discharge ( $Q$ ) and electrical conductivity (EC) were monitored continuously at 15-minute intervals from January to June 2015 at the three stations (Fig. VII.3b) : the Verne swallow hole (station s1), the Fontenotte cave stream (station s2,) and the Fourbanne spring (station s3). Stations s1 and s2 were equipped with OTT CTD probes for conductivity, temperature, and water level monitoring, whereas a OTT Hydrolab DS5X multi-parameter probe was used at station s3 for conductivity and water temperature, and a OTT Orpheus mini probe for water level. The three stations divided the main conduit into two reaches : R1 from s1 to s2 (3.1 km) and R2 from s2 to s3 (5.4 km, Fig. VII.3c). Hourly precipitation were recorded by a fully automatic Campbell BWS200 weather station installed next to monitoring station s2 in the Fontenotte village.



**FIGURE VII.4** – Summary of the flood event selection sorted as a function of spring baseflow condition.

From the available time series, 7 flood events with complete data sets for all stations and various rainfall intensities were selected. A synthetic characterization of the 7 events is given in Fig. VII.4, where they are sorted from event 1 to 7 as a function of decreasing baseflow at the system outlet (station s3). The event duration varied from 24 to 52 hours with total precipitation amounts between 3.4 and 46.6 mm. A progressive decrease of the hydrogeological response with decreasing baseflow was found for events 1 to 5, whereas events 6 and 7, from an extremely dry period in June 2015 behaved differently with an important inflow from the station s1.



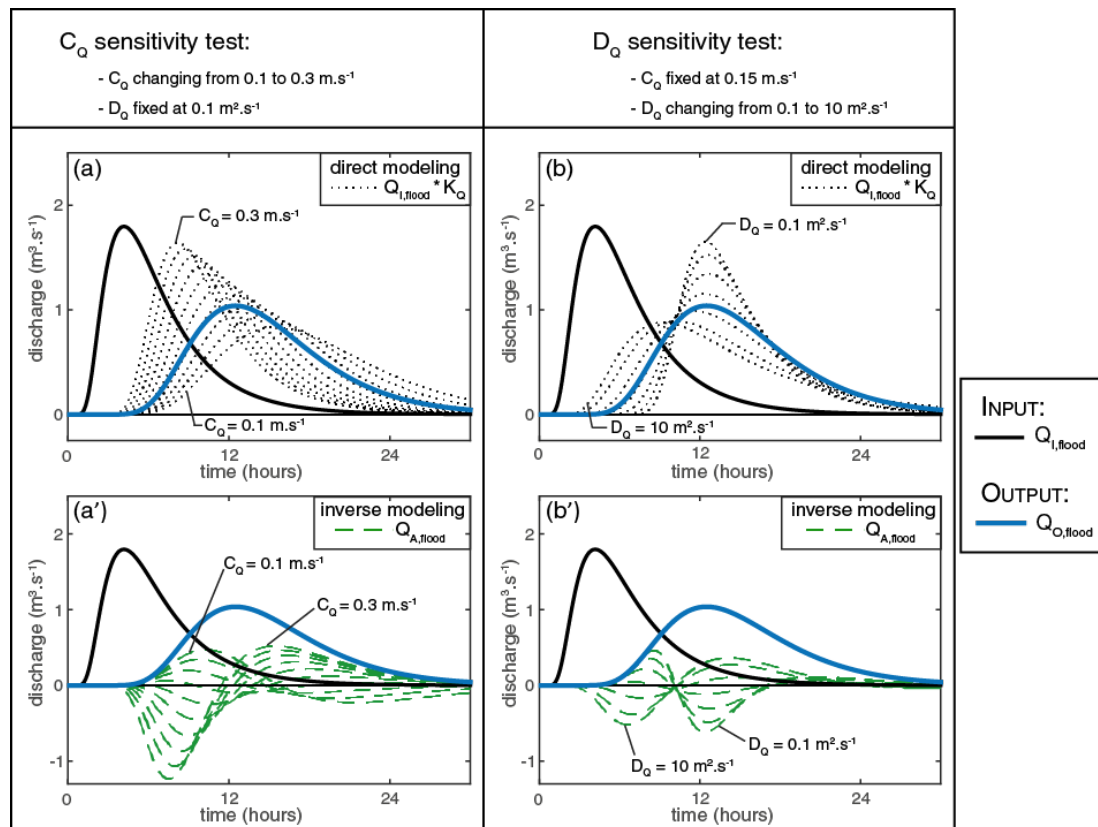
The EC is directly related to the total dissolved solids assuming that TDSs represent mainly conductive ionic compounds. The TDS values were therefore calculated directly from EC by using a constant factor of 0.64 ( $1\text{mg.L}^{-1} = 1\mu\text{S.cm}^{-1} \cdot 0.64$ ), which is commonly used by OTT CTD probes and is consistent with the literature (Lloyd and Heathcote, 1985) according to the water mineralization range of the data set.

### 3.3. Model application to the study site

To illustrate the model behaviour described theoretically in Section 2 and to help to define a parametrization strategy, this section presents a sensitivity analysis on a benchmark flood event. This event was defined in order to have similar characteristics (same range of magnitude and parameter's values) to those presented in the model application.

#### 3.3.1. Sensitivity analysis

This analysis was carried out on the celerity  $C_Q$  and the diffusivity  $D_Q$  of the modelling approach both applied on water flows. The celerity  $C_Q$  and the diffusivity  $D_Q$  describe the propagation and the flattening of the flood peak, respectively. The model applied on solute fluxes using  $C_M$  and  $D_M$  play similar roles as  $C_Q$  and  $D_Q$ .



**FIGURE VII.5** – Sensitivity analysis of the model parametrization. Graphs (a-b) illustrate the simulation of the routed input  $Q_{I,\text{routed}}$  (dashed black lines) without lateral exchange, while graphs (a'-b') illustrate the inverse problem approach which simulate lateral flows  $Q_{A,\text{flood}}$  (dashed green lines). Graphs (a-a') and (b-b') correspond to sensitivity test of  $C_Q$  and  $D_Q$ , respectively.

Figs. VII.5a-a' represent the routed input hydrograph and the simulated lateral flow, respectively, varying  $C_Q$  from 0.1 to 0.3  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  with a fixed  $D_Q$  of 0.1  $\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$  (i.e. low  $D_Q$  value). Similarly, Figs. VII.5b-b' represent the same graphs, but with a fixed  $C_Q$  of 0.15  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  (i.e. low  $C_Q$  value) and varying  $D_Q$  from 0.1 to 10  $\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$ .

Figs. VII.5a-b illustrate the application of the Eq. (4) simulating the propagation of the input signal in order to fit the output signal with the two-parameter set ( $C_Q$  &  $D_Q$ ) by considering no lateral exchange. The graphs clearly demonstrate that the routed input signal is much more sensitive to celerity than diffusivity. Varying  $C_Q$  by a factor of 3 has a stronger impact on the results than varying  $D_Q$  by a factor of 100. As an example, a 10% variation of  $C_Q$  (with constant  $D_Q$ ) modifies the maximum of  $Q_{I,flood} * K_Q$  of  $\approx 9\%$ , while 10% variation of  $D_Q$  (with constant  $C_Q$ ) changes to vary the maximum of  $Q_{I,flood} * K_Q$  by  $\approx 0.6\%$  only. Moreover, this sensitivity test illustrates the impact of both parameters on the propagation velocity and the shape of the flood peaks : increasing  $C_Q$  values yield more rapidly propagating and higher flood peaks, whereas increasing  $D_Q$  values lead to flattened peaks. These observations are in agreement with the literature (Moussa and Bocquillon, 1996; Yu et al., 2000; Chahinian et al., 2006; Charlier et al., 2009) and confirm that the lower the  $C_Q$  and the higher the  $D_Q$ , the lower the peak flow intensity and the transfer velocity.

Figs. VII.5a'-b' illustrate the simulation of lateral flows using the solution of the inverse problem when input and output signals are known. It shows that  $C_Q$  and  $D_Q$  influence the lateral flow rates as well as the exchange direction (inflows or outflows) which could be reversed during a similar flood event. Low  $C_Q$  and  $D_Q$  values lead to lateral inflows followed by outflows, whereas high  $C_Q$  and  $D_Q$  values lead to outflows followed by inflows.

### 3.3.2. Parametrization strategy

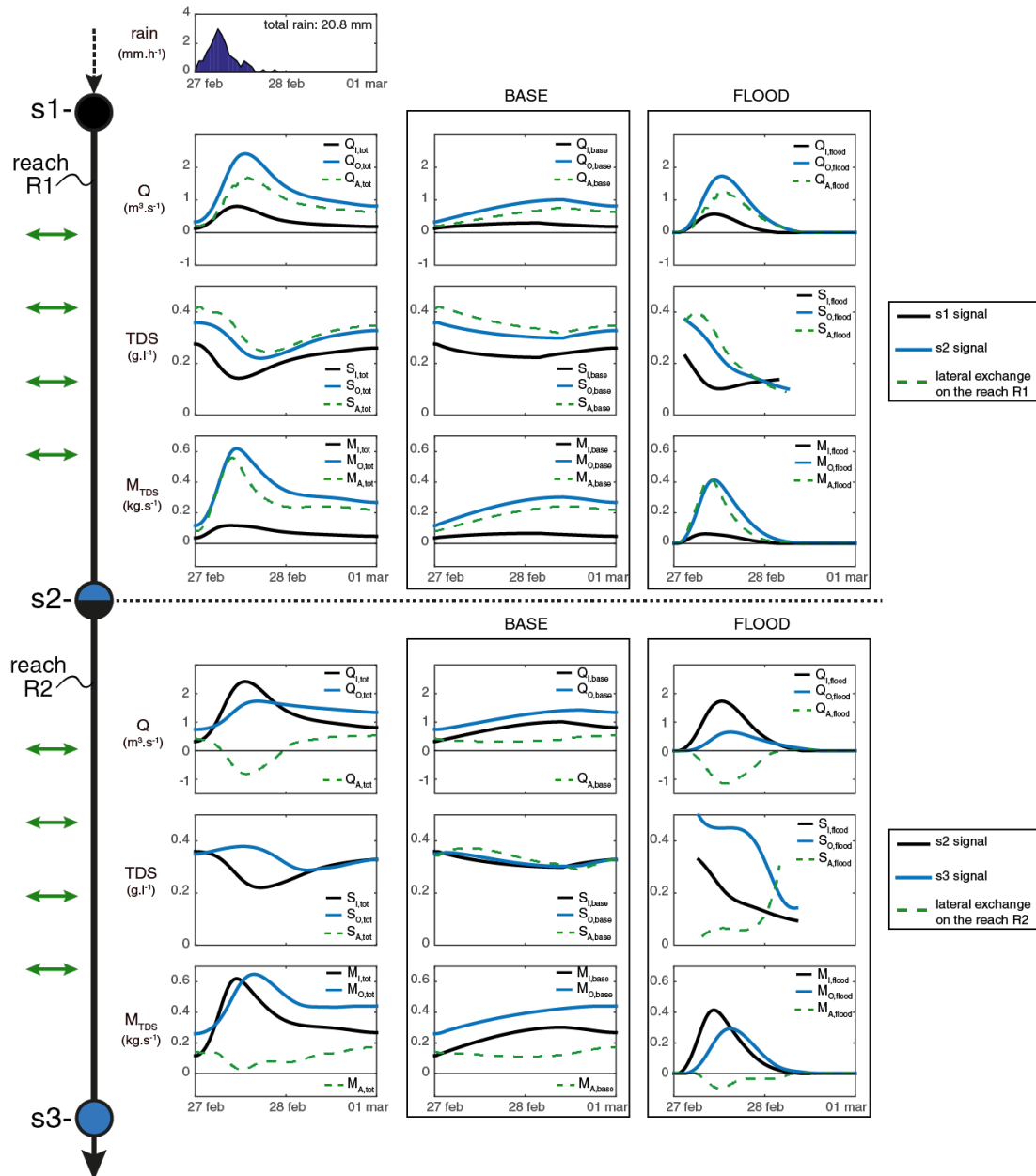
From the sensitivity analysis, a parametrization strategy was defined for the application of the Eq. (4) for the four parameters :  $C_Q$  and  $D_Q$  for discharge, and  $C_M$  and  $D_M$  for solute flux. The parameters were optimized by the trial-and-error method based on simulations of the routed input signals and by using the following criteria : i)  $C$  was determined first from the peak delay between two succeeding gauging stations (celerity = reach length divided by delay), ii),  $D$  was adjusted in order to get a best fit of the shape of the hydrograph or mass chemograph with the observed output signal.

## 4. Results

### 4.1. Simulation of lateral exchanges

Figure VII.6 illustrates the application of the framework (depicted in Fig. VII.2) for reaches R1 and R2 of the study site for flood event no. 1 with 21 mm of rainfall during high-flow conditions.

The lateral base exchanges calculated for reach R1 demonstrate that the output signal observed at station s2 for discharge and solutes cannot be entirely explained by the contribution of the input signal, but that it was due to lateral inflows between s1 and s2. The solute transport model shows, in addition, that the lateral inflows were strongly mineralized, with higher TDS values than for stations s1 and s2. The solute fluxes of the base component at station S2 were thus essentially derived from lateral inflows along reach R1. This pattern was different for reach R2, where lateral base inflows were half those of and with similar TDS values.

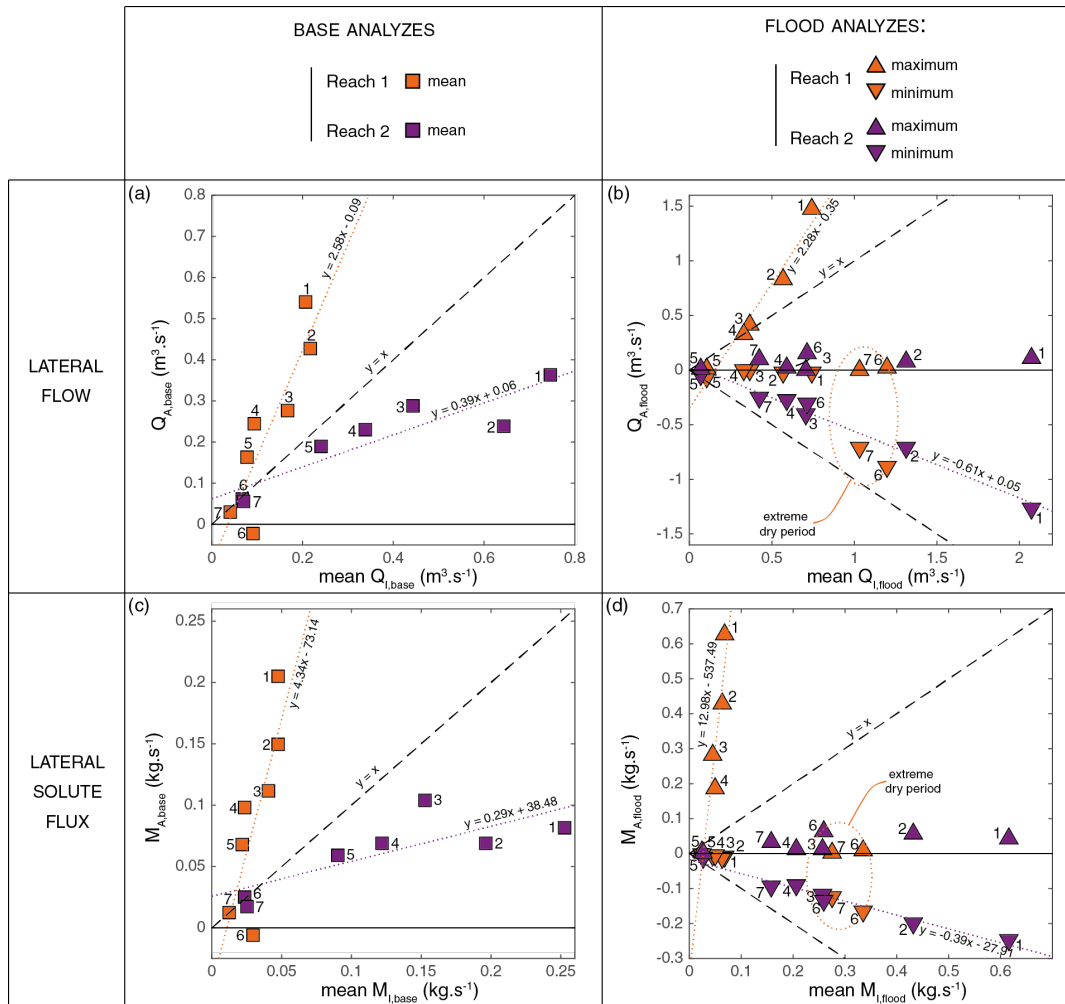


**FIGURE VII.6** – Framework application on the event no. 1 in high-flow condition along the two reaches R1 (top) and R2 (bottom). Total flow and fluxes, base component and flood component, are represented in the first, second, and third column, respectively.

Regarding the flood components, the simulated lateral exchange indicates important lateral inflow and high solute influx along R1. The concentration estimations indicate a similar evolution than for station s2, which is characterized by a TDS dilution during the flood. In contrast, dynamics were totally different along R2, where outflows were simulated. The concentration estimations of the lateral component, deduced from outflows and solute outfluxes are very low compared to the measurements at stations s2 and s3, suggesting the presence of more complex processes than simple outflows, as will be discussed later on in Section 5.2.

### 4.2. Variability of lateral exchanges

Following the example detailed for flood event no. 1 in the previous section, this section aims to summarize results of the model application on all selected flood events in order to get information on the general hydrological functioning of the field site.



**FIGURE VII.7** – Base and flood analyses of the selected event set. Orange and purple symbols correspond to the lateral-exchange modelling along R1 and R2, respectively. Base analysis is performed on mean values ( $\square$ ) exclusively whereas flood analysis takes in account minimum ( $\nabla$ ) and maximum ( $\triangle$ ) values of the calculated lateral exchanges ( $Q_{A,flood}$  &  $M_{A,flood}$ ). Base (a) and flood (b) lateral flow ( $Q_{A,base}$  &  $Q_{A,flood}$ ) are compared to the mean base and flood flow input ( $Q_{I,base}$  &  $Q_{I,flood}$ ) and base (c) and flood (d) lateral solute fluxes ( $M_{A,base}$  &  $M_{A,flood}$ ) are compared to the mean base and flood fluxes input ( $M_{I,base}$  &  $M_{I,flood}$ ).

#### 4.2.1. Lateral exchanges for the base component

Figures VII.7a-c present lateral exchanges for base water flow and base solute fluxes for all events of reaches R1 (orange labels) and R2 (purple labels). When comparing the modelled mean lateral base flow exchange as a function of the measured mean base input, two distinct linear relationships can be observed (Fig. VII.7a). For both reaches, lateral exchanges were positive, indicating inflows that increased linearly with average base input. For reach R1, lateral water inflow was 2.6 times higher than mean input flow from station s1, whereas for reach R2 the mean lateral

water inflow represented only 0.4 times the mean inflow from station s2. For solute transport (Fig. VII.7c) a very similar relationship was found. However, for R1 the slope of the correlation was much steeper than for water flow (4.3 against 2.6), indicating that the lateral inflow water was more mineralized than the input flow from station s1 already present in the system. In contrast, for reach R2 a slightly lower slope was found for solutes than for water flow (0.3 against 0.4), meaning that lateral inflow was probably a little less mineralized than input flow from station s2.

#### 4.2.2. Lateral exchanges for the flood component

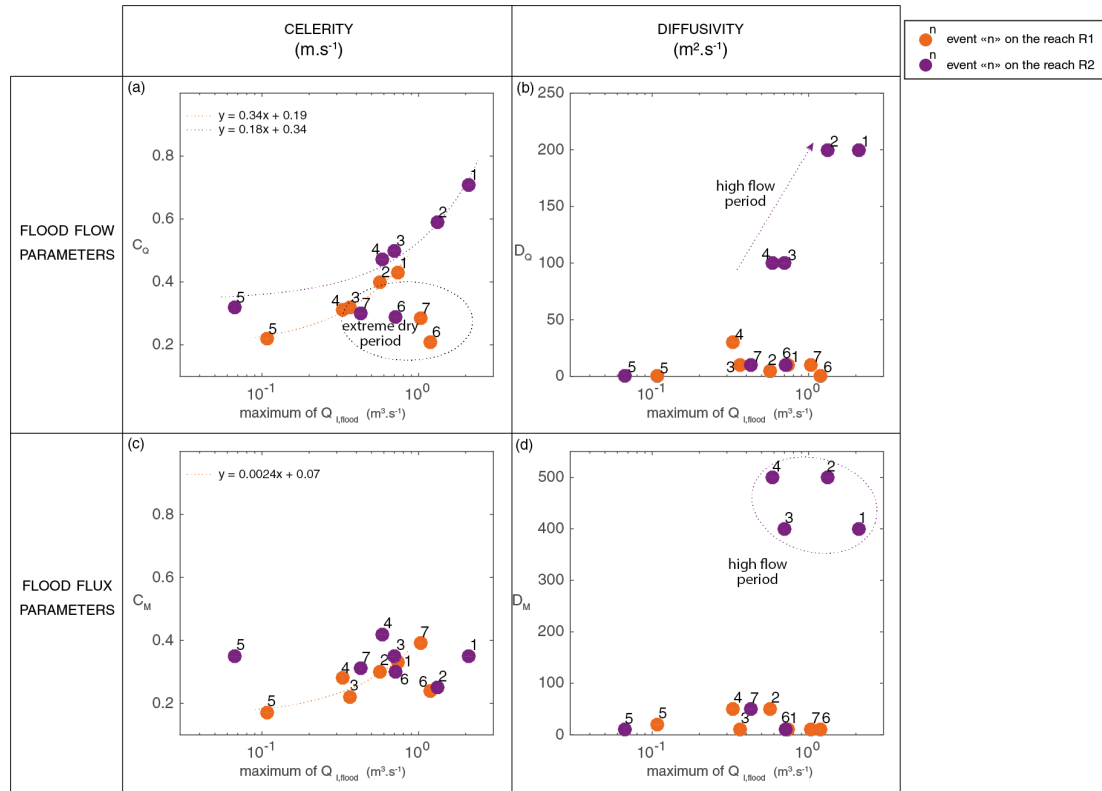
Figs. VII.7b-d illustrate lateral water flows and solute transport calculated for flood flow. To summarize the dynamics of the lateral exchanges during the flood, minimum and maximum values are presented rather than average values in order to characterize intensities of both lateral gains and losses which may occur during the same event. Along reach R1, two distinct groups are observed depending on peak flow from input station s1 (Fig. VII.7b) : (i) events 1 to 5 with low input values are characterized by lateral inflows, with high maxima and minima close to zero. (ii) events 6 and 7 with high input values from strong rain events during an extremely dry period, show maxima close to zero and strongly negative minima indicating important lateral losses. Comparing the slopes of the linear relationships for water flows (Fig. VII.7b) and solute flux (Fig. VII.7d), it appears that the water inputs of the first group were strongly mineralized, whereas the water losses of the second group were characterized by low mineralization. For reach R2, all maxima of water flow and solute flux are close to zero, whereas the minima are negatively correlated with input values, indicating increasing lateral losses with increasing peak flow. Comparing the slopes between water flood flow (fig. VII.7b) and solute flood flux (fig. VII.7d), it appears that lateral losses were systematically less mineralized than input water from station s2.

### 4.3. Transport dynamics along the conduit network

#### 4.3.1. Distribution of model parameters

In this section we present the distribution of values for the model parameters - celerity and diffusivity - as a function of maximum input flood flow intensities, with the aim to retrieve information on flow and transport dynamics (Fig. VII.8).

The  $C_Q$  water-flow celerity parameter increased linearly with input peak flow for events 1 to 5 for reaches R1 and R2 (Fig. VII.8a, graph in semi-log scale). Reach R1, entirely located in the unsaturated zone, showed lower celerities compared to reach R2, which span both the unsaturated and saturated zone. Events 6 and 7, corresponding to the extreme dry period, did not fit this trend for both reaches, and were characterized by lower  $C_Q$  values. This behaviour may be related to the low degree of water saturation of the system at the beginning of the flood. The  $C_M$  solute flux celerity parameter showed a similar relationship with the flood flow intensities for events 1 to 5, but only for reach R1 and again with a different behaviour for events 6 and 7 (Fig. VII.8c). On the contrary, we did not find any relationships for reach R2, suggesting a more complex behaviour for this part of the system, most probably related to the presence of the saturated zone.



**FIGURE VII.8** – Parametrization analysis of the selected event set. Orange and purple symbols correspond to R1 and R2, respectively. Each parameter of the model is compared with the maximum intensity of the flood flow input signal (logarithmic scale).

All events from reaches R1 and R2 had very low  $D_Q$  diffusivities. Only events 1-4 on reach R2 showed increasing  $D_Q$  values with increasing input peak flow (Fig. VII.8b). We note that these four data points were all from a wet period and from reach R2, which localized in the non-saturated and the saturated zone. The  $D_M$  solute flux diffusivity parameter showed a very similar distribution as  $D_Q$ , i.e. again with high values only for events 1-4 on reach R2 (Fig. VII.8d). Finally, note that a relationship may exist between the diffusive wave celerity  $C_Q$  and the flow velocity  $C_M$  in the advection-diffusion equation such as  $C_Q \cong 5/3C_M$  in the case of a rectangular section. Fig. VII.8 shows that the ratio  $C_Q / C_M$  ranges between 1.1 and 2.3.

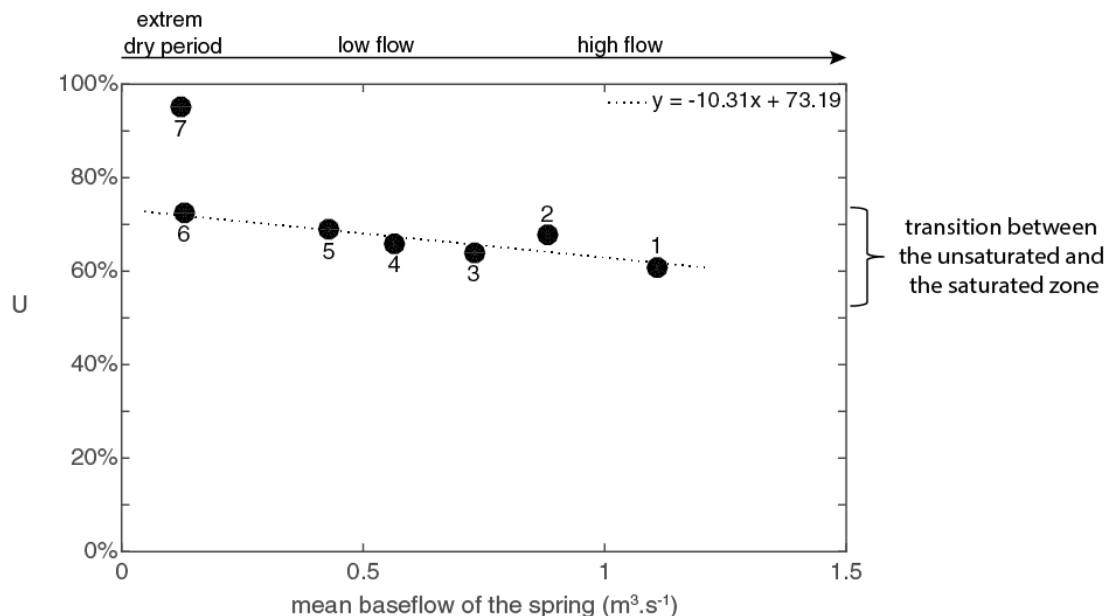
#### 4.3.2. Assessment of the saturated level of the conduit network

The analysis of the parameter distributions showed distinct trends for R1 and R2, which can be attributed to the presence of the saturated zone in the lower parts of reach R2 (see Figure VII.3 for the hydrogeological scheme of the main conduit). In fact, flood routing in the unsaturated zone is related to flow in open conduits, whereas in the saturated zone it is controlled by pressure transfer leading to an almost instantaneous propagation.

Consequently, the difference of flood routing between unsaturated and saturated conduits along the system should be observed in the  $C_Q$  parametrization – characterizing the propagation of the flood peak along the two reaches R1 and R2. In fact, by considering a mean constant slope of the main karst conduit, we hypothesize a constant  $C_Q$  value along the unsaturated zone in R1 and R2. The relation between  $C_Q$  values of R1 and R2 for each event should therefore deliver information on the localization of the limit between the saturated and the unsaturated zone.

Based on these hypotheses, the Eq.(22) is used to estimate the percentage of conduit length of reach R2 located within the unsaturated zone, defined as the "U" value.

$$U = \frac{C_Q(R1)}{C_Q(R2)} \cdot 100 \quad (\text{VII.22})$$



**FIGURE VII.9** – Representation of the limit estimation between unsaturated and saturated conduits along R2 as a function of the mean spring base flow. U calculation corresponding to the percentage of conduit length of R2 located within the unsaturated zone.

This limit is supposed to fluctuate as a function of the baseflow condition. Figure VII.9a represents the U values of all events as a function of the mean baseflow at the system outlet in station s3 (Fourbanne spring). A linear relationship is observed for events 1 to 6, showing - as expected - an increasing U with a decreasing mean baseflow, which is coherent with the saturation level of the system measured by discharge. Based on the calculated U value and with an estimated total length of 5.4 km for R2, the saturated conduit length is approximatively 1.5 to 2.2 km. Event 7 shows that the system behaved differently for flood events during extreme dry periods. This point will be discussed in the next Section.

## 5. Discussion

### 5.1. Modelling framework

Our study intends to present a new framework to quantify the temporal evolution of lateral flows and their concentrations during floods in a well-developed karst conduit networks. It uses the diffusive wave (DW) model, which is a physically based, parsimonious and easy-to-use approach. The inverse problem was used to identify both lateral flows and solute flux under unsteady-state conditions following the assumption of uniformly distributed lateral exchanges. Our modelling approach is not used with data sets, allowing a validation of the computed lateral fluxes. Indeed, in the study case, there is no monitoring of the tributaries or losses along the two reaches of the

study site. However, if additional variables are measured (for example piezometer levels or hydrographs on tributaries), a validation can be undertaken by comparing the measured variables to those simulated when solving the inverse problem. It has been proposed by Charlier et al. (2015), in which the hydrograph dynamics of lateral springs is compared with the simulated lateral exchanges. Regarding parametrization, the analysis of the distribution of water-flow parameters (celerity  $C_Q$  and diffusivity  $D_Q$ ) of seven flood events allowed us to characterize the variability of flood routing in more detail for the reach R1, located in the unsaturated zone, and the reach R2, covering both unsaturated and saturated zones. Both reaches showed linearly increasing  $C_Q$  values with increasing flood intensities (Section 4.3.1.). The difference of  $C_Q$  parametrization between the two reaches was then used in Section 4.3.2 to quantify the fluctuation of the unsaturated-saturated boundary within the karst conduit. Solute transport parameters ( $C_M$  and  $D_M$ ) are less obvious to interpret. Reach R1 showed a linear relationship of  $C_M$  as a function of solute flux intensity, whereas a comparable trend was absent for reach R2 attesting the difficulty of characterizing transport processes within the saturated conduit network from the available monitoring design.

The proposed framework requires decomposition of the base and the flood components in order to be consistent with the duality of flow processes dynamics. As proposed by many authors (Atkinson, 1977, among others), the base component typifies slow flow in the system, which is strongly influenced by interaction with the rock matrix (or low permeable volumes) with high storage capacities, whereas the flood component typifies quick flow within the conduit network with low storage capacities, which is strongly linked with flood intensity. Since we used the baseflow to estimate base exchanges and the diffusive wave flood routing model to assess flood exchanges, our framework gives a deconvolution of the two components of the lateral exchanges helping to interpret the involved processes.

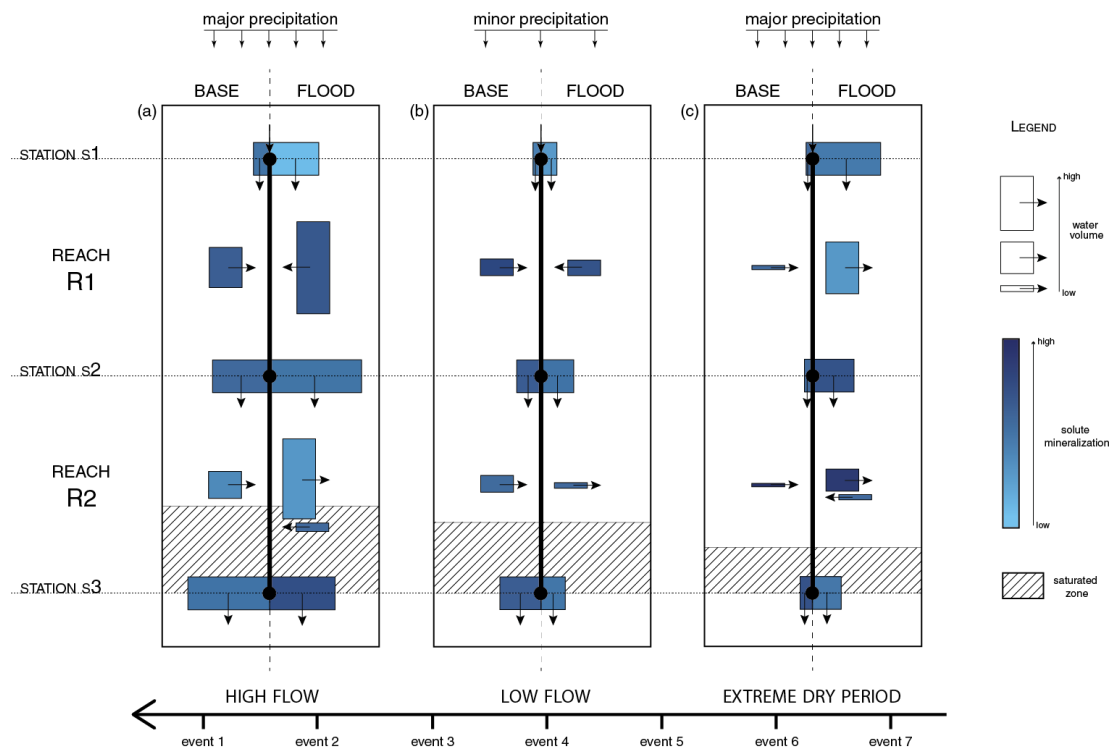
Our methodology quantifies total lateral water flow and solute flux exchange for a given reach, but does not allow identification of simultaneously occurring local lateral flows and fluxes, as has been already highlighted in previous studies (Szeftel et al., 2011; Charlier et al., 2015, Payn et al. (2009);). The results for the reach R2 furthermore denote the difficulty of decomposing exchanges that occurred in part in the unsaturated and in part in the saturated zone. Lateral flood outflows for R2 were mainly combined with low flood outfluxes with total mineralizations lower than those observed for the input and output stations. This may be the result of complex exchanges occurring between conduit and matrix (or low permeable volume) water within the saturated zone, with out- and inflows occurring concomitantly during the same flood and having contrasted concentrations. The DW model thus provides much information about lateral exchanges in karst aquifers. However, we point out the limits of our framework's ability to identify a single, unambiguous model structure representing transport processes when boundary conditions are poorly described (Szeftel et al., 2011). Its limitation is that it considers a reach of a conduit system as a "homogeneous" unit with uniformly distributed lateral exchanges. It is a diagnostic tool which naturally cannot be used to decipher too much complexity in the case of too-remote monitoring stations with highly variable lateral contributions.

An interesting point would be to discretize the conduit network in shorter reaches. Unfortunately, this would require a large set of monitoring stations that are not always accessible in karst systems. In this way, Moussa (1997) proposed a methodology to identify the transfer function based on the Hayami analytical solution using the topological elevations of a distributed-channel network flood routing modelling. However, in karst conduit systems, besides the partial access to the conduit, the karst conduit elevations may not always be relevant to describing flood routing propagation, specifically in the saturated zone.



## 5.2. Functional scheme

The modelling framework is proposed as a diagnostic tool to assess the dynamics of lateral exchanges between the main conduit and the neighbouring compartments of the karst aquifers during floods. The selected events are typified by various initial baseflow condition and flood flow intensities, thus allowing characterization of both low-flow and high-flow periods and providing a rather generic of the hydrological behaviour of the system. The model application on several contrasted events on the Fourbanne karst network provides several points of discussion about how to evaluate exchanges in various hydrological conditions and allow to dress a general hydrological functional scheme of the site. This scheme, presented in Fig. VII.10, highlights the lateral contributions for the base and the flood components. In fact, we assume that - as discussed before - base and flood components are mainly related to specific processes as conduit-matrix exchanges distinguished by slow and fast flow, respectively.



**FIGURE VII.10** – Hydrogeological functioning scheme of the Fourbanne karst aquifer, showing the contributions of lateral exchanges in terms of volume and mineralization for three hydrological conditions. For each graph, the representation of the lateral exchanges along the reaches (vertical black line) distinguishes the base component (left size) and the flood component (right size).

- (a) For major precipitation during high-flow periods (events no. 1 and 2; Fig. VII.10a), we showed the importance of lateral exchanges for both base and flood components. For the baseflow component both reaches were fed by higher mineralized lateral inflows. However, for the flood component the model yielded different results for the two reaches. Reach R1, located entirely in the unsaturated zone, had lateral inflows which were more mineralized than the sinking stream at the reach input. We relate these mineralized inputs to the arrival of tributaries from adjacent sinkholes (see their location in Fig. VII.3). On the contrary, reach R2 shows less mineralized base inflows and mainly slightly mineralized flood outflows, indicating high losses, which we relate to mixing processes in the saturated part of the conduit.

- (b) For minor precipitation during low-flow periods (events no. 3, 4 and 5; Fig. VII.10b) reach R1 showed similarly mineralized inflows from the base and the flood components, but with a lower inflow amount in agreement with the lowest rainfall intensity of these events. On the contrary, the baseflow component of reach R2 was mainly characterized by inflows, whereas weak outflows were found for the flood component. This shows that the system was mainly influenced by the drainage of water from the rock matrix even during low-flow periods. The weak outflows found for the flood component of reach R2 probably occurred within the saturated zone.
- (c) For major precipitation during extremely dry periods (events no. 6 and 7; Fig. VII.10c), quite different behaviour was observed. Reach R1 presented very low base inflows with similar mineralizations to those for the input flow, probably from sinking stream tributaries joining the unsaturated conduit network. However, important outflows were observed for the flood component, indicating high losses towards the rock matrix in the unsaturated zone. On the contrary, reach R2 presented very low baseflow inputs of highly mineralized water. The flood component was characterized mainly by lateral outflows followed by lowest inflows. It is interesting to note this reversal of the lateral flood flows from out- to inflows, indicating an evolution of the exchanges during the flood event, that may be related to conduit-matrix interactions in the saturated zone.

Even if we observed increasing lateral inflows with increasing baseflow conditions, a slow inflow component always remained present all along the network (i.e. in the unsaturated as well as in the saturated zone), whatever the hydrological conditions (cf. section 4.2.1.). These constant inflows probably originate mainly from diffuse infiltration in the unsaturated zone and from lateral drainage systems in the saturated zone. However, the mineralization of the infiltrating water was higher along R1 compared to R2, reflecting probably different recharge mechanisms. It seems that R1 collected additional inflows from strongly mineralized secondary tributaries mainly localized in the upstream part of the aquifer (R1), in accordance with the presence of sinkholes in the north-eastern part of the study area (Fig. VII.3).

In Section 4.2.2., from the analysis of the events distribution according to rainfall intensity and initial baseflow we could distinguish two distinct groups of events depending on the general hydrological context : (1) events 1 to 5 during periods of high and low flow, and (2) events 6 & 7 from an extremely dry period. The evolution of the lateral flood exchange for group (1) increased linearly with flood intensity (maximum of the peak flood, Fig. VII.7), suggesting that these lateral inflows, probably derived from secondary conduits, were proportional to the discharge measured at the input station. For reach R1, the mineralization of these inflows increased with the maximum input of inflow, whereas for reach R2 the mineralization of outflows decreased. For group (2), lateral flood outflows were observed along both reaches, notably for R1, meaning that the inflows from secondary lateral conduits observed for group (1) stopped during extreme dry periods in the unsaturated zone. This change of behaviour of the distinct groups of events showed the non-linearity of the lateral exchanges depending on hydrological conditions. This threshold effect in the hydrogeological response may be related to the presence of epiphreatic conduits (Jeannin, 2001), leading to time-variant limits of their recharge area (Jukić and Denić-Jukić, 2009; Charlier et al., 2012).

In our opinion, from the available data, two types of outflows along the karst conduit network can be described in our conceptual model. The first type corresponds to outflows observed along R1 during the extremely dry period. These outflows occurred in the unsaturated zone of the conduit at extremely low baseflow conditions where only very few base inflows were observed.

Thus, during this period, the flood input following major precipitation recharged the low permeability volume (or matrix) from the conduit network. The second type corresponds to outflows observed along R2 for all baseflow conditions. These outflows seemed to occur in the saturated zone and are related to flow reversal occurring in the saturated conduit, as mentioned by several authors (Jeannin, 1996; Maréchal et al., 2008; Bailly-Comte et al., 2010; Binet et al., 2017) who demonstrated the influence of the contrasted kinetics fluctuations of the hydraulic head between the conduit and the surrounding matrix during a flood event. This conduit-matrix relationship in the saturated zone probably induces a complex water mixing effect inside of karst conduit during the flood event.

Besides these results, the flood routing parameters are also indicators for hydraulic processes in the conduit. They are used in section 4.3.2. to estimate the fluctuation of the limit between the unsaturated and the saturated zone within reach R2. We evaluated that the saturated zone occupied 25% to 40% of R2, depending on flow conditions, corresponding to the 1.5 to 2.2 km of conduit next to the outlet station s3. The Fourbanne karst system with its total length of 8.5 km (3.1 km for R1 and 5.4 km for R2) is thus a shallow-phreatic aquifer. Consequently, we demonstrated that besides the impact of the saturated zone on the matrix-conduit exchanges, the unsaturated zone plays a major role in the flood genesis in karst aquifers. Our results confirm that the unsaturated zone essentially has a transfer function – as it is commonly conceptualized (Bakalowicz, 2005) – leading to a rapid hydrological response at the spring due to the high connectivity of the conduit networks. But in our case, we also noted that a large part of water storage (assessed by the baseflow component in the different stations) originate from this zone. This result highlighted the important storage function of the unsaturated zone, something that was previously pointed out in works using hydrochemical approaches (Emblanch et al., 2003; Mudarra and Andreo, 2011), but is often minimized in current conceptual karst models.

## 6. Conclusion

The study aims to propose a framework to characterize the spatio-temporal variability of lateral exchanges for flows and fluxes in a karst conduit network, known to have large amount of concomitant in- and outflows during flood events. The main interest in our study is the treatment of both phenomena, the diffusive wave equation and the advection-diffusion equation, with the same mathematical approach assuming uniform lateral flow and solutes, solving the inverse problem of the advection-diffusion equations using an analytical solution. In fact, as the model was applied for two different variables, the flow and the solute transport, a crossed analysis has been performed in order to characterize a functioning scheme of the studied karst system. We showed various lateral exchanges between both unsaturated and saturated zones, we estimated the fluctuation limit of the saturated zone in the conduit, and we illustrated the non-linearity of the hydrogeological response related to the initial hydrological conditions.

One of the main points was the ability of our approach to propose a deconvolution of the output hydrograph as well as a mass chemograph allowing quantification of the lateral contributions in terms of flows and mineralization. It was useful to identify water origin of lateral flows and make hypotheses on the flood generation in karst aquifers. The modelling approach uses all data available on the reach in both input and output time series, leading to use our framework as a diagnostic tool to help decompose time series and investigate lateral exchanges more precisely. The results showed that this diagnostic step provides new ways to investigate the hydrogeological functioning of karst aquifer and demonstrated, for instance, that further hydrogeological model development for the case study has to take into account storage in the unsaturated zone and

matrix-drain relationships during floods.

## Acknowledgements

The authors wish to thank Bruno Régent for his active contribution in the field. Many thanks to the Speleology Association of Doubs Central (ASDC) for the precious help in the field and their support in accessing the Fontenotte river cave stream in the En-Versennes karst network. We thank Jacques Prost welcoming our monitoring equipment and giving us access to the Fourbanne spring. We also thank the Verne municipality for letting us monitor the Verne swallow hole. The Jurassic Karst hydrogeological observatory is part of the INSU/CNRS national observatory of karstic aquifers, SNO KARST ([http : //www.sokarst.org/](http://www.sokarst.org/)). The authors are very grateful to the Editor Mauro Giudici and the four reviewers for their constructive comments on the paper. This work was carried out with the financial support of the Burgundi-Franche-Comté Region and the BRGM.

## 7. Résultats complémentaires et perspectives

### 7.1. Contribution des traceurs artificiels à la caractérisation des échanges latéraux

Nous avons vu qu'il était possible d'identifier et d'estimer la variabilité temporelle des échanges se produisant le long du conduit karstique principal d'un système karstique à l'aide d'une approche de modélisation de l'onde diffusante. La simulation simultanée des flux hydriques et flux massiques apporte alors des informations riches et complémentaires pour comprendre les processus contrôlant ces échanges au cours des crues : les apports provenant des affluents (autres pertes), les pertes au sein du conduit, et les interactions drain/matrice.

Suite à l'utilisation de traceurs naturels conservatifs, la question de l'utilisation des traceurs artificiels se pose alors pour mieux comprendre les échanges (apports et pertes) existants dans le drain principal du système karstique. L'intérêt de ces traceurs repose d'une part sur leurs propriétés conservatives et d'autre part sur le contrôle de la quantité injectée, des quantités transférées en plusieurs points du système et de la quantité restituée à l'exutoire.

L'objectif de cette section est de discuter du potentiel des traceurs artificiels pour caractériser la variabilité temporelle des échanges latéraux le long du conduit karstique en utilisant la même approche de modélisation sur le réseau d'En-Versennes. L'idée est d'exploiter les informations issues de l'approche de modélisation appliquée aux traçages artificiels sous différentes conditions hydrologiques.

## 7.2. Synthèses des traçages

Afin de caractériser des mécanismes de transport distincts le long du conduit karstique principal du système de Fourbanne, plusieurs traçages artificiels ont été effectués sous des conditions hydrologiques variées. L'injection est réalisée systématiquement au niveau de la perte de la Verne et suivie à la fois dans la rivière souterraine de Fontenotte dans la zone non saturée, et à la source de Fourbanne. Le traceur artificiel utilisé est la fluorescéine qui correspond à un traceur fiable et très peu advectif (OFEV, 2002). La description de ces différents traçages est résumé dans le tableau VII.1.

**TABLE VII.1** – Résumé des traçages réalisés dans le drain principal du système de Fourbanne avec (s1) la perte de la Verne, (s2) la rivière souterraine de Fontenotte, (s3) la source de Fourbanne, R1 le tronçon entre s1 et S2 et R2 le tronçon entre s2 et s3.

traçage		T1	T2	T3	T4	T5	T6
date d'injection		21/01/15	11/02/15	10/03/15	02/04/15	03/04/15	04/05/15
masse injectée (g de fluoresceine)		200	200	200	200	200	200
Q moyen ( $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ )	s1	0.13	0.17	0.03	0.33	0.29	0.14
	s2	0.45	0.48	0.18	0.96	0.96	0.75
	s3	0.82	0.67	0.37	0.96	1.03	1.40
Q max ( $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ )	s1	0.22	0.53	0.04	1.05	1.05	0.33
	s2	0.65	1.18	0.26	3.00	3.00	1.22
	s3	1.02	1.08	0.51	-	-	-
temps de transit (h)	R1	12.5	19.5	29	11.5	15.25	9.25
	R2	31.25	48.75	72.5	31	20	18
vitesse de transit (m/s)	R1	0.069	0.044	0.029	0.075	0.057	0.093
	R2	0.044	0.029	0.019	0.045	0.069	0.077
taux de restitution (%)	R1	78	76	71	60	58	57
	R2	62	65	59	-	-	-

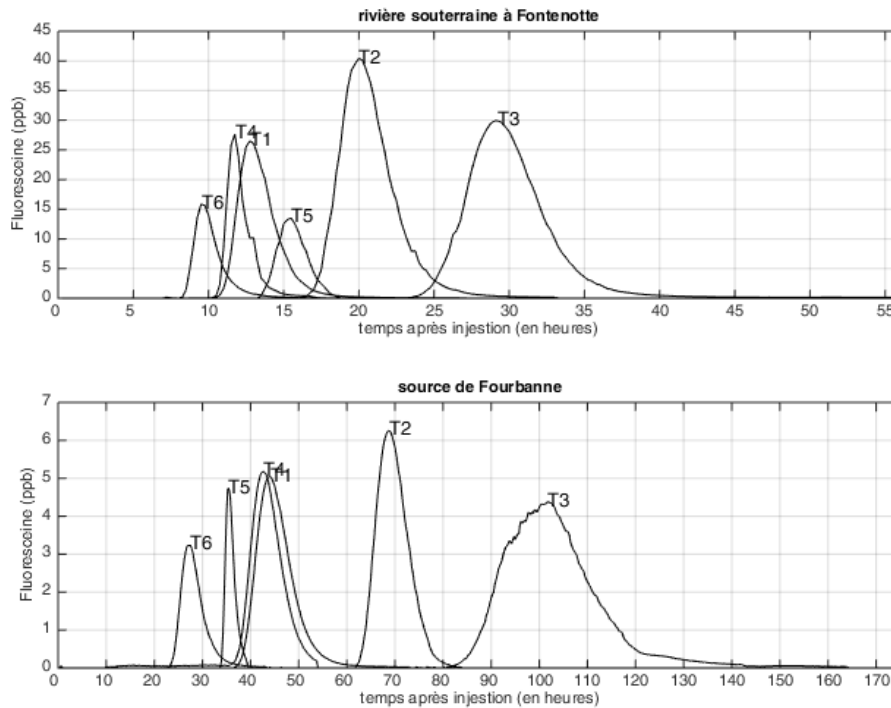
Les taux de restitution sont globalement plus faibles à la source de Fourbanne qu'à la rivière souterraine de Fontenotte<sup>1</sup> ce qui semble confirmer des phénomènes de pertes (ou de stockage) dans la zone saturée du système tout en gardant à l'esprit l'incertitude liée à la mesure du traceur et du débit.

La figure VII.11 illustre les différentes courbes de restitution des différents traçages réalisés sous des conditions hydrologiques variées. Contrairement à d'autres exemples issus de la littérature (Labat and Mangin, 2015), on remarque notamment peu d'effet de dispersion à la fin de la restitution, comme le rapportent Massei et al. (2006) et Duran et al. (2016).

On observe une relation linéaire entre les temps de transits de la rivière souterraine de Fontenotte et à la source de Fourbanne (figure VII.12(a)). Seul le traçage T5 montre un comportement différent qui peut s'expliquer simplement par le fait que les conditions hydrologiques dans le système ont fortement variées entre l'arrivée du traçage à la rivière souterraine de Fontenotte et à la source de Fourbanne. Dans ce cas précis, des précipitations importantes ont eu lieu peu après la détection du traçage à Fontenotte. Les autres traçages n'ont pas été perturbés par l'arrivée de crue au cours du traçage et montrent donc une relation linéaire avec peu de dispersion des points entre les temps de transit observés aux deux stations. Sur le même graphique, sont reportés au niveau de chaque point, les débits moyens mesurés à la source de Fourbanne. On remarque alors

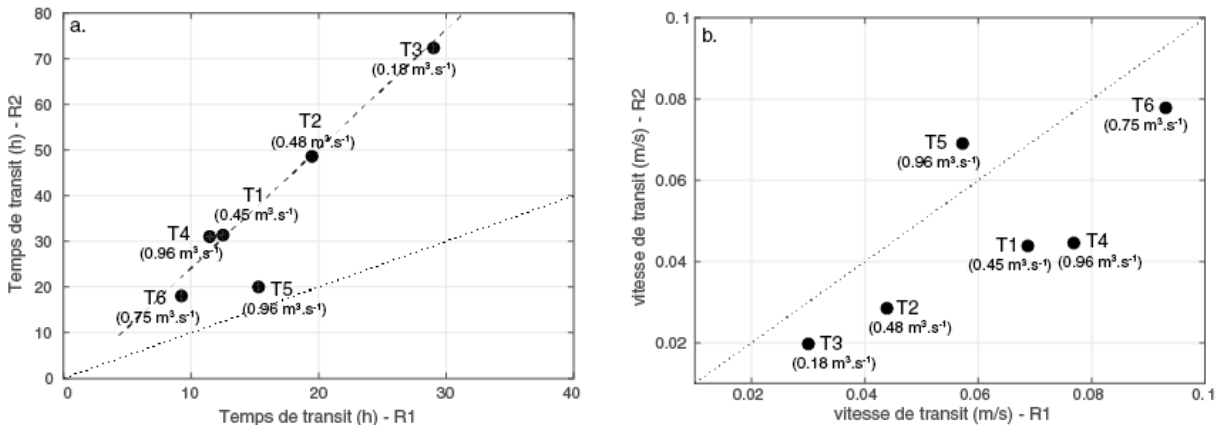
1. En raison de contrôles avals du Doubs, certaines données de débits à la source de Fourbanne ne peuvent être interprétées

que les temps de transit sont fonction des débits moyens mesurés à la source de Fourbanne, avec un raccourcissement du transit pour des niveaux de charge plus élevés.



**FIGURE VII.11** – Courbes de restitution des différents traçages réalisés à la rivière souterraine de Fontenotte et à la source du Fourbanne

Dans le tronçon R1 situé dans la zone non-saturée, on observe des vitesses de transit plus rapides que dans le tronçon R2 caractérisant à la fois la zone non-saturée et la zone saturée (figure VII.12(b)). Ces vitesses plus rapides sont probablement engendrées par un gradient hydraulique plus important dans la zone non-saturée que dans la zone saturée. Lauber et al. (2014) font les mêmes observations et notent également une dispersion plus grande des restitutions des traceurs dans la zone non-saturée en comparaison à la zone saturée.



**FIGURE VII.12** – Relation entre les temps (a) et vitesses (b) de transit mesurées pour les tronçons R1 et R2

### 7.3. Discussions et perspectives

Au vu du site d'étude et de l'intérêt de pouvoir suivre le traceur sur deux tronçons le long du conduit principal du système de Fourbanne, l'application de l'onde diffusante avec échanges latéraux apparaît intéressante pour caractériser le transport dans la zone non-saturée et saturée.

L'injection du traceur ayant lieu au niveau d'un point d'infiltration localisé du système, l'analyse de sa restitution va donc permettre de caractériser les écoulements préférentiels du système (Maloszewski et al., 2002). L'analyse détaillée de ces traceurs apporte notamment des informations pertinentes pour comprendre les interactions entre les voies de transfert et les phénomènes de stockage dans le réseau (Massei et al., 2006; Geyer et al., 2007; Goldscheider, 2008). Ainsi, l'analyse des phénomènes de dispersion des courbes de restitution semble indiquer un lien entre des zones à fluides mobiles et immobiles induisant un transfert de masse entre ces deux zones (Goldscheider, 2008). La dispersion peut également être induite par le fonctionnement hydrodynamique du système. Massei et al. (2006) note que les systèmes marqués par des écoulements turbulents forts engendrent des effets de traîne relativement faibles. Alors que plus récemment, Labat and Mangin (2015) propose l'utilisation d'une fonction de transfert de la distribution du temps de séjour pour modéliser des restitutions beaucoup plus longues, caractérisant l'influence de zones à écoulements lents.

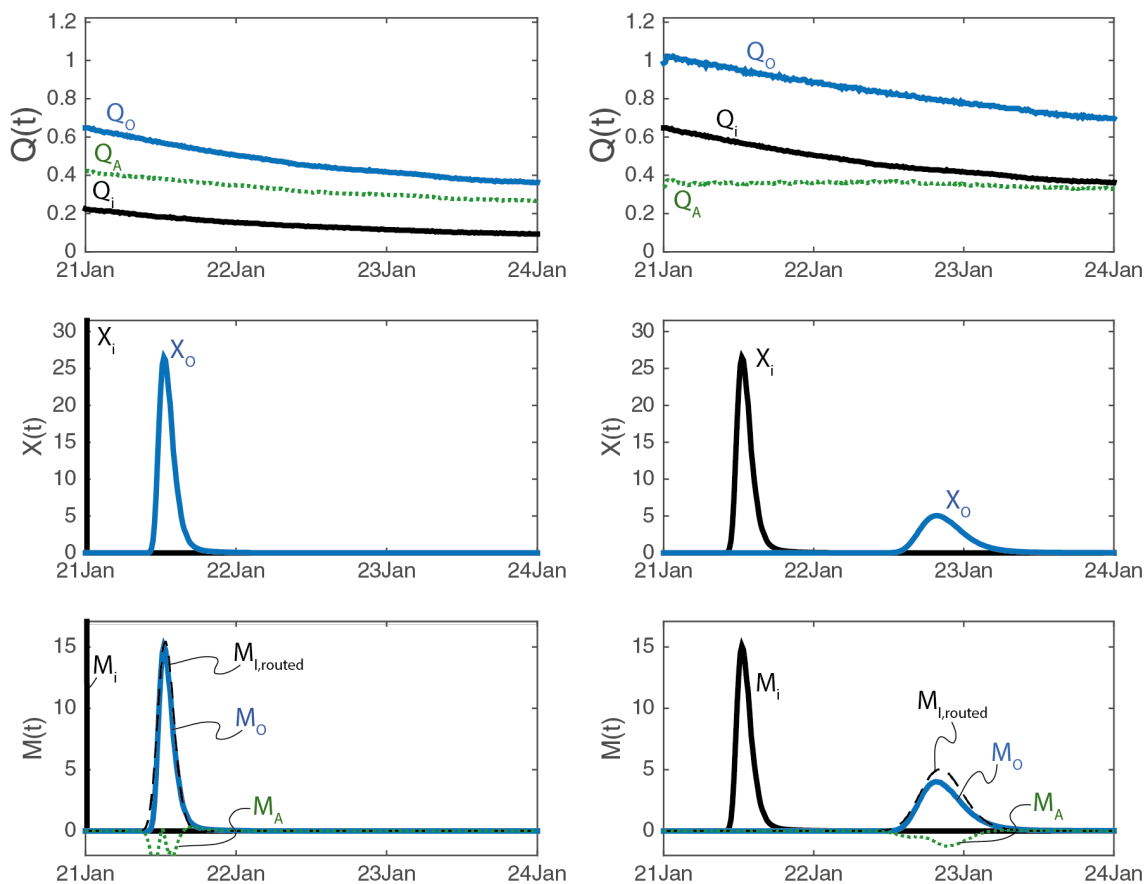


FIGURE VII.13 – Illustration de l'utilisation de l'onde diffusante en régime permanent

L'utilisation de l'onde diffusante comme fonction de transfert semble donc être une approche intéressante pour modéliser les processus de transport en milieu karstique, et la comparer à d'autres approches plus communes. Une piste complémentaire est l'application de la méthode à l'analyse des courbes de restitution en régime transitoire. Les échanges latéraux peuvent alors

être modélisés dans un premier temps en régime permanent afin de quantifier les apports et pertes existantes à partir des écoulements de base dans le conduit, comme illustré dans la figure VII.13. Le calcul des concentrations à partir des flux du traceur et des débits latéraux peut alors permettre d'estimer les proportions de pertes et d'apports le long du tronçon en utilisant des équations de mélange simples.

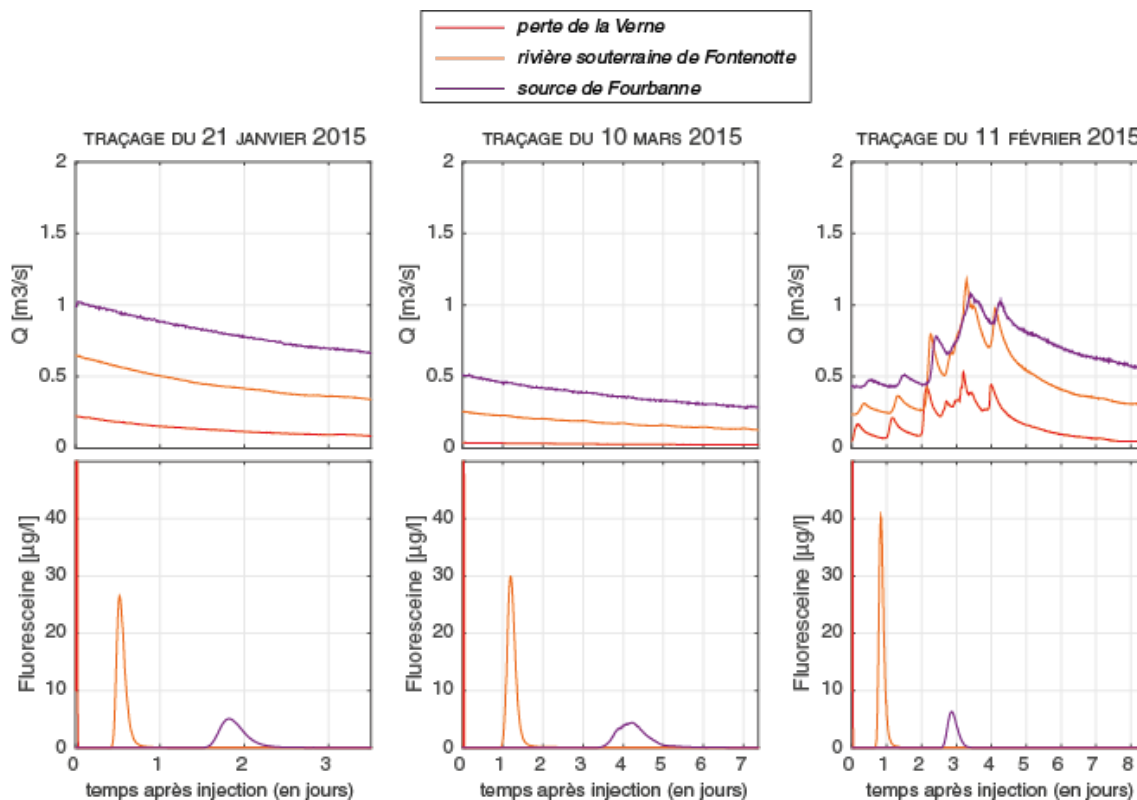


FIGURE VII.14 – Trois exemples de traçage sous des conditions hydrologiques variées

Dans le cas de conditions hydrodynamiques non stationnaires, Dzikowski (1995) établit une intégrale de convolution afin de pouvoir interpréter les traçages artificiels. Werner et al. (1998) montre également que l'interprétation des traçages doit prendre en compte la non-stationnarité du régime. De la même manière, en considérant une distribution des échanges homogène le long du conduit, la résolution simultanée de l'onde diffusante et de l'équation d'advection/diffusion à partir de la méthode inverse proposée par (Moussa, 1996) semble adaptée pour caractériser les échanges lors de crue à partir du suivi de traceurs artificiels (comme par exemple dans le cas du traçage du 11 février 2015 ; figure VII.14). Cette application permettrait de combiner un ensemble de traceurs variés et d'améliorer ainsi le modèle conceptuel proposé précédemment.





# Conclusions

Ce travail de thèse a pour objectif de mieux comprendre les processus de recharge et de transport dans les aquifères karstiques en visant particulièrement trois problématiques principales :

- Quelle est la variabilité spatiale et temporelle des réponses hydrogéologiques de systèmes karstiques marqués par des processus de recharge contrastés ?
- Comment cette réponse hydrogéologique est-elle influencée par le transport particulaire ? Quel rôle joue la fraction particulaire dans le transport chimique et notamment des ETM au cours des crues, et comment ceux-ci peuvent-ils être utilisés pour mieux comprendre les processus de recharge ?
- Lors de la recharge, quelle est la variabilité spatiale et temporelle des processus de transport au sein du système ? Comment caractériser les échanges latéraux existants le long du réseau de conduit au cours des crues en terme de flux hydriques et flux massiques ?

Afin d'apporter des éléments de réponse à ces questions, différentes méthodologies sont mises en place sur plusieurs systèmes karstiques du Massif du Jura caractérisés par des bassins de tailles variables mais également des mécanismes de recharge distincts. Elles combinent la caractérisation des transferts hydrodynamiques et hydrochimiques dans le but de mieux comprendre le fonctionnement hydrogéologique de ces systèmes au cours des crues.

### Comparaison de la réponse hydrogéologique des systèmes karstiques étudiés

#### *Résumé*

Une première étape de ce travail a été de mettre en place un dispositif de suivi physico-chimique et hydrochimique sur différents systèmes karstiques du Massif du Jura afin d'acquérir des données complémentaires caractérisant les mécanismes de recharge et transport. Ainsi, les différents systèmes ont pu être comparés à l'échelle du cycle hydrologique et à l'échelle saisonnière, afin d'identifier les processus de recharge dominants (infiltrations localisées et/ou diffuses) et les signatures hydrochimiques caractéristiques (arrivées allochtones, autochtones et/ou anthropiques). À partir de ces résultats, nous avons réalisé une étude comparative de deux systèmes possédant des mécanismes de recharge distincts : (i) le système de Fourbanne marqué par une recharge localisée importante et (ii) le système du Grand Bief, marqué par une recharge principalement diffuse. De grandes différences de fonctionnement apparaissent entre l'été 2014 relativement humide et l'été 2015 marqué par de grandes périodes d'étiage. Cette dernière période est propice à des apports anthropiques importants avec notamment des phénomènes significatifs de remobilisation d'éléments accumulés dans les zones superficielles des systèmes karstiques, comme décrit dans la littérature (Huebsch et al., 2014). Ces résultats mettent en avant la forte variabilité saisonnière de la réponse hydrochimique de ces systèmes, en particulier pour les systèmes kars-

tiques à recharge localisée importante. Ils posent également la question de la vulnérabilité de ces aquifères et de leurs ressources en eau face aux évolutions climatiques futures, qui suggèrent une accentuation des périodes d'étiage (GIEC, 2014; Vermot-Desroches, 2015; Caballero et al., 2016).

Les évolutions physico-chimiques et hydrochimiques sont ensuite analysées à une échelle de temps plus fine pour mieux comprendre les dynamiques de crues. On distingue alors des systèmes caractérisés par des tailles de bassins et des dynamiques de recharge variées. Une crue intense d'automne a été ainsi comparée à de plus petites crues précédées par des périodes d'étiage importantes et marquées par des signatures hydrochimiques anthropiques significatives. À partir de ces résultats, il nous est possible de modéliser les mélanges entre des pôles caractéristiques et préalablement identifiés. Pour cela, la méthode EMMA a été appliquée et est apparue comme une approche pertinente pour estimer les contributions de chaque pôle au cours des crues. Ainsi, le rôle majeur de la recharge localisée sur la signature hydrochimique dans la zone non-saturée comme dans la zone saturée a été mis en évidence dans le système de Fourbanne au cours d'une crue d'étiage. Sur le petit système du Dahon, marqué par une recharge diffuse, nous avons pu identifier deux arrivées distinctes au cours d'une crue intense. La première correspond à une arrivée brève d'apports anthropiques piégés préalablement dans le système et remobilisés lors de sa mise en charge. La seconde arrivée provient des couches superficielles (sol), sous forme d'eaux turbides et riches en matière organique.

### *Perspectives*

Ces résultats mettent globalement en évidence l'influence du contexte géomorphologique et du type de recharge sur la réponse hydrochimique et hydrogéologique du système karstique. Ils donnent des points de discussions intéressants pour mieux comprendre la variabilité des dynamiques du transport dissous au cours des crues selon que des infiltrations localisées contribuent fortement ou non à la recharge. L'application de la méthode EMMA donne la possibilité de valider ou non certaines hypothèses et d'estimer les proportions de mélanges de pôles caractéristiques au cours des crues. Cependant, la question de la variabilité temporelle des signatures hydrochimiques de certains des pôles se pose quand l'objectif est de comprendre les processus de transport au cours des crues. C'est par exemple le cas des pôles anthropiques ou de la zone non saturée, qui peuvent fluctuer selon les conditions hydrologiques. De plus, au vu de la complexité des aquifères karstiques, une attention particulière devrait être portée sur l'utilisation de traceurs conservatifs et peu advectifs afin d'éviter les réactions avec les matières en suspension et la matière organique.

### **Rôle du transport particulaire et intérêt des ETM pour la compréhension du système**

#### *Résumé*

Un autre objectif de cette étude a été de mieux comprendre le rôle de la fraction particulaire dans le transport de contaminants au cours des crues (Vesper and White, 2003; Dussart-Baptista et al., 2003; Pronk et al., 2006). Pour cela, une attention particulière a été portée au transport des éléments traces métalliques (ETM). Leur suivi détaillé à la fois sur la fraction filtrée (inférieure à 0.22  $\mu\text{m}$ ) et particulaire (supérieure à 0.22  $\mu\text{m}$ ) au cours des crues a donné de nouveaux outils pour caractériser l'origine et la dynamique des transferts. Dans un premier temps, nous nous sommes focalisés sur l'origine et l'identification des dynamiques de transport dans le petit système karstique du Dahon, caractérisé par une recharge diffuse et marqué par deux arrivées successives d'éléments dissous, colloïdaux et particuliers au cours d'une crue. L'analyse de l'évolution temporelle des ETM au cours de la crue a permis ainsi de confirmer des hypothèses de fonctionnement. Les résultats ont montré que même si les deux pics particuliers marquaient des

arrivées d'eau issues de processus différents : d'abord d'origine autochtone (remobilisation à la mise en charge du système), puis allochtone (arrivée d'infiltrations diffuses récentes), la nature des particules était similaire. En effet, grâce à l'analyse des Terres Rares, nous avons pu identifier que les deux pics particulaires étaient dérivés du sol. Cela signifie que les particules exportées en début de crue sont principalement le produit de la remobilisation de particules déposées lors des épisodes de crue antérieurs. D'autre part, la comparaison de l'évolution des ETM dans la fraction filtrée et particulaire au cours d'une crue d'étiage entre deux systèmes possédant des processus de recharges bien distincts donne d'autres indices pour interpréter les origines de ces particules. Ces résultats mettent notamment en avant, à partir des teneurs en rubidium des fractions filtrées et totales, la contribution des sous-bassins marneux de Fourbanne (recharge allochtone) mais également des apports agricoles du système du Dahon. Finalement, ces résultats montrent l'importance de prendre en compte le stockage particulaire et sa remobilisation au cours des crues, pour mieux comprendre le transport des matières en suspension. Cela apparaît important à la fois pour des systèmes karstiques bien développés et marqués par une recharge localisée importante que pour de petits systèmes dominés par une recharge diffuse.

### *Perspectives*

Les ETM ont été utilisées comme traceurs pour mieux comprendre simultanément l'origine et la dynamique du transport dissous, colloïdal et particulaire. Leur utilisation semble pertinente pour donner de nouvelles clés d'interprétation du transport particulaire dans les milieux karstiques. Cependant, au vu de la complexité de ces mécanismes, il est difficile de distinguer dans certains cas les deux types de recharge sur un même système en raison des effets liés à la granulométrie et à la composition même de ces particules (Atteia and Kozel, 1997; Vesper and White, 2004), d'où la nécessité de mieux caractériser en parallèle les différents pôles d'apports en ETM tels que les apports allochtones (géogènes) ou anthropiques (agricoles, domestiques ou atmosphériques).

## **Nouvelle approche de modélisation des échanges latéraux dans le réseau karstique**

### *Résumé*

Vu la forte hétérogénéité des milieux karstiques, il apparaît essentiel de mieux comprendre la variabilité temporelle des interactions qui ont lieu dans ces aquifères, et notamment le long du conduit développé dans la matrice fracturée. Une nouvelle approche méthodologique a été élaborée afin d'identifier et de quantifier la variabilité latérale des échanges existants au cours des crues le long du réseau de drainage principal du système karstique de Fourbanne. À partir de différentes stations de mesures réparties le long du conduit karstique principal, deux tronçons ont été étudiés : (1) de la perte de Verne (infiltration localisée) à la rivière souterraine de Fontenotte, caractérisant la zone non-saturée et (2) de la rivière souterraine de Fontenotte à la source de Fourbanne, caractérisant à la fois la zone non-saturée et la zone saturée. Une approche de modélisation inverse a été développée, couplant à la fois les échanges en termes de flux hydriques et les échanges en termes de flux massiques (solides dissous totaux) au cours des crues. Cette approche propose l'utilisation des équations de l'onde diffusante et d'advection-diffusion avec la même résolution mathématique (solution analytique d'Hayami (1951)) en faisant l'hypothèse d'une distribution uniforme des échanges le long du conduit. L'analyse de plusieurs crues représentatives de périodes d'étiage et de hautes eaux a permis d'observer des dynamiques d'échange entre le conduit et la matrice calcaire sur ces deux tronçons. Le premier tronçon, entièrement dans la zone non-saturée, présente des apports diffus avec des gains latéraux en basses et hautes eaux, et des pertes latérales en étiage. En revanche, on identifie pour l'ensemble des crues analysées des apports diffus et des pertes latérales sur le deuxième tronçon. Ceux-ci suggèrent des

phénomènes d'inversion de gradient entre le conduit et la matrice calcaire au cours des crues, induisant des mécanismes de mélanges complexes dans la zone saturée. Grâce à ces résultats, un schéma de fonctionnement a pu être défini en mettant en avant des interactions importantes dans la zone saturée et le rôle de la zone non-saturée pour le stockage dans les systèmes karstiques.

### *Perspectives*

L'approche décrite ci-dessus apparaît comme un outil de diagnostic pertinent pour simuler la variabilité spatio-temporelle des échanges et notamment les interactions entre le conduit et la matrice fissurée. Le modèle de l'onde diffusante constitue une approche à base physique tout en étant un modèle parcimonieux et facile à utiliser. L'application de la méthode inverse (Moussa, 1996) suppose une distribution uniforme des échanges latéraux le long du tronçon étudié et permet d'identifier et d'estimer des apports, des pertes ou les deux types d'échanges successivement. Notre étude propose ici de coupler, avec la même résolution mathématique, les échanges en termes de flux hydriques et massiques au cours des crues, apportant ainsi des informations complémentaires et utiles pour mieux comprendre les processus de transport dans le karst. Cette approche peut alors être adaptée facilement à différents cas d'étude. Plusieurs points intéressants apparaissent pour améliorer l'élaboration de ce type de modèle. D'une part, l'application du modèle avec une discrétisation spatiale plus fine le long du conduit karstique, soit en augmentant le nombre de stations de mesures (ce qui n'est pas toujours possible en milieux karstique), soit en considérant une paramétrisation qui varie avec la géomorphologie du conduit. D'autre part, l'utilisation de traceurs artificiels semble être très complémentaire pour l'application de ce modèle en conditions contrôlées (masses injectées connues et courbes de restitution).

---

## Bibliographie

- Ali, G. A., A. G. Roy, M.-C. Turmel, and F. Courchesne (2010). Source-to-stream connectivity assessment through end-member mixing analysis. *Journal of Hydrology* 392(3–4), 119 – 135.
- Amraoui, F., M. Razack, and L. Bouchaou (2003). Turbidity dynamics in karstic systems. example of ribaa and bittit springs in the middle atlas (morocco). *Hydrological sciences journal* 48(6), 971–984.
- Andersson, K., R. Dahlqvist, D. Turner, B. Stolpe, T. Larsson, J. Ingri, and P. Andersson (2006). Colloidal rare earth elements in a boreal river : changing sources and distributions during the spring flood. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 70(13), 3261–3274.
- Andreo, B., N. Goldscheider, I. Vadillo, J. M. Vías, C. Neukum, M. Sinreich, P. Jiménez, J. Brechenmacher, F. Carrasco, H. Hötzl, et al. (2006). Karst groundwater protection : First application of a pan-european approach to vulnerability, hazard and risk mapping in the sierra de líbar (southern spain). *Science of the Total Environment* 357(1), 54–73.
- Aquilina, L., B. Ladouche, and N. Dörfliger (2006). Water storage and transfer in the epikarst of karstic systems during high flow periods. *Journal of Hydrology* 327(3), 472–485.
- Arfib, B. and J.-B. Charlier (2016). Insights into saline intrusion and freshwater resources in coastal karstic aquifers using a lumped rainfall–discharge–salinity model (the port-miou brackish spring, se france). *Journal of Hydrology* 540, 148–161.
- Atkinson, T. (1977, October). Diffuse flow and conduit flow in limestone terrain in the Mendip Hills, Somerset (Great Britain). *Journal of Hydrology* 35(1), 93–110.
- Atteia, O. (1992). *Rôle du sol dans le transfert des éléments traces en solution-application à l'étude de quelques écosystèmes d'altitude*. Ph. D. thesis, EPFL - Lausanne(Suisse).
- Atteia, O. and R. Kozel (1997). Particle size distributions in waters from a karstic aquifer : from particles to colloids. *Journal of Hydrology* 201(1), 102–119.
- Atteia, O., D. Perret, T. Adatte, R. Kozel, and P. Rossi (1998). Characterization of natural colloids from a river and spring in a karstic basin. *Environmental Geology* 34(4), 257–269.
- Badot, P.-M., E. Lucot, E. Chanez, and F. Degiorgi (14 novembre 2016). *Etude de l'état de santé des rivières karstiques en relation avec les pressions anthropiques sur leurs bassins versants - Fonctionnement des sols agricoles du bassin versant*.
- Baeumer, B., D. A. Benson, M. M. Meerschaert, and S. W. Wheatcraft (2001). Subordinated advection-dispersion equation for contaminant transport. *Water Resources Research* 37(6), 1543–1550.
- Bailly, D., R. Ababou, and M. Quintard (2009). Geometric characterization, hydraulic behavior and upscaling of 3d fissured geologic media. *Mathematics and Computers in Simulation* 79(12), 3385–3396.
- Bailly-Comte, V., J. B. Martin, H. Jourde, E. J. Sreaton, S. Pistre, and A. Langston (2010, May). Water exchange and pressure transfer between conduits and matrix and their influence on hydrodynamics of two karst aquifers with sinking streams. *Journal of Hydrology* 386(1–4), 55–66.
- Baize, D. (1997). *Teneurs totales en éléments traces métalliques dans les sols (France) : Références et stratégies d'interprétation*. Programme ASPITET. Editions Quae.

- Bakalowicz, M. (1979). *Contribution de la géochimie des eaux à la connaissance de l'aquifère karstique et de la karstification*. Ph. D. thesis, Université de Rouen.
- Bakalowicz, M. (1982). La genèse de l'aquifère karstique vue par un géochimiste. *Karst Larra* 82, 159–174.
- Bakalowicz, M. (1999). Connaissance et gestion des ressources en eaux souterraines dans les régions karstiques : Agence de l'eau Rhône-Méditerranée-Corse. *Natural tracing in karst aquifers* 1, 13.
- Bakalowicz, M. (2005). Karst groundwater : a challenge for new resources. *Hydrogeology Journal* 13(1), 148–160.
- Barth, J. A., J. Veizer, and B. Mayer (1998). Origin of particulate organic carbon in the upper st. lawrence : isotopic constraints. *Earth and Planetary Science Letters* 162(1), 111–121.
- Batiot, C. (2002). *Etude expérimentale du cycle du carbone en régions karstiques, apport du carbone organique et du carbone minéral à la connaissance hydrogéologique des systèmes*. Ph. D. thesis, Université d'Avignon et des Pays de Vaucluse.
- Batiot, C., C. Emblanch, and B. Blavoux (2003). Total organic carbon (toc) and magnesium (mg<sup>2+</sup>) : two complementary tracers of residence time in karstic systems. *C. R. Geosciences* 335, 205–214.
- Bende-Michl, U., K. Verburg, and H. P. Cresswell (2013). High-frequency nutrient monitoring to infer seasonal patterns in catchment source availability, mobilisation and delivery. *Environmental monitoring and assessment* 185(11), 9191–9219.
- Bertrand, G. (2009). *De la pluie à l'eau souterraine*. Ph. D. thesis, Université de Clermont-Ferrand. Thèse de doctorat dirigée par Chazot, Gilles Hydrogéologie. Géochimie Clermont-Ferrand 2 2009.
- Bicalho, C. C., C. Batiot-Guilhe, J. L. Seidel, S. Van Exter, and H. Jourde (2012). Hydrodynamical changes and their consequences on groundwater hydrochemistry induced by three decades of intense exploitation in a Mediterranean Karst system. *Environmental Earth Sciences* 65(8), 2311–2319.
- Bichet, V. and M. Campy (2008). *Montagnes du Jura - Géologie et paysages*. Number vol. 20/2. Quaternaire.
- Binet, S., E. Joigneaux, H. Pauwels, P. Albéric, C. Fléhoc, and A. Bruand (2017). Water exchange, mixing and transient storage between a saturated karstic conduit and the surrounding aquifer : Groundwater flow modeling and inputs from stable water isotopes. *Journal of Hydrology* 544, 278 – 289.
- Binet, S., J. Mudry, C. Bertrand, Y. Guglielmi, and R. Cova (2006). Estimation of quantitative descriptors of northeastern mediterranean karst behavior : multiparametric study and local validation of the siou-blanc massif (toulon, france). *Hydrogeology Journal* 14(7), 1107–1121.
- Birk, S., R. Liedl, and M. Sauter (2004). Identification of localised recharge and conduit flow by combined analysis of hydraulic and physico-chemical spring responses (Urenbrunnen, SW-Germany). *Journal of hydrology* 286(1), 179–193.
- Birk, S., R. Liedl, and M. Sauter (2006). Karst spring responses examined by process-based modeling. *Ground Water* 44(6), 832–836.
- Bitterli, P. (1972). Erdölgeologische forschungen im jura. *Bull. Ver. Schweizer. Petrol.-Geol u. Ing.*, 13–28.
- Blavoux, B., A. Burger, P. Chauve, and J. Mudry (1979). Utilisation des isotopes du milieu à la prospection hydrogéologique de la chaîne karstique du jura. *Revue de géologie dynamique et de géographie physique* 21(4), 295–306.
- Blavoux, B. and J. Mudry (1983). Décomposition chimique des hydrogrammes du karst. *Hydrogéologie-géologie de l'ingénieur* 4, 270–278.
- Blavoux, B. and J. Mudry (1986). Influence des pluies estivales sur la qualité des réserves de l'aquifère karstique ; rôle du sol et de l'épikarst dans la concentration des chlorures. *Bulletin de la Société Géologique de France* 2(4), 667–674.
- Bouchaou, L., A. Mangin, and P. Chauve (2002). Turbidity mechanism of water from a karstic spring : example of the ain asserdoune spring (beni mellal atlas, morocco). *Journal of hydrology* 265(1), 34–42.
- Box, G. E. P. and G. M. Jenkins (1970). Time series analysis : forecasting and control, 1976. *ISBN : 0-8162-1104-3*.

- Bradl, H. (2005). *Heavy metals in the environment : origin, interaction and remediation*, Volume 6. Academic Press.
- Braun, J. and M. Pagel (1990). U, th and ree in the akongo lateritic profile (sw cameroon). *Chemical Geology* 84(1-4), 357–359.
- BRGM (3424). *Carte géologique de la France a 1/50000 - Ormans (3424)*.
- BRGM (XXXIV - 22). *Carte géologique de la France a 1/50000 - Baume-Les-Dames (XXXIV - 22)*.
- Brioschi, L., M. Steinmann, E. Lucot, M.-C. Pierret, P. Stille, J. Prunier, and P.-M. Badot (2013). Transfer of rare earth elements (ree) from natural soil to plant systems : implications for the environmental availability of anthropogenic ree. *Plant and soil* 366(1-2), 143–163.
- Bruckert, S. and M. Gaiffe (1985). *Les sols de Franche-Comté*. Université de Franche-Comté - Ministère de l'Industrie et de la Recherche.
- Bundschuh, J. (1993). Modeling annual variations of spring and groundwater temperatures associated with shallow aquifer systems. *Journal of Hydrology* 142(1), 427 – 444.
- Burns, D. A., J. J. McDonnell, R. P. Hooper, N. E. Peters, J. E. Freer, C. Kendall, and K. Beven (2001). Quantifying contributions to storm runoff through end-member mixing analysis and hydrologic measurements at the panola mountain research watershed (georgia, usa). *Hydrological Processes* 15(10), 1903–1924.
- Caballero, Y., L. Zerouali, S. Lanini, J.-B. Charlier, E. Lucas, L. Cadilhac, and C. Pagé (2016). A simple but robust assessment of present and future karst systems recharge. to what extent does it helps water managers for future water management ?
- cabinet Reilé (2006). *Protection des ressources A.E.P, Syndicat de la source du Doubs, dossier de consultation de l'hydrogéologue agréé - Contexte naturel d'émergence des sources captées*.
- Caetano Bicalho, C. (2010). *Hydrochemical characterization of transfers in karst aquifers by natural and anthropogenic tracers. Example of Mediterranean karst system, the Lez aquifer (Southern France)*. Ph. D. thesis, Agro Paris Tech.
- Calmels, D., J. Gaillardet, and L. François (2014). Sensitivity of carbonate weathering to soil co<sub>2</sub> production by biological activity along a temperate climate transect. *Chemical Geology* 390, 74–86.
- Campbell, C. and S. M. Sullivan (2002, August). Simulating time-varying cave flow and water levels using the Storm Water Management Model. *Engineering Geology* 65(2-3), 133–139.
- Carrera, J., E. Vázquez-Suñé, O. Castillo, and X. Sánchez-Vila (2004). A methodology to compute mixing ratios with uncertain end-members. *Water Resources Research* 40(12), n/a–n/a. W12101.
- Celle-Jeanton, H., C. Emblanch, J. Mudry, and A. Charmoille (2003). Contribution of time tracers (mg<sup>2+</sup>, toc,  $\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$ , no<sub>3</sub><sup>-</sup>) to understand the role of the unsaturated zone : A case study—karst aquifers in the doubs valley, eastern france. *Geophysical research letters* 30(6).
- Chahinian, N., R. Moussa, P. Andrieux, and M. Voltz (2006, July). Accounting for temporal variation in soil hydrological properties when simulating surface runoff on tilled plots. *Journal of Hydrology* 326(1-4), 135–152.
- Charlier, J.-B., C. Bertrand, and J. Mudry (2012, August). Conceptual hydrogeological model of flow and transport of dissolved organic carbon in a small Jura karst system. *Journal of Hydrology* 460–461, 52–64.
- Charlier, J.-B., J.-F. Desprats, and B. Ladouche (2014). *Appui au SCHAPI 2014 – Module 1 - Rôle et contribution des eaux souterraines d'origine karstique dans les crues de la Loue à Chenecey-Buillon*.
- Charlier, J.-B., B. Ladouche, and J.-C. Maréchal (2015). Identifying the impact of climate and anthropic pressures on karst aquifers using wavelet analysis. *Journal of Hydrology* 523, 610–623.
- Charlier, J.-B., R. Moussa, V. Bailly-Comte, L. Danneville, J.-F. Desprats, B. Ladouche, and A. Marchandise (2015). Use of a flood-routing model to assess lateral flows in a karstic stream : implications to the hydrogeological functioning of the Grands Causses area (Tarn River, Southern France). *Environmental Earth Sciences* 74(12), 7605–7616.



- Charlier, J.-B., R. Moussa, P. Cattan, Y.-M. Cabidoche, and M. Voltz (2009). Modelling runoff at the plot scale taking into account rainfall partitioning by vegetation : application to stemflow of banana (*Musa spp.*) plant. *Hydrology and Earth System Sciences Discussions* 13, 2151–2168. 18 pages.
- Charmoille, A. (2005). *Traçage hydrochimique des interactions hydrauliques et mécaniques entre les volumes perméables et peu perméables au sein des aquifères fracturés carbonatés - Aquifère karstique de Fourbanne (Avant-pays jurassien, 25) et Laboratoire naturel de Coaraze (Alpes Méridionales, 06)*. phdthesis, Université de Franche-Comté.
- Charmoille, A., S. Binet, C. Bertrand, Y. Guglielmi, and J. Mudry (2009). Hydraulic interactions between fractures and bedding planes in a carbonate aquifer studied by means of experimentally induced water-table fluctuations (coaraze experimental site, southeastern france). *Hydrogeology journal* 17(7), 1607.
- Chen, Z. and N. Goldscheider (2014, June). Modeling spatially and temporally varied hydraulic behavior of a folded karst system with dominant conduit drainage at catchment scale, Hochifen–Gottesacker, Alps. *Journal of Hydrology* 514, 41–52.
- Chiffre, A., F. Degiorgi, N. Morin-Crini, A. Bolard, E. Chanez, and P.-M. Badot (2016). How to assess temporal changes of point and diffuse contamination in a rural karstic watershed? relevance of suspended particulate matter (spm) for efficient monitoring. *Water, Air, & Soil Pollution* 227(10), 384.
- Christophersen, N. and R. P. Hooper (1992). Multivariate analysis of stream water chemical data : The use of principal components analysis for the end-member mixing problem. *Water Resources Research* 28(1), 99–107.
- Cimorelli, L., L. Cozzolino, R. Della Morte, and D. Pianese (2014, January). Analytical solutions of the linearized parabolic wave accounting for downstream boundary condition and uniform lateral inflows. *Advances in Water Resources* 63, 57–76.
- Cloutier, V., R. Lefebvre, R. Therrien, and M. M. Savard (2008). Multivariate statistical analysis of geochemical data as indicative of the hydrogeochemical evolution of groundwater in a sedimentary rock aquifer system. *Journal of Hydrology* 353(3–4), 294 – 313.
- Covington, M., A. Luhmann, F. Gabrovšek, M. Saar, and C. M. Wicks (2011). Mechanisms of heat exchange between water and rock in karst conduits. *Water Resources Research* 47(10).
- Covington, M. D., C. M. Wicks, and M. O. Saar (2009, November). A dimensionless number describing the effects of recharge and geometry on discharge from simple karstic aquifers. *Water Resour. Res.* 45(11), W11410.
- Dahlqvist, R., K. Andersson, J. Ingri, T. Larsson, B. Stolpe, and D. Turner (2007). Temporal variations of colloidal carrier phases and associated trace elements in a boreal river. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 71(22), 5339–5354.
- Delaloye, R. (2004). *Contribution à l'étude du pergélisol de montagne en zone marginale*. Ph. D. thesis, Université de Fribourg (Suisse).
- Delbart, C. (2013). *Variabilité spatio-temporelle du fonctionnement d'un aquifère karstique du Dogger (Suivis hydrodynamiques et géochimiques multifréquences - Traitement du signal des réponses physiques et géochimiques)*. Ph. D. thesis, Université Paris Sud.
- Dematteis, A. (1995). *Typologie géochimique des eaux des aquifères carbonatés des chaînes alpines d'Europe centrale et méridionale*. Ph. D. thesis, EPFL - Lausanne(Suisse).
- Dewaide, L., I. Bonniver, G. Rochez, and V. Hallet (2016, March). Solute transport in heterogeneous karst systems : Dimensioning and estimation of the transport parameters via multi-sampling tracer-tests modelling using the OTIS (One-dimensional Transport with Inflow and Storage) program. *Journal of Hydrology* 534, 567–578.
- Dewolf, Y. and G. Bourrié (2008). *Les Formations superficielles : Genèse, typologie, classification, paysages et environnements, ressources et risques*. Ellipses.
- Diaz-de Quijano, M., D. Joly, D. Gilbert, M.-L. Toussaint, M. Franchi, J.-M. Fallot, and N. Bernard (2016). Modelling and mapping trace element accumulation in sphagnum peatlands at the european scale using a geomatic model of pollutant emissions dispersion. *Environmental Pollution* 214, 8–16.

- Doctor, D. H., E. C. Alexander, M. Petrič, J. Kogovšek, J. Urbanc, S. Lojen, and W. Stichler (2006). Quantification of karst aquifer discharge components during storm events through end-member mixing analysis using natural chemistry and stable isotopes as tracers. *Hydrogeology Journal* 14(7), 1171–1191.
- Doucette, R. and E. W. Peterson (2014). Identifying water sources in a karst aquifer using thermal signatures. *Environmental earth sciences* 72(12), 5171–5182.
- Doummar, J., M. Sauter, and T. Geyer (2012, March). Simulation of flow processes in a large scale karst system with an integrated catchment model (Mike She) – Identification of relevant parameters influencing spring discharge. *Journal of Hydrology* 426–427, 112–123.
- Drew, D. D. P. and H. Hotzl (1999). *Karst hydrogeology and human activities*. AA Balkema.
- Dörfliger, N., P. Fleury, and B. Ladouche (2009). Inverse modeling approach to allogenic karst system characterization. *Ground water* 47(3), 414–426.
- Dörfliger, N., J.-L. Pinault, V. Petit, and D. Jauffret (2004). *Systèmes karstiques et crues du Doubs - Méthodologie de détermination de la contribution des systèmes karstiques aux écoulements de surface, hors crues et des étiages*.
- Duran, L., M. Fournier, N. Massei, and J.-P. Dupont (2016). Assessing the Nonlinearity of Karst Response Function under Variable Boundary Conditions. *Groundwater* 54(1), 46–54.
- Dussart-Baptista, L., N. Massei, J.-P. Dupont, and T. Jouenne (2003). Transfer of bacteria-contaminated particles in a karst aquifer : evolution of contaminated materials from a sinkhole to a spring. *Journal of Hydrology* 284(1), 285–295.
- Dzikowski, M. (1995). Convolution à débit variable à partir de réponses de traçages artificiels dans les milieux poreux ou karstiques ; théorie et modèle. *Journal of Hydrology* 164(1-4), 287–303.
- Einsiedl, F. (2005, October). Flow system dynamics and water storage of a fissured-porous karst aquifer characterized by artificial and environmental tracers. *Journal of Hydrology* 312(1-4), 312–321.
- Einsiedl, F., M. Radke, and P. Maloszewski (2010). Occurrence and transport of pharmaceuticals in a karst groundwater system affected by domestic wastewater treatment plants. *Journal of Contaminant Hydrology* 117(1), 26–36.
- Emblanch, C., B. Blavoux, J.-M. Puig, and M. Couren (1998). Le marquage de la zone non saturée du karst à l'aide du carbone 13. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences-Series IIA-Earth and Planetary Science* 326(5), 327–332.
- Emblanch, C., G. Zuppi, J. Mudry, B. Blavoux, and C. Batiot (2003). Carbon 13 of {TDIC} to quantify the role of the unsaturated zone : the example of the vaucluse karst systems (southeastern france). *Journal of Hydrology* 279(1-4), 262 – 274.
- Fan, P. and J. Li (2006, July). Diffusive wave solutions for open channel flows with uniform and concentrated lateral inflow. *Advances in Water Resources* 29(7), 1000–1019.
- Ford, D. and P. D. Williams (2013, May). *Karst Hydrogeology and Geomorphology*. John Wiley & Sons. Google-Books-ID : whgNDVXFqYC.
- Fournier, M. (2006). *Identification des modalités de transport et de la vulnérabilité du karst de la craie. Application des nouveaux outils statistiques d'analyse des données au système du Hannetot (Seine-Maritime, France)*. Ph. D. thesis, Université de Rouen.
- Fournier, M., A. Motelay-Massei, N. Massei, M. Aubert, M. Bakalowicz, and J. Dupont (2009). Investigation of transport processes inside karst aquifer by means of statis. *Ground water* 47(3), 391–400.
- Fournillon, A. (2012). *Modélisation géologique 3D et hydrodynamique appliquées aux réservoirs carbonatés karstiques : caractérisation des ressources en eau souterraine de l'Unité du Beausset (Var et Bouches-du-Rhône, SE France)*. Ph. D. thesis, Aix Marseille Université.
- Gaillardet, J., J. Viers, and B. Dupré (2003). Trace elements in river waters. *Treatise on geochemistry* 5, 225–272.
- Geyer, T., S. Birk, T. Licha, R. Liedl, and M. Sauter (2007). Multitracer test approach to characterize reactive transport in karst aquifers. *Ground water* 45(1), 36–45.

- Geyer, T., S. Birk, R. Liedl, and M. Sauter (2008). Quantification of temporal distribution of recharge in karst systems from spring hydrographs. *Journal of hydrology* 348(3), 452–463.
- Ghasemzadeh, R., F. Hellweger, C. Butscher, I. Padilla, D. Vesper, M. Field, and A. Alshawabkeh (2012). Review : Groundwater flow and transport modeling of karst aquifers, with particular reference to the north coast limestone aquifer system of puerto rico. *Hydrogeology journal* 20(8), 1441–1461.
- GIEC (2014). *Changements climatiques 2014 : Rapport de synthèse. Contribution des Groupes de travail I, II et III au cinquième Rapport d'évaluation du Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat - Sous la direction de l'équipe de rédaction principale, R.K. Pachauri et L.A. Meyer.*
- GIPEK (2012). *Inventaire spéléologique du Doubs - Tome 5.* GIPEK.
- Goldscheider, N. (2008, November). A new quantitative interpretation of the long-tail and plateau-like breakthrough curves from tracer tests in the artesian karst aquifer of Stuttgart, Germany. *Hydrogeol J* 16(7), 1311.
- Goldscheider, N. and D. Drew (2007). *Methods in Karst Hydrogeology : IAH : International Contributions to Hydrogeology, 26.* CRC Press.
- Goldscheider, N., J. Meiman, M. Pronk, and C. Smart (2008). Tracer tests in karst hydrogeology and speleology. *International Journal of speleology* 37(1), 3.
- Goldschmidt, V. M. (1954). *Geochemistry.*, Volume 78. LWW.
- Gouy, V. (2015). *Fonctionnement et modélisation de la source du Doubs - Travail d'Etude et de Recherche.*
- Göppert, N. and N. Goldscheider (2008). Solute and Colloid Transport in Karst Conduits under Low-and High-Flow Conditions. *Ground water* 46(1), 61–68.
- Grasso, D. A. (1999). *Interprétation des réponses hydrauliques et chimiques des sources karstiques.* Ph. D. thesis, Université de Neuchâtel.
- Hartland, A., I. Fairchild, J. Lead, and A. Baker (2010). Fluorescent properties of organic carbon in cave dripwaters : Effects of filtration, temperature and ph. *Science of The Total Environment* 408(23), 5940 – 5950. Special Section : Integrating Water and Agricultural Management Under Climate Change.
- Hartland, A., I. J. Fairchild, J. R. Lead, A. Borsato, A. Baker, S. Frisia, and M. Baalousha (2012). From soil to cave : transport of trace metals by natural organic matter in karst dripwaters. *Chemical Geology* 304, 68–82.
- Hartmann, A., N. Goldscheider, T. Wagener, J. Lange, and M. Weiler (2014). Karst water resources in a changing world : Review of hydrological modeling approaches. *Reviews of Geophysics* 52(3), 218–242.
- Hartmann, A., T. Wagener, A. Rimmer, J. Lange, H. Brielmann, and M. Weiler (2013). Testing the realism of model structures to identify karst system processes using water quality and quantity signatures. *Water Resources Research* 49(6), 3345–3358.
- Hauns, M., P.-Y. Jeannin, and O. Atteia (2001, January). Dispersion, retardation and scale effect in tracer breakthrough curves in karst conduits. *Journal of Hydrology* 241(3–4), 177–193.
- Hayami, S. (1951). On the propagation of flood waves. *Disaster Prevention Reseach Institue, Kyoto University. Bulletin, (1)..*
- Henderson, C. R. et al. (1984). Applications of linear models in animal breeding. *Applications of linear models in animal breeding..*
- Herman, E. K., L. Toran, and W. B. White (2008). Threshold events in spring discharge : evidence from sediment and continuous water level measurement. *Journal of Hydrology* 351(1), 98–106.
- Herman, E. K., L. Toran, and W. B. White (2009). Quantifying the place of karst aquifers in the groundwater to surface water continuum : A time series analysis study of storm behavior in pennsylvania water resources. *Journal of hydrology* 376(1), 307–317.
- Hernandez, L., A. Probst, J. L. Probst, and E. Ulrich (2003). Heavy metal distribution in some french forest soils : evidence for atmospheric contamination. *Science of the Total Environment* 312(1), 195–219.

- Hooper, R. P. (2003). Diagnostic tools for mixing models of stream water chemistry. *Water Resources Research* 39(3), n/a–n/a. 1055.
- Huebsch, M., O. Fenton, B. Horan, D. Hennessy, K. G. Richards, P. Jordan, N. Goldscheider, C. Butscher, and P. Blum (2014). Mobilisation or dilution? nitrate response of karst springs to high rainfall events. *Hydrology and Earth System Sciences* 18(11), 4423–4435.
- Huneau, F. (2000). *Fonctionnement hydrogéologique et archives paléoclimatiques d'un aquifère profond méditerranéen : étude géochimique et isotopique du bassin miocène de Valréas (Sud-Est de la France)*. Ph. D. thesis, Université d'Avignon. Thèse de doctorat dirigée par Blavoux, Bernard Hydrogéologie Avignon 2000.
- Jeanblanc, A. and S. G. (1971). *Etude géologique et hydrologique du Risoux – Mont d'Or*. Ph. D. thesis, Université de Besançon.
- Jeannin, P.-Y. (1996). *Structure et comportement hydraulique des aquifères karstiques*. Ph. D. thesis, Université de Neuchâtel - Faculté des sciences.
- Jeannin, P.-Y. (2001, February). Modeling flow in phreatic and epiphreatic Karst conduits in the Hölloch Cave (Muotatal, Switzerland). *Water Resour. Res.* 37(2), 191–200.
- Jeannin, P.-Y., M. Hessenauer, A. Malard, and V. Chapuis (2016). Impact of global change on karst groundwater mineralization in the jura mountains. *Science of the Total Environment* 541, 1208–1221.
- Jeannin, P. Y. and J. C. Marechal (1995). Lois de pertes de charge dans les conduits karstiques : base théorique et observations. *Bulletin du centre d'Hydrogéologie de Neuchâtel* (14), 27p.
- Jenkins, G. M. and D. G. Watts (1968). Spectral analysis.
- Jukić, D. and V. Denić-Jukić (2009). Groundwater balance estimation in karst by using a conceptual rainfall–runoff model. *Journal of hydrology* 373(3), 302–315.
- Kiraly, L. (1998). Modelling karst aquifers by the combined discrete channel and continuum approach. *Bulletin d'Hydrogéologie* 16, 77–98.
- Kiraly, L. (2003). Karstification and groundwater flow. *Speleogenesis and Evolution of Karst Aquifers*.
- Klimchouk, A. (2004). Towards defining, delimiting and classifying epikarst : Its origin, processes and variants of geomorphic evolution. *Speleogenesis and Evolution of Karst Aquifers* 2(1), 1–13.
- Labat, D., R. Ababou, and A. Mangin (2000). Rainfall–runoff relations for karstic springs. part i : convolution and spectral analyses. *Journal of Hydrology* 238(3), 123–148.
- Labat, D. and A. Mangin (2015). Transfer function approach for artificial tracer test interpretation in karstic systems. *Journal of Hydrology* 529, 866–871.
- Larocque, M., A. Mangin, M. Razack, and O. Banton (1998). Contribution of correlation and spectral analyses to the regional study of a large karst aquifer (charente, france). *Journal of Hydrology* 205(3), 217 – 231.
- Lauber, U., W. Ufrecht, and N. Goldscheider (2014). Spatially resolved information on karst conduit flow from in-cave dye tracing. *Hydrology and Earth System Sciences* 18(2), 435–445.
- Laveuf, C., S. Cornu, L. R. G. Guilherme, A. Guerin, and F. Juillot (2012). The impact of redox conditions on the rare earth element signature of redoximorphic features in a soil sequence developed from limestone. *Geoderma* 170, 25–38.
- Le Moine, N., V. Andréassian, and T. Mathevet (2008, March). Confronting surface- and groundwater balances on the La Rochefoucauld-Touvre karstic system (Charente, France). *Water Resour. Res.* 44(3), W03403.
- Lee, E. S. and N. C. Krothe (2001). A four-component mixing model for water in a karst terrain in south-central indiana, usa. using solute concentration and stable isotopes as tracers. *Chemical Geology* 179(1), 129–143.
- Lee, E. S. and N. C. Krothe (2003). Delineating the karstic flow system in the upper lost river drainage basin, south central indiana : using sulphate and  $\delta^{34}\text{S}$  as tracers. *Applied Geochemistry* 18(1), 145–153.

- Li, J., Y. Qi, Y. Zhong, L. Yang, Y. Xu, P. Lin, S. Wang, and J. He (2016). Karst aquifer characterization using storm event analysis for black dragon springshed, beijing, china. *{CATENA}* 145, 30 – 38.
- Liñán Baena, C., B. Andreo, J. Mudry, and F. Carrasco Cantos (2009). Groundwater temperature and electrical conductivity as tools to characterize flow patterns in carbonate aquifers : The sierra de las nieves karst aquifer, southern spain. *Hydrogeology Journal* 17(4), 843–853.
- Lloyd, J. W. and J. A. Heathcote (1985, January). Natural inorganic hydrochemistry in relation to ground water.
- Long, A. J. and J. F. Valder (2011). Multivariate analyses with end-member mixing to characterize groundwater flow : Wind cave and associated aquifers. *Journal of Hydrology* 409(1–2), 315 – 327.
- Luhmann, A. J., M. D. Covington, S. C. Alexander, S. Y. Chai, B. F. Schwartz, J. T. Groten, and E. C. A. Jr. (2012). Comparing conservative and nonconservative tracers in karst and using them to estimate flow path geometry. *Journal of Hydrology* 448–449, 201 – 211.
- Mahler, B., D. Valdes, M. Musgrove, and N. Massei (2008). Nutrient dynamics as indicators of karst processes : Comparison of the chalk aquifer (normandy, france) and the edwards aquifer (texas, u.s.a.). *Journal of Contaminant Hydrology* 98(1–2), 36 – 49.
- Mahler, B. J. and F. L. Lynch (1999). Muddy waters : temporal variation in sediment discharging from a karst spring. *Journal of Hydrology* 214(1), 165–178.
- Mahler, B. J., L. Lynch, and P. C. Bennett (1999). Mobile sediment in an urbanizing karst aquifer : implications for contaminant transport. *Environmental geology* 39(1), 25–38.
- Mahler, B. J., J.-C. Personné, G. F. Lods, and C. Drogue (2000). Transport of free and particulate-associated bacteria in karst. *Journal of Hydrology* 238(3), 179–193.
- Maloszewski, P., W. Stichler, A. Zuber, and D. Rank (2002). Identifying the flow systems in a karstic-fissured-porous aquifer, the schneealpe, austria, by modelling of environmental 18 o and 3 h isotopes. *Journal of Hydrology* 256(1), 48–59.
- Mangin, A. (1971). Etude des débits classés d'exutoires karstiques portant sur un cycle hydrologique. *Ann. Spéléol.*, 26, 2, p 283–329.
- Mangin, A. (1975). *Contribution à l'étude hydrodynamique des aquifères karstiques*. Ph. D. thesis, Laboratoire souterrain du C.N.R.S., Moulis, France.
- Mangin, A. (1984). Pour une meilleure connaissance des systèmes hydrologiques à partir des analyses corrélatoire et spectrale. *Journal of hydrology* 67(1-4), 25–43.
- Maréchal, J.-C., J.-J. Braun, J. Riotte, J.-P. B. Bedimo, and J.-L. Boeglin (2011). Hydrological processes of a rainforest headwater swamp from natural chemical tracing in nsimi watershed, cameroon. *Hydrological Processes* 25(14), 2246–2260.
- Maréchal, J.-C., B. Ladouche, N. Dörfli, and P. Lachassagne (2008, May). Interpretation of pumping tests in a mixed flow karst system. *Water Resour. Res.* 44(5), W05401.
- Marsaud, B. (1996). *Structure et fonctionnement de la zone noyée des karsts à partir des résultats expérimentaux*. Ph. D. thesis, Université Paris XI Orsay.
- Martin, J. B. and R. W. Dean (1999). Temperature as a natural tracer of short residence times for groundwater in karst aquifers. *Karst Modeling. Karst Waters Institute Special Publication* 5, 236–242.
- Martin, J. B. and R. W. Dean (2001, September). Exchange of water between conduits and matrix in the Floridan aquifer. *Chemical Geology* 179(1–4), 145–165.
- Massei, N., J. P. Dupont, B. J. Mahler, B. Laignel, M. Fournier, D. Valdes, and S. Ogier (2006). Investigating transport properties and turbidity dynamics of a karst aquifer using correlation, spectral, and wavelet analyses. *Journal of hydrology* 329(1), 244–257.
- Massei, N., H. Q. Wang, J. P. Dupont, J. Rodet, and B. Laignel (2003). Assessment of direct transfer and resuspension of particles during turbid floods at a karstic spring. *Journal of hydrology* 275(1), 109–121.

- Massei, N., H. Q. Wang, M. S. Field, J. P. Dupont, M. Bakalowicz, and J. Rodet (2006). Interpreting tracer breakthrough tailing in a conduit-dominated karstic aquifer. *Hydrogeology Journal* 14(6), 849–858.
- Mayaud, C., T. Wagner, R. Benischke, and S. Birk (2014). Single event time series analysis in a binary karst catchment evaluated using a groundwater model (Iurbach system, Austria). *Journal of hydrology* 511, 628–639.
- McCarthy, J. F. and L. Shevenell (1998). Processes controlling colloid composition in a fractured and karstic aquifer in eastern Tennessee, USA. *Journal of Hydrology* 206(3-4), 191–218.
- McCuen, R. H. (2004, April). *Hydrologic Analysis and Design* (3 edition ed.). Upper Saddle River, N.J. : Pearson.
- McLennan, S. M. (1989). Rare earth elements in sedimentary rocks; influence of provenance and sedimentary processes. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry* 21(1), 169–200.
- Meyerhoff, S. B., R. M. Maxwell, A. Revil, J. B. Martin, M. Karaoulis, and W. D. Graham (2014). Characterization of groundwater and surface water mixing in a semiconfined karst aquifer using time-lapse electrical resistivity tomography. *Water Resources Research* 50(3), 2566–2585.
- Morales, T., J. A. Uriarte, M. Olazar, I. Antigüedad, and B. Angulo (2010). Solute transport modelling in karst conduits with slow zones during different hydrologic conditions. *Journal of hydrology* 390(3), 182–189.
- Morasch, B. (2013). Occurrence and dynamics of micropollutants in a karst aquifer. *Environmental pollution* 173, 133–137.
- Moussa, R. (1996, September). Analytical Hayami Solution for the Diffusive Wave Flood Routing Problem with Lateral Inflow. *Hydrol. Process.* 10(9), 1209–1227.
- Moussa, R. (1997). Geomorphological transfer function calculated from digital elevation models for distributed hydrological modelling. *Hydrological Processes* 11(5), 429–449.
- Moussa, R. and C. Bocquillon (1996, November). Criteria for the choice of flood-routing methods in natural channels. *Journal of Hydrology* 186(1), 1–30.
- Moussa, R., M. Voltz, and P. Andrieux (2002). Effects of the spatial organization of agricultural management on the hydrological behaviour of a farmed catchment during flood events. *Hydrological Processes* 16(2), 393–412.
- Moussu, F. (2011). *Prise en compte du foncionnement hydrodynamique dans la modélisation pluie débit des systèmes karstiques*. Ph. D. thesis, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI.
- Moussu, F., L. Oudin, V. Plagnes, A. Mangin, and H. Bendjoudi (2011). A multi-objective calibration framework for rainfall–discharge models applied to karst systems. *Journal of Hydrology* 400(3), 364–376.
- Mudarra, M. and B. Andreo (2011). Relative importance of the saturated and the unsaturated zones in the hydrogeological functioning of karst aquifers : The case of Alta Cadena (southern Spain). *Journal of Hydrology* 397(3–4), 263 – 280.
- Mudarra, M., B. Andreo, A. I. Marín, I. Vadillo, and J. A. Barberá (2014). Combined use of natural and artificial tracers to determine the hydrogeological functioning of a karst aquifer : the Villanueva del Rosario system (Andalusia, southern Spain). *Hydrogeology Journal* 22(5), 1027–1039.
- Mudry, J. (1987). *Apport du traçage physico-chimique naturel à la connaissance hydrocinématique des aquifères carbonatés*. Ph. D. thesis, Université de Besançon.
- Mudry, J., A. Charmoille, N. Robbe, C. Bertrand, C. Batiot, C. Emblanch, and J. Mettetal (2002). Use of hydrochemistry to display a present recharge of confined karst aquifers. case study of the Doubs valley, Jura mountains, eastern France. *Karst and Environment*, pp. 123–129.
- Mudry, J.-M. (1998). *Rapport hydrogéologique - Protection du captage d'eau potable de la source d'En Analoz*.
- Mudry, J.-M., F. Degiorgi, E. Lucot, and P.-M. Badot (2015). Middle term evolution of water chemistry in a karst river : example from the Loue river (Jura mountains, eastern France). pp. 147–151.

- Muralt, R. (1999). *Processus hydrogéologiques et hydrochimiques dans les circulations profondes des calcaires du Malm de l'arc jurassien (zones de Delémont, Yverdon-les-Bains, Moiry, Genève et Aix-les-Bains)*. [Medienkombination] : Buch. Ph. D. thesis, Schweizerische Geotechnische Komm.
- OFEV (2002). *Utilisation des traceurs artificiels en hydrogéologie*.
- OFEV (2016). *La canicule et la sécheresse de l'été 2015*.
- Padilla, A. and A. Pulido-Bosch (1995). Study of hydrographs of karstic aquifers by means of correlation and cross-spectral analysis. *Journal of Hydrology* 168(1), 73 – 89.
- Panno, S., K. Hackley, H. Hwang, S. Greenberg, I. Krapac, S. Landsberger, and D. O'Kelly (2006). Characterization and identification of na-cl sources in ground water. *Ground Water* 44(2), 176–187.
- Payn, R., M. Gooseff, B. McGlynn, K. Bencala, and S. Wondzell (2009). Channel water balance and exchange with subsurface flow along a mountain headwater stream in montana, united states. *Water Resources Research* 45(11).
- Perrin, J., P.-Y. Jeannin, and F. Cornaton (2007, January). The role of tributary mixing in chemical variations at a karst spring, Milandre, Switzerland. *Journal of Hydrology* 332(1–2), 158–173.
- Perrin, J., P.-Y. Jeannin, and F. Zwahlen (2003). Epikarst storage in a karst aquifer : a conceptual model based on isotopic data, Milandre test site, Switzerland. *Journal of hydrology* 279(1), 106–124.
- Peterson, E. W. and C. M. Wicks (2006, September). Assessing the importance of conduit geometry and physical parameters in karst systems using the storm water management model (SWMM). *Journal of Hydrology* 329(1–2), 294–305.
- Pinault, J.-L., V. Plagnes, L. Aquilina, and M. Bakalowicz (2001). Inverse modeling of the hydrological and the hydrochemical behavior of hydrosystems : characterization of karst system functioning. *Water Resources Research* 37(8), 2191–2204.
- Pokrovsky, O. S., R. M. Manasyrov, S. V. Loiko, I. A. Krickov, S. G. Kopysov, L. G. Kolesnichenko, S. N. Vorobyev, and S. N. Kirpotin (2016). Trace element transport in western siberian rivers across a permafrost gradient. *Biogeosciences* 13(6), 1877.
- Pronk, M., N. Goldscheider, and J. Zopfi (2006). Dynamics and interaction of organic carbon, turbidity and bacteria in a karst aquifer system. *Hydrogeology Journal* 14(4), 473–484.
- Pronk, M., N. Goldscheider, and J. Zopfi (2007). Particle-size distribution as indicator for fecal bacteria contamination of drinking water from karst springs. *Environmental Science & Technology* 41(24), 8400–8405.
- Pronk, M., N. Goldscheider, and J. Zopfi (2009a). Microbial communities in karst groundwater and their potential use for biomonitoring. *Hydrogeology Journal* 17(1), 37–48.
- Pronk, M., N. Goldscheider, and J. Zopfi (2009b). Microbial communities in karst groundwater and their potential use for biomonitoring. *Hydrogeology Journal* 17(1), 37–48.
- Quiers, M., C. Batiot-Guilhe, C. C. Bicalho, Y. Perrette, J.-L. Seidel, and S. Van Exter (2014). Characterisation of rapid infiltration flows and vulnerability in a karst aquifer using a decomposed fluorescence signal of dissolved organic matter. *Environmental Earth Sciences* 71(2), 553–561.
- Reed, T. M., J. Todd McFarland, A. E. Fryar, A. W. Fogle, and J. L. Taraba (2010, March). Sediment discharges during storm flow from proximal urban and rural karst springs, central Kentucky, USA. *Journal of Hydrology* 383(3–4), 280–290.
- Reimann, T., T. Geyer, W. B. Shoemaker, R. Liedl, and M. Sauter (2011). Effects of dynamically variable saturation and matrix-conduit coupling of flow in karst aquifers. *Water Resources Research* 47(11).
- Rimmer, A. and Y. Salingar (2006). Modelling precipitation-streamflow processes in karst basin : The case of the jordan river sources, israel. *Journal of Hydrology* 331(3), 524–542.
- Roques, C., L. Aquilina, O. Bour, J.-C. Maréchal, B. Dewandel, H. Pauwels, T. Labasque, V. Vergnaud-Ayraud, and R. Hochreutener (2014). Groundwater sources and geochemical processes in a crystalline fault aquifer. *Journal of Hydrology* 519, Part D, 3110 – 3128.

- Ruehl, C., A. T. Fisher, C. Hatch, M. L. Huertos, G. Stemler, and C. Shennan (2006, October). Differential gauging and tracer tests resolve seepage fluxes in a strongly-losing stream. *Journal of Hydrology* 330(1-2), 235–248.
- Runkel, R. L. (1996). Solution of the advection-dispersion equation : Continuous load of finite duration. *Journal of Environmental Engineering* 122(9), 830–832.
- Runkel, R. L. (1998). One-dimensional transport with inflow and storage (OTIS) : a solute transport model for streams and rivers. Water-Resources Investigations Report, U.S. GEOLOGICAL SURVEY.
- Runkel, R. L. and S. C. Chapra (1993). An efficient numerical solution of the transient storage equations for solute transport in small streams. *Water Resources Research*, vol 29, No. 1, pages 211-215.
- Saint-Venant, A. d. (1871). ‘theorie du mouvement non permanent des eaux, avec application aux crues des rivieres et a l’introduction de mares dans leurs lits.’. *Comptes rendus des seances de l’Academie des Sciences* 36, 174–154.
- Sauter, M. (1992). Quantification and forecasting of regional groundwater flow and transport in a karst aquifer (Gallusquelle, Malm, SW. Germany).
- Savoy, L. (2007). *Use of natural and artificial reactive tracers to investigate the transfer of solutes in karst systems*. Ph. D. thesis, Université de Neuchâtel (Suisse).
- Schnegg, P.-A. and N. Dörfliger (1997). An inexpensive flow-through field fluorometer. *6th Conference on Limestone Hydrogeology and Fissured Media, La Chaux-de-Fonds, Switzerland*.
- Shevenell, L. and J. F. McCarthy (2002). Effects of precipitation events on colloids in a karst aquifer. *Journal of Hydrology* 255(1), 50–68.
- Shuster, E. T. and W. B. White (1971). Seasonal fluctuations in the chemistry of lime-stone springs : A possible means for characterizing carbonate aquifers. *Journal of Hydrology* 14(2), 93–128.
- Singh, V. P. (2002). Is hydrology kinematic? *Hydrological Processes* 16(3), 667–716.
- Smart, C. C. (1988, July). Artificial Tracer Techniques for the Determination of the Structure of Conduit Aquifers. *Ground Water* 26(4), 445–453.
- SOes and AEE (2009). *CORINE Land Cover France - Guide d’utilisation - SOes and Agence Européenne de l’Environnement*.
- soletco (1992). *Rapport du forage de reconnaissance sur le camp de Valdahon du bureau d’études SO-LETCO*.
- Sommaruga, A. (1997). *Geology of the Central Jura and the Molasse Basin : New Insight Into an Evaporite-based Foreland Fold and Thrust Belt*. Ph. D. thesis, Société neuchâteloise des Sciences naturelles.
- Steinmann, M. and P. Stille (1997). Rare earth element behavior and pb, sr, nd isotope systematics in a heavy metal contaminated soil. *Applied Geochemistry* 12(5), 607–623.
- Steinmann, M. and P. Stille (2008). Controls on transport and fractionation of the rare earth elements in stream water of a mixed basaltic–granitic catchment basin (massif central, france). *Chemical Geology* 254(1), 1–18.
- Szeftel, P., R. (Dan) Moore, and M. Weiler (2011, January). Influence of distributed flow losses and gains on the estimation of transient storage parameters from stream tracer experiments. *Journal of Hydrology* 396(3-4), 277–291.
- Taylor, S. R. and S. M. McLennan (1985). The continental crust : its composition and evolution.
- Tepe, N. and M. Bau (2014). Importance of nanoparticles and colloids from volcanic ash for riverine transport of trace elements to the ocean : evidence from glacial-fed rivers after the 2010 eruption of eyjafjallajökull volcano, iceland. *Science of the Total Environment* 488, 243–251.
- Tepe, N. and M. Bau (2015). Distribution of rare earth elements and other high field strength elements in glacial meltwaters and sediments from the western greenland ice sheet : Evidence for different sources of particles and nanoparticles. *Chemical Geology* 412, 59–68.



- Teutsch, G. and M. Sauter (1998). Distributed parameter modelling approaches in karst hydrological investigations. *Bull Hydrogéol* 16, 99–109.
- Thurman, E. (1985). Amount of organic carbon in natural waters. In *Organic geochemistry of natural waters*, pp. 7–65. Springer.
- Tissier, G. (2012). *Ressource et gestion intégrée des eaux karstiques de montagne : analyse des impacts du changement climatique et de l'anthropisation des bassins versants*. Ph. D. thesis, Université Grenoble Alpes.
- Tissier, G., Y. Perrette, M. Dzikowski, J. Poulenard, F. Hobléa, E. Malet, and B. Fanget (2013). Seasonal changes of organic matter quality and quantity at the outlet of a forested karst system (la roche saint alban, french alps). *Journal of Hydrology* 482, 139 – 148.
- Vermot-Desroches, B. (2015). Réalités du changement climatique en Franche-Comté du milieu du XIXe siècle à nos jours. In *Histoire du climat en Franche-Comté du Jurassique à nos jours* (éditions du Belvédère ed.).
- Vesper, D. J., C. M. Loop, and W. B. White (2001). Contaminant transport in karst aquifers. *Theoretical and Applied Karstology* 13(14), 101–111.
- Vesper, D. J. and W. B. White (2003). Metal transport to karst springs during storm flow : an example from Fort Campbell, Kentucky/Tennessee, USA. *Journal of Hydrology* 276(1), 20–36.
- Vesper, D. J. and W. B. White (2004). Spring and conduit sediments as storage reservoirs for heavy metals in karst aquifers. *Environmental Geology* 45(4), 481–493.
- Wang, L., J. Q. Wu, W. J. Elliot, F. R. Fiedler, and S. Lapin (2014, February). Linear diffusion-wave channel routing using a discrete Hayami convolution method. *Journal of Hydrology* 509, 282–294.
- Werner, A., H. Hoetzel, P. Maloszewski, and W. Kaess (1998). Interpretation of tracer tests in karst systems with unsteady flow conditions. *IAHS Publications-Series of Proceedings and Reports-Intern Assoc Hydrological Sciences* 247, 15–26.
- White, W. B. (1969). Conceptual models for carbonate aquifers. *Ground Water* 7(3), 15–21.
- White, W. B. (2002). Karst hydrology : recent developments and open questions. *Engineering geology* 65(2), 85–105.
- Wold, S., K. Esbensen, and P. Geladi (1987). Principal component analysis. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems* 2(1), 37 – 52.
- Yu, B., S. Sombatpanit, C. W. Rose, C. a. A. Ciesiolka, and K. J. Coughlan (2000, September). Characteristics and Modeling of Runoff Hydrographs for Different Tillage Treatments. *Soil Science Society of America Journal* 64(5), 1763–1770.
- Zhou, H., A. Greig, J. Tang, C.-F. You, D. Yuan, X. Tong, and Y. Huang (2012). Rare earth element patterns in a chinese stalagmite controlled by sources and scavenging from karst groundwater. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 83, 1–18.
- Zhou, H., Q. Wang, J. Zhao, L. Zheng, H. Guan, Y. Feng, and A. Greig (2008). Rare earth elements and yttrium in a stalagmite from central china and potential paleoclimatic implications. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology* 270(1), 128–138.

---

## Table des figures

I.1	Schéma conceptuel du milieu karstique des plateaux du massif du Jura (Bichet and Campy, 2008) . . . . .	1
I.2	Modèle conceptuel des écoulements dans les aquifères karstiques (d'après Hartmann et al. (2014)). Les pointillés vert foncés et rouges correspondent respectivement aux interactions sol/épikarst et aux sous-systèmes des écoulements souterrains. . . . .	2
I.3	Transport et stockage de contaminations dissoute dans le système karstique par (1) des infiltrations diffuses et (2) des infiltrations localisées (d'après Savoy (2007)) . . . . .	3
I.4	Injection d'un traceur artificiel à la perte de la Verne dans le système de Fourbanne. . . . .	4
I.5	Modèle conceptuel des origines et des processus physiques contrôlant la composition chimique des sédiment prélevés à la source (d'après Vesper and White (2004)) . . . . .	5
I.6	Formes des éléments chargés positivement en solution dans l'eau selon leur charge électrique $Z$ et leur rayon ionique $R$ (d'après Dewolf and Bourrié (2008)).	6
II.1	Localisation géographique (A) et carte du relief IGN avec la localisation des sites d'étude (B) . . . . .	12
II.2	Schéma de la structure des principales unités géologiques du Massif du Jura tiré de Bichet and Campy (2008) d'après Sommaruga (1997) . . . . .	13
II.3	Série stratigraphique caractéristique du Massif du Jura modifiée d'après Bichet and Campy (2008) en lien avec les principales caractéristiques hydrogéologiques et la localisation des systèmes karstiques étudiés . . . . .	14
II.4	Carte des précipitations annuelles moyennes sur la période 1981-2010 en fonction du relief (modifiée d'après Vermot-Desroches (2015)). Données disponibles uniquement coté français. . . . .	15
II.5	Hétérogénéité des profondeurs de sol au contact de la roche carbonatée (Photo E. Lucot) . . . . .	16
II.6	Nombreuses dolines présentes sur l'axe Fontenotte-Grosbois-Fourbanne (photo prise en amont et à proximité de la source de Fourbanne) . . . . .	18
II.7	Description de la zone de recharge du système karstique de Fourbanne avec (a) la carte géologique et (b) la carte de l'occupation des sols. . . . .	19
II.8	Coupes géologiques dans la région des Avant-Monts d'après Charmoille (2005)	20
II.9	Perte de la Verne en basses eaux . . . . .	20

II.10	Relation entre la structure du réseau d'En-Versennes et la fracturation observée dans la zone des Avants-Monts d'après Charmoille (2005) et la topographie du réseau d'En-Versennes réalisée par l'ASDC (Association Spéléologique du Doubs Central) . . . . .	21
II.11	Rivière souterraine dans le réseau d'En-Versennes vers Fontenotte (a) et maintenance puis étalonnage des équipements de la station de mesure (b). . . . .	22
II.12	Profil topographique en coupe et en plan du conduit karstique alimentant la source de Fourbanne . . . . .	22
II.13	Source de Fourbanne en basses eaux en octobre 2013 (a) et au cours de la crue exceptionnelle de novembre 1999 (b; Photo J. Prost), et maintenance des équipements de la station de mesure (c). . . . .	23
II.14	Captage de la source du Dahon (a) et fond du captage avec les arrivées d'eau (b) . . . . .	23
II.15	Description de la zone de recharge alimentant la source du Dahon avec (a) la carte géologique (BRGM, 3424), (b) l'occupation du sol d'après les données de Corine Land Cover 2012 (SOes and AEE, 2009) et (c) la carte pédologique décrivant les profondeurs des sols (Badot et al., 2016). . . . .	25
II.16	Coupe géologique de la transition entre le plateau d'Ornans (NNW) et le faisceau salinois (SSE) au niveau du village de Hautepierre (modifiée d'après Sommaruga (1997)), et localisation de la zone d'étude de la source du Grand Bief. . . . .	25
II.17	Vue de la source sur la vallée de la Loue et la pisciculture (a) et station de mesure à la source du Grand Bief (b) . . . . .	26
II.18	Description de la zone de recharge du système karstique de la source du Grand Bief avec (a) la carte géologique et (b) la carte de l'occupation des sols. . . . .	27
II.19	Schéma de la station de mesure à la source du Grand Bief . . . . .	28
II.20	Carte décrivant la profondeur des sols sur les zones agricoles du bassin alimentant les sources du Grand Bief et de la truite d'Or (adaptée d'après Badot et al. (2016) . . . . .	28
II.21	Coupe adaptée d'après Bitterli (1972) . . . . .	29
II.22	width=13cm . . . . .	31
II.23	Quantification des erreurs absolue et relatives réalisées sur les analyses hydrochimiques des prélèvements automatiques. L'aire grisée correspond à une erreur de relative de 0.5 mg.L <sup>-1</sup> . . . . .	32
II.24	Courbes de tarage et fréquence cumulée des hauteurs d'eau des différentes stations de mesures . . . . .	36
II.25	Relations entre COD analysé en laboratoire et le signal du fluorimètre (lampe 365 nm) sur les stations équipées de cet appareil . . . . .	37
II.26	Illustration du traitement des données acquises sur les sondes automatiques pour la mesure de conductivité électrique (EC) sur la station d'Epenoy au cours de l'année 2014 . . . . .	38
II.27	Illustration des données de turbidité à la source du Grand Bief à Lods au cours de l'année 2014 avec les mesures du fluorimètre de terrain brutes (en gris) et corrigées (en noir) et les mesures de la sonde multiparamètre (en bleu) munie d'un système de nettoyage automatique. . . . .	38
II.28	Fréquence de distribution et comparaison des mesures simultanées des sondes multiparamètres et des fluorimètres de terrain pour les sources de Fourbanne et du Grand Bief. . . . .	39
II.29	Installation de la station météorologique au niveau du village de Fontenotte . . . . .	40

II.30	Précipitations cumulées aux stations MétéoFrance de Branne, Epenoy et la Boissau de-Rochejean pour la période du 01/04/2014 au 01/04/2015 en fonction des celles mesurées à la station de Fontenotte . . . . .	40
II.31	Plaque lysimétrique en cours d'installation dans un sol très superficiel avec au premier plan le raccord du tuyau de récolte ((Badot et al., 2016) et cliché : Eric Lucot) . . . . .	41
III.1	Précipitations annuelles entre 1990-2016 à partir des données de Météo France à Besançon . . . . .	48
III.2	Données climatiques mensuelles des années 2014, 2015 et 2016 et de la période 1990-2016 (gris) à partir des données de Météo France à Besançon avec (a) les précipitations, (b) l'évapotranspiration potentielle et (c) les températures moyennes. . . . .	48
III.3	Pourcentage de jour avec couverture neigeuse pour les années 2014, 2015 et 2016 aux stations Météo France de Branne, Epenoy et Boissau de . . . . .	49
III.4	Débit moyens mesurés sur la période pour les années 2014, 2015 et 2016 . . .	49
III.5	Corrélogramme simple des précipitations (a.) et des débits (b.) au pas de temps journalier sur la période du 15/09/2014 au 01/12/2015 . . . . .	50
III.6	Corrélogramme croisé entre les précipitations et les débits au pas de temps horaire sur la période du 15/09/2014 au 01/12/2014 . . . . .	51
III.7	Courbes des débits classés sur les différentes stations de mesures. Les pointillés noirs correspondent aux ruptures de pente observées. Les pointillés rouges représentent les zones de transition entre les courbes de tarages en basses et hautes eaux qui auraient pu potentiellement biaiser l'analyse. . . . .	52
III.8	Évolution des températures aux différentes stations de mesures . . . . .	54
III.9	Fréquences de distribution des chroniques des températures (a) et de conductivité électrique (b). . . . .	55
III.10	Distribution des fréquences cumulées de la turbidité des différentes stations de mesures équipées . . . . .	56
III.11	Fréquences de distribution de suivi semi-quantitatif du COD* pour des valeurs entre 0 et 10 mg.L <sup>-1</sup> et des classes de 1 mg.L <sup>-1</sup> . . . . .	57
III.12	Corrélogrammes croisés sur l'ensemble des chroniques des différentes stations (analyses des données au pas de temps horaire) . . . . .	59
III.13	Corrélogrammes croisés précipitation-température sur l'ensemble des chroniques des différentes stations (analyses des données au pas de temps horaire)) . . . . .	60
III.14	Corrélogramme croisé entre les températures moyennes extérieures journalières et les températures de l'eau mesurées aux sources sur la période 2014 à 2016 au pas de temps journalier (figure III.8). En complément un tableau résume les k et r(k) par station. . . . .	60
III.15	Boîtes à moustache des éléments majeurs et du COD réalisés à partir des analyses des prélèvements manuels et automatiques (pour les sources de Fourbanne et du Grand Bief). Les points correspondent aux valeurs extrêmes des boîtes à moustaches respectives et également à certaines valeurs extrêmes analysées au cours des suivis de crues. Les traits en pointillés correspondent aux valeurs médianes mesurées dans les précipitations par Atteia (1992) indiquées sur l'ensemble des éléments mis à part le COD et HCO <sub>3</sub> . . . . .	62
III.16	Relation entre les Na et Cl à partir des prélèvements manuels et automatiques sur les différentes stations de mesures . . . . .	64
III.17	Identification de l'origine des chlorures à la source du Dahon . . . . .	65

III.18	Relation $\text{Ca}^{2+}$ et $\text{SO}_4^{2-}$ entre les différentes stations de mesure (les * correspondent aux données tirées de Charmoille (2005)) . . . . .	66
III.19	boîtes à moustaches sol + PM/ PA et max min PC . . . . .	68
III.20	Relation entre les concentrations de $\text{SO}_4$ et Sr sur les différents systèmes . . .	69
III.21	Relation entre les concentrations de K et Rb sur les différents systèmes étudiés	70
III.22	Évolution hydrochimiques des sources de Fourbanne et du Grand Bief à partir des analyses réalisées sur les prélèvements automatiques (cercles vides) et les prélèvements manuels et de crues (cercles pleins). Les bandes roses indiquent les périodes d'étiage. . . . .	71
III.23	Analyse en composante principale sur les analyses des prélèvements automatiques aux sources de Fourbanne (violet) et du Grand Bief (bleu) avec les suivis de la conductivité électrique (EC) et la turbidité. . . . .	72
III.24	Na en fonction Cl à partir des prélèvements automatiques aux sources de Fourbanne et du Grand Bief et lien avec la période d'étiage de juin à octobre 2015. . . . .	73
III.25	Analyse en composante principale des analyses en éléments majeurs sur les prélèvements automatiques à la source de Fourbanne en relation avec les débits, la conductivité électrique, le COD* et la turbidité. . . . .	74
III.26	Analyse en composante principale des analyses en éléments majeurs sur les prélèvements automatiques à la source du Grand Bief en relation avec les débits, la conductivité électrique, le COD* et la turbidité. . . . .	75
IV.1	Suivi physico-chimique des différentes stations de mesures du 4 au 9 novembre 2014 . . . . .	79
IV.2	Corrélogrammes simples des précipitations sur la période du 04/11/2014 08 :00 au 09/11/2014 08 :00 au pas de temps horaire pour les stations MétéoFrance de Branne, Epenoy et la Boissaude-Rochejean. . . . .	80
IV.3	Corrélogrammes croisés du suivi physico-chimiques sur la période du 04/11/2014 08 :00 au 09/11/2014 08 :00 au pas de temps horaire. . . . .	81
IV.4	Suivi hydrochimique de la crue du 4 novembre 2014 pour les sources du Dahon, du Grand Bief et de Fourbanne . . . . .	84
IV.5	Suivi hydrochimique de la crue du 4 novembre 2014 pour les sources du Dahon, du Grand Bief et de Fourbanne . . . . .	85
IV.6	Analyse en composante principale du suivi de la crue de novembre 2014 à la source du Dahon en relation avec l'évolution des paramètres physico-chimiques.	86
IV.7	Représentation graphique de l'ACP illustrant l'évolution des individus du suivi de crue de novembre 2014 à la source du Dahon et les trois pôles de mélanges sélectionnés . . . . .	87
IV.8	Évolution de la contribution de chacun des pôles au cours de la crue de novembre 2014 dans la source du Dahon avec les incertitudes associées (en pointillées) et en relation avec les paramètres physico-chimiques mesurés. . . . .	88
IV.9	Comparaison entre concentrations mesurées à la source du Dahon (rond verts) et simulées par le modèle (trait rouge) . . . . .	88
IV.10	Suivi hydrochimique de la crue du 28 juin 2014 pour la source du Dahon, la rivière souterraine de Fontenotte et la source de Fourbanne . . . . .	90
IV.11	Suivi hydrochimique de la crue du 14 juin 2015 pour la source du Dahon, la rivière souterraine de Fontenotte et la source de Fourbanne . . . . .	93
IV.12	Analyse en composante principale du suivi de la crue de juin 2015 à la rivière souterraine de Fontenotte en relation avec l'évolution des paramètres physico-chimiques. . . . .	94

IV.13	Représentation graphique de l'ACP illustrant l'évolution du suivi de crue dans la rivière souterraine de Fontenotte et les trois pôles de mélange sélectionnés .	95
IV.14	Évolution de la contribution de chacun des pôles au cours de la crue de juin 2015 dans la rivière souterraine de Fontenotte avec les incertitudes associées (en pointillées) et en relation avec les paramètres physico-chimiques mesurés.	96
IV.15	Comparaison entre concentrations mesurées à la rivière souterraine de Fontenotte (rond orange) et simulées par le modèle (trait rouge) . . . . .	97
IV.16	Analyse en composante principale du suivi de la crue de juin 2015 à la source de Fourbanne en relation avec l'évolution des paramètres physico-chimiques. .	98
IV.17	Représentation graphique de l'ACP illustrant l'évolution du suivi de crue à la source de Fourbanne et les trois pôles de mélange sélectionnés . . . . .	99
IV.18	Évolution de la contribution de chacun des pôles au cours de la crue de juin 2015 à la source de Fourbanne avec les incertitudes associées (en pointillés) et en relation avec les paramètres physico-chimiques mesurée. . . . .	100
IV.19	Comparaison entre concentrations mesurées à la source de Fourbanne (rond violet) et simulées par le modèle (trait rouge) . . . . .	101
V.1	Location of the Dahon spring next to the village of Epenoy . . . . .	108
V.2	Evolution of rainfall, discharge, physico-chemical parameters, major element and DOC concentrations of 0.22 $\mu\text{m}$ filtered samples during the flood event (a), together with the corresponding PCA diagram of the individuals (b) and the contributions of the individual factors (c). . . . .	109
V.3	Synthesis of the evolution of rainfall, discharge, physico-chemical parameters, and the chemical composition of the solute and the particulate fraction during the flood event, expressed as normalized values (from 0 in dark blue color to 1 in bright yellow). The lowermost block shows the SPM/dissolved load partition coefficients $K_d$ for elements analyzed in both fractions. . . . .	112
V.4	. . . . .	113
V.5	Upper Continental Crust (PAAS) - normalized REE distribution patterns of spring water, soil and rock samples. The soil and rock leachates are laboratory batch leachates with distilled water. All soil and rock data are average values from 3 subsamples. No La and Eu data are given for spring water samples because of the filter blank problem mentioned in Section 2.2. The SPM fractions reach highest REE concentrations during flood stage 1 (patterns in pink), and the dissolved fractions during flood stage 2 (patterns in red). The REE patterns of the SPM fractions remain always flat, thus similar to soil. In contrast, the dissolved spring water fractions have less negative Ce-anomalies during flood stage 2, indicating a stronger contribution of soil-derived REE. . . . .	114
V.6	Evolution of Nd concentrations and Ce-anomalies of the dissolved spring water fractions, and of Nd concentrations of the particulate fractions during the flood event. . . . .	114
V.7	Fe and Al concentrations of the SPM load compared with local rock and soils. The SPM samples reach highest Al and Fe concentrations during flood stage 2, approaching values typical for soils and shale interbeds. . . . .	116

V.8	Partitioning of elemental transfers between the $< 0.22 \mu\text{m}$ dissolved (in blue) and the $> 0.22 \mu\text{m}$ SPM fraction (in red). The values are based on total fluxes integrated over the entire flood event. Note that the "dissolved" fractions of Cd, Nd, Mn, and Al are not really dissolved but related to NPCs. The portions of mass transfer related to flood stages 1 and 2 are superposed as hatchures. Flood stage 1 lasted from 04/11/2014 16h00 to 04/11/2014 23h00, flood stage 2 from 04/11/2014 23h00 to 05/11/2014 12h00. . . . .	117
VI.1	Pourcentage de transfert des ETMs par la fraction inférieure à $0.22 \mu\text{m}$ sous forme dissoute ou colloïdale (en bleu) et par la fraction particulaire supérieure à $0.22\mu\text{m}$ (en gris) . . . . .	121
VI.2	Masses totales transférées au cours de la crue de juin 2015 (a) via la fraction $> 0.22\mu\text{m}$ et (b) la fraction totale, au cours de la crue du 14 juin 2015 à la source du Dahon (vert), rivière souterraine de Fontenotte (orange) et source de Fourbanne (violet) . . . . .	122
VI.3	Relation entre K et Rb au cours de la crue de juin 2015 pour la fraction filtrée ( $<0.22\mu\text{m}$ ) et la fraction totale ( $>0.22\mu\text{m}$ ) . . . . .	123
VI.4	Dynamiques entre la fraction filtrée et la fraction totale au cours de la crue de juin 2015 pour le potassium, le rubidium et l'aluminium. Les numéros indiqués correspondent aux prélèvements successifs à la rivière souterraine de Fontenotte.	123
VI.5	Dynamiques entre turbidité et COD au cours de la crue . . . . .	124
VI.6	Analyse en composantes principales pour la crue de juin 2015 à la rivière souterraine de Fontenotte combinant à la fois les teneurs mesurées dans la fraction filtrée ( $< 0.22 \mu\text{m}$ ; en bleu) et celles mesurées dans la fraction particulaire ( $> 0.22 \mu\text{m}$ ; en rouge). . . . .	125
VII.1	Diffusive wave equation to model lateral flood flow exchanges along a channel reach of length $L$ . The black curve $Q_{I,flood}$ depicts the evolution of the flow rate with time at the beginning of the channel (input), and the blue curve $Q_{O,flood}$ at the end (output). The dashed green curve $Q_{A,flood}$ corresponds to the lateral flow exchanges which are positive for lateral inflows or negative for lateral outflows. . . . .	136
VII.2	Framework to investigate lateral exchange dynamics of water flows and solute fluxes along a channel reach. . . . .	139
VII.3	The Fourbanne karst system : (a) geographical localization, (b) hydrogeological map, (c) scheme of the main karst conduit network. . . . .	140
VII.4	Summary of the flood event selection sorted as a function of spring baseflow condition. . . . .	141
VII.5	Sensitivity analysis of the model parametrization. Graphs (a-b) illustrate the simulation of the routed input $Q_{I,routed}$ (dashed black lines) without lateral exchange, while graphs (a'-b') illustrate the inverse problem approach which simulate lateral flows $Q_{A,flood}$ (dashed green lines). Graphs (a-a') and (b-b') correspond to sensitivity test of $C_Q$ and $D_Q$ , respectively. . . . .	142
VII.6	Framework application on the event no. 1 in high-flow condition along the two reaches R1 (top) and R2 (bottom). Total flow and fluxes, base component and flood component, are represented in the first, second, and third column, respectively. . . . .	144

VII.7	Base and flood analyses of the selected event set. Orange and purple symbols correspond to the lateral-exchange modelling along R1 and R2, respectively. Base analysis is performed on mean values ( $\square$ ) exclusively whereas flood analysis takes in account minimum ( $\nabla$ ) and maximum ( $\triangle$ ) values of the calculated lateral exchanges ( $Q_{A,flood}$ & $M_{A,flood}$ ). Base (a) and flood (b) lateral flow ( $Q_{A,base}$ & $Q_{A,flood}$ ) are compared to the mean base and flood flow input ( $Q_{I,base}$ & $Q_{I,flood}$ ) and base (c) and flood (d) lateral solute fluxes ( $M_{A,base}$ & $M_{A,flood}$ ) are compared to the mean base and flood fluxes input ( $M_{I,base}$ & $M_{I,flood}$ ). . . . .	145
VII.8	Parametrization analysis of the selected event set. Orange and purple symbols correspond to R1 and R2, respectively. Each parameter of the model is compared with the maximum intensity of the flood flow input signal (logarithmic scale). . . . .	147
VII.9	Representation of the limit estimation between unsaturated and saturated conduits along R2 as a function of the mean spring base flow. U calculation corresponding to the percentage of conduit length of R2 located within the unsaturated zone. . . . .	148
VII.10	Hydrogeological functioning scheme of the Fourbanne karst aquifer, showing the contributions of lateral exchanges in terms of volume and mineralization for three hydrological conditions. For each graph, the representation of the lateral exchanges along the reaches (vertical black line) distinguishes the base component (left size) and the flood component (right size). . . . .	150
VII.11	Courbes de restitution des différents traçages réalisés à la rivière souterraine de Fontenotte et à la source du Fourbanne . . . . .	155
VII.12	Relation entre les temps (a) et vitesses (b) de transit mesurées pour les tronçons R1 et R2 . . . . .	155
VII.13	Illustration de l'utilisation de l'onde diffusante en régime permanent . . . . .	156
VII.14	Trois exemples de traçage sous des conditions hydrologiques variées . . . . .	157
A.1	Chronique des débits du 15/09/2014 au 01/12/2014 . . . . .	190
A.2	Chronique de la conductivité électrique du 15/09/2014 au 01/12/2014 . . . . .	191
A.3	Chronique de la turbidité du 15/09/2014 au 01/12/2014 . . . . .	192
A.4	Chronique du COD* du 15/09/2014 au 01/12/2014 . . . . .	193
B.1	Suivi physico-chimique des différentes stations de mesures du 28 juin au 2 juillet 2014 . . . . .	196
B.2	Suivi physico-chimique des différentes stations de mesures du 14 au 18 juin 2015	197
B.3	Corrélogrammes simples des précipitations sur la période du 14/06/2015 08 :00 au 24/06/2015 08 :00 au pas de temps horaire pour les stations MétéoFrance de Branne, Epenoy et la Boissau-de-Rochejean. . . . .	198
B.4	Corrélogrammes croisés du suivi physico-chimiques sur la période du 14/06/2015 08 :00 au 18/06/2015 08 :00 au pas de temps horaire. . . . .	198
C.1	Évolution des teneurs normalisés en Al, Fe, Mn, Ni, Ba, Co et Nd au cours de la crue de juin 2015 à la rivière souterraine de Fontenotte et comparées aux mesures de débit et de turbidité. . . . .	202





---

## Liste des tableaux

II.1	Tableau de synthèse des différentes sources étudiées . . . . .	17
II.2	Récapitulatif du type de prélèvements réalisé sur chaque site . . . . .	30
II.3	Campagne de suivi de crues . . . . .	31
II.4	Récapitulatif du nombre d'analyses après validation des données par type de prélèvements . . . . .	32
II.5	Récapitulatif de l'ensemble des mesures physico-chimiques en continu sur les différents sites d'étude (avec pour la turbidité (a) mesurée avec un fluorimètre et (b) mesurée avec une sonde multi-paramètre DS5X) . . . . .	33
III.1	Récapitulatif des corrélogrammes croisés précipitations brutes et débits au pas de temps journalier sur la période du 15/09/2014 au 01/12/2014 . . . . .	51
III.2	Résumé des valeurs de $k$ et $r(k)$ des corrélogrammes croisés au pas de temps horaire. Les valeurs de $k$ retenues correspondent aux $r(k)$ maximales pour les corrélogrammes précipitation-débit, précipitation-COD, précipitation-turbidité et aux $r(k)$ minimales pour le corrélogramme précipitation-EC. . . . .	58
IV.1	Résumé des valeurs de $k$ et $r(k)$ des corrélogrammes croisés au pas de temps horaire pour la crue de novembre 2014. Les valeurs de $k$ retenues correspondent aux corrélations maximales positives pour les débits, températures, COD* et turbidité et corrélation négatives pour la conductivité électrique. . . . .	82
VII.1	Résumé des traçages réalisés dans le drain principal du système de Fourbanne avec (s1) la perte de la Verne, (s2) la rivière souterraine de Fontenotte, (s3) la source de Fourbanne, R1 le tronçon entre s1 et S2 et R2 le tronçon entre s2 et s3. . . . .	154
B.1	Résumé des valeurs de $k$ et $r(k)$ des corrélogrammes croisés au pas de temps horaire pour la crue de juin 2015, ainsi que les temps de régulation (t.r.). Les valeurs de $k$ retenues correspondent corrélations maximales pour les débits, températures, COD et turbidité et corrélation inverse pour la conductivité électrique. . . . .	199
D.1	Notations . . . . .	204



---

# Liste des publications et communications

## Publications

- Cholet, C., Charlier, J.-B., Moussa, R., Steinmann, M., and Denimal, S. : Assessing lateral flows and solute transport during floods in a conduit-flow-dominated karst system using the inverse problem for the advection-diffusion equation, *Hydrol. Earth Syst. Sci. Discuss.*, *doi* : 10.5194/hess – 2016 – 565, in review, 2016.
- Cholet, C., Steinmann, M., Charlier, J.-B. and Denimal, S. : Characterizing dissolved and suspended matter related flood fluxes of trace metals in a karst aquifer using Rare Earth Elements as provenance indicator, in prep., 2017.
- Cholet C., M Steinmann, J.-B. Charlier, S Denimal, 2015. Comparative study of the physicochemical response of two karst systems during contrasting flood events in the French Jura mountains. In Andreo B. et al. (Eds), *Hydrogeological and Environmental Investigations in Karst Systems*, p 1-9, DOI10.1007/978 – 3 – 642 – 17435 – 31.

## Communications internationales

- Cholet C, Steinmann M, Charlier J-B, & Denimal S, 2016. Transport of solute and suspended matter elements during a flood event in a small karst aquifer. Eurokarst Conference 2016, Neuchâtel (CH), 5-7 Sept. 2016. *Oral communication*.
- Cholet C, Steinmann M, Denimal S & Charlier J-B, 2016. Transport and speciation of trace metals in karst aquifer during a flood event. Goldschmidt Conference 2016, Yokoyama (JP), 26 June - 1 July 2016. *Poster*.
- Cholet C, Charlier J-B, Steinmann M, Denimal S & Moussa R, 2015. Modeling transport processes in a karst system by comparing the physico-chemical response along the conduit network (French Jura Mountains), Roma (Italy), Sept. 2015. *Oral communication*.
- Cholet C, Steinmann M, Charlier J-B, Denimal S, Régent B & Loup C, 2014. Comparative study of the physico-chemical response of two karst systems to flood events (French Jura Mountains). 5th International Symposium on Karst (SIKA), Malaga (Spain), 14-16 Oct. 2014. *Poster*.

## Communications internes

- Cholet C, Steinmann M, Charlier J-B & Denimal S, 2015. Fonctionnement hydrogéologique et processus de transports des systèmes karstiques du Massif du Jura. Journée des docteurs du Laboratoire Chrono-Environnement, Besançon (FR), Dec 2015. *Communication orale*.

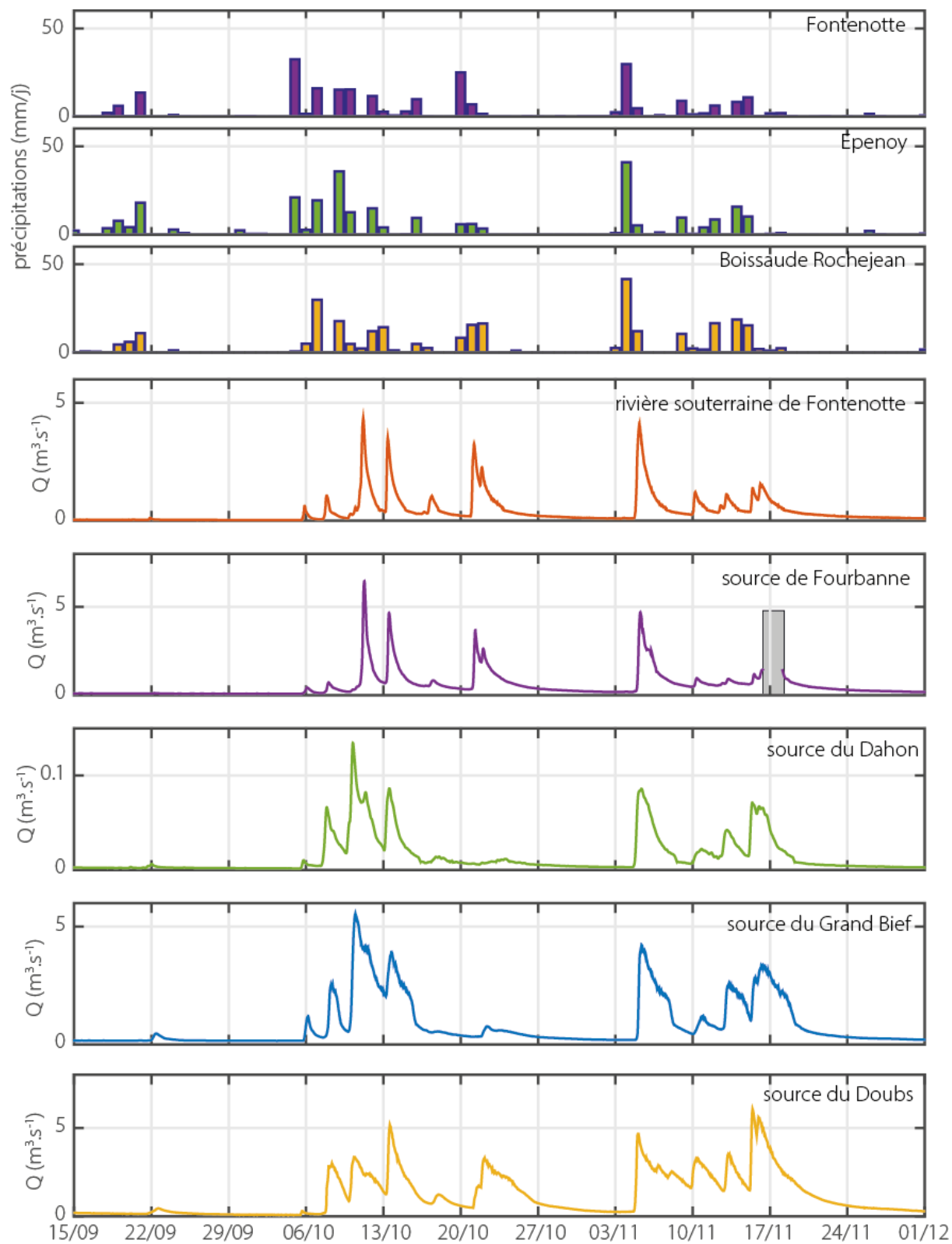
- Cholet C, Steinmann M, Charlier J-B, Denimal S, 2015. Rôle de la zone d'infiltration dans le fonctionnement hydrogéologique des systèmes karstiques du Massif du Jura, 4èmes journées des doctorants du BRGM, Orléans (FR), Avril 2015. *Communication orale*.
- Cholet C, Steinmann M, Charlier J-B, Denimal S, Régent B & Loup C, 2014. Etude comparative des réponses hydrodynamiques de deux systèmes karstiques du Massif du Jura, 20ème Forum des jeunes chercheurs (Ecole doctorale ES), Besançon (FR), Juin 2014. *Poster*.

# ANNEXES



**Évolutions physico-chimiques du 15/09/2014  
au 01/12/2014**



**FIGURE A.1** – Chronique des débits du 15/09/2014 au 01/12/2014

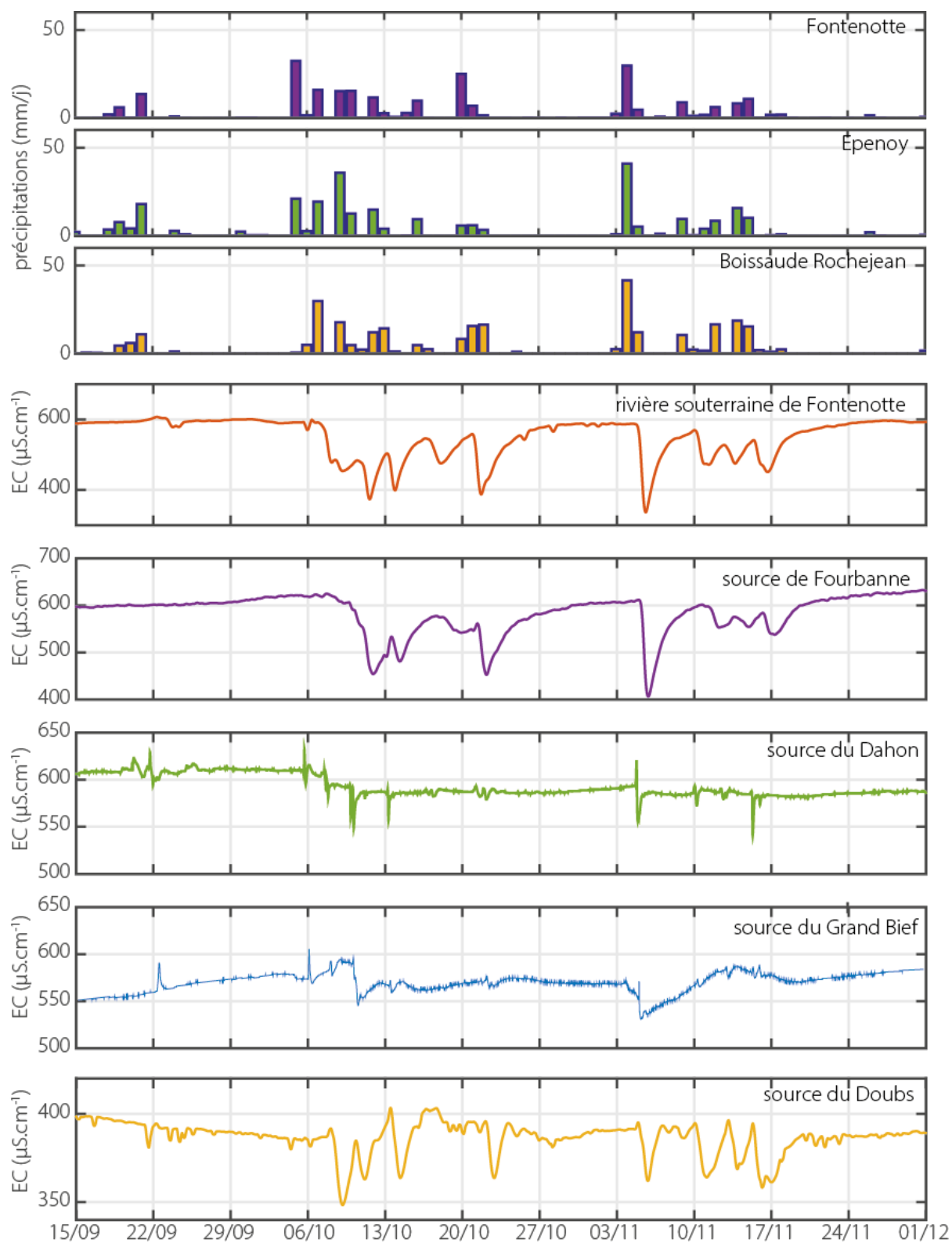
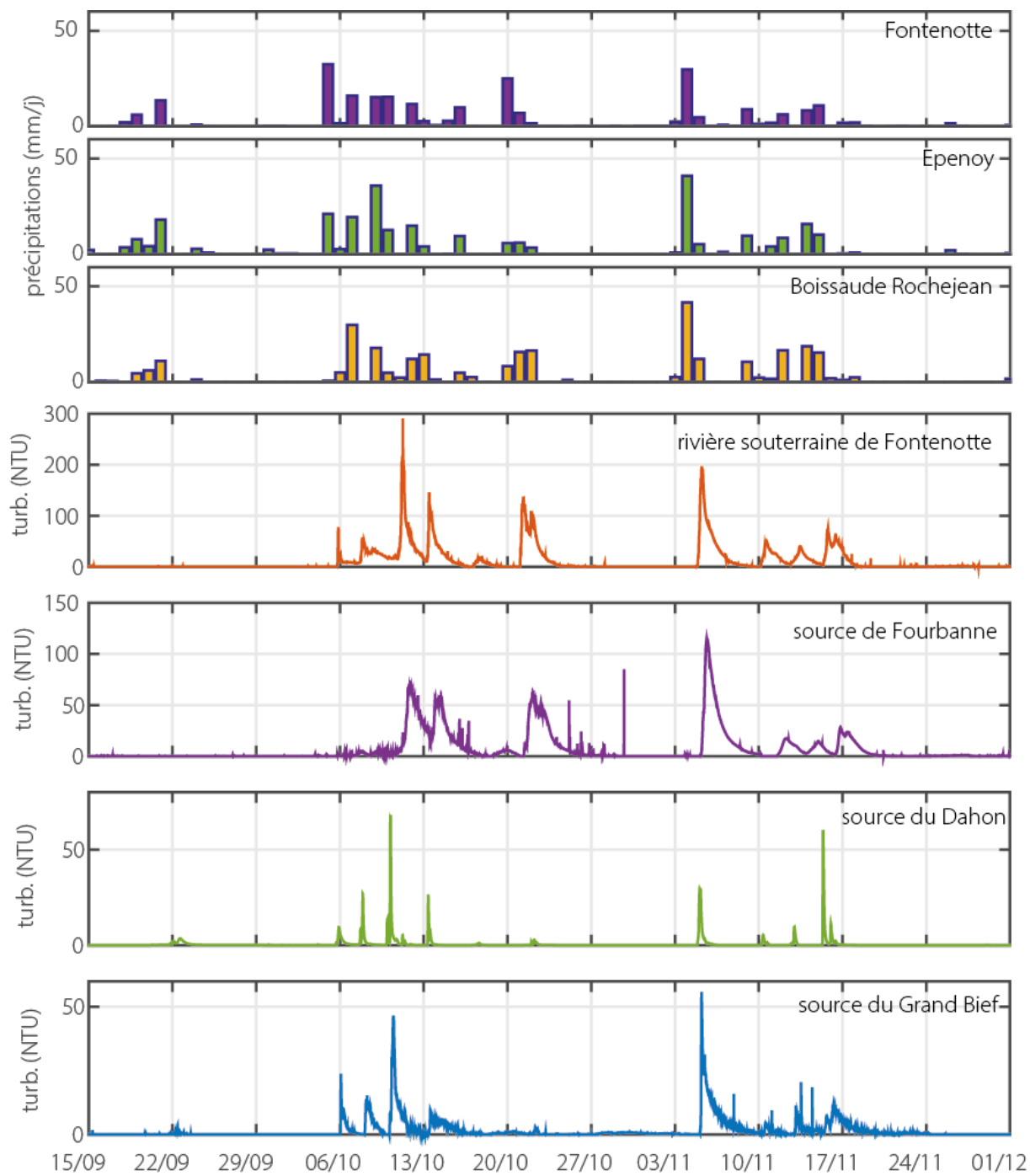
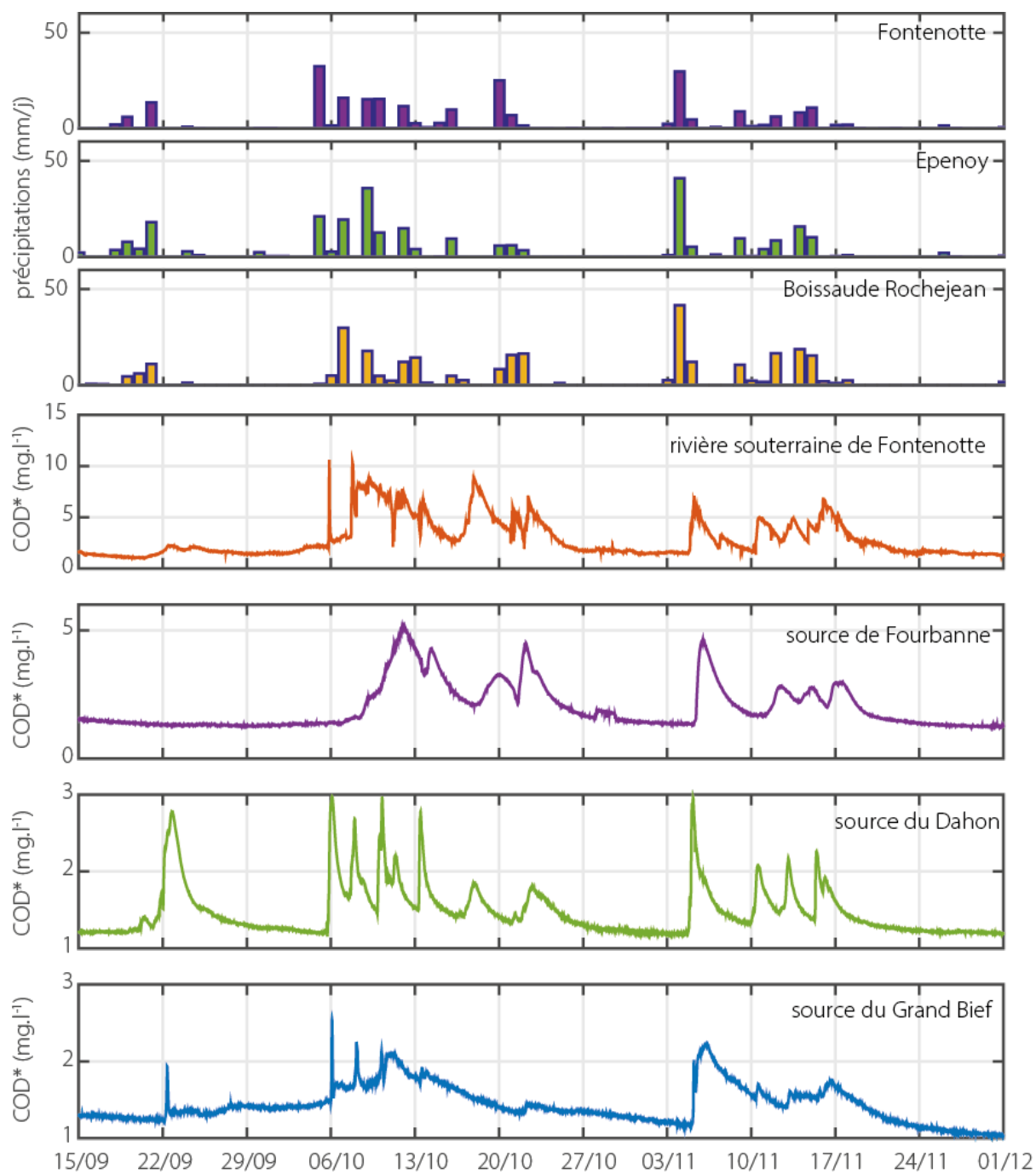


FIGURE A.2 – Chronique de la conductivité électrique du 15/09/2014 au 01/12/2014



**FIGURE A.3** – Chronique de la turbidité du 15/09/2014 au 01/12/2014



**FIGURE A.4** – Chronique du COD\* du 15/09/2014 au 01/12/2014



**Évolutions physico-chimiques au cours des  
crues de juin 2014 et juin 2015**

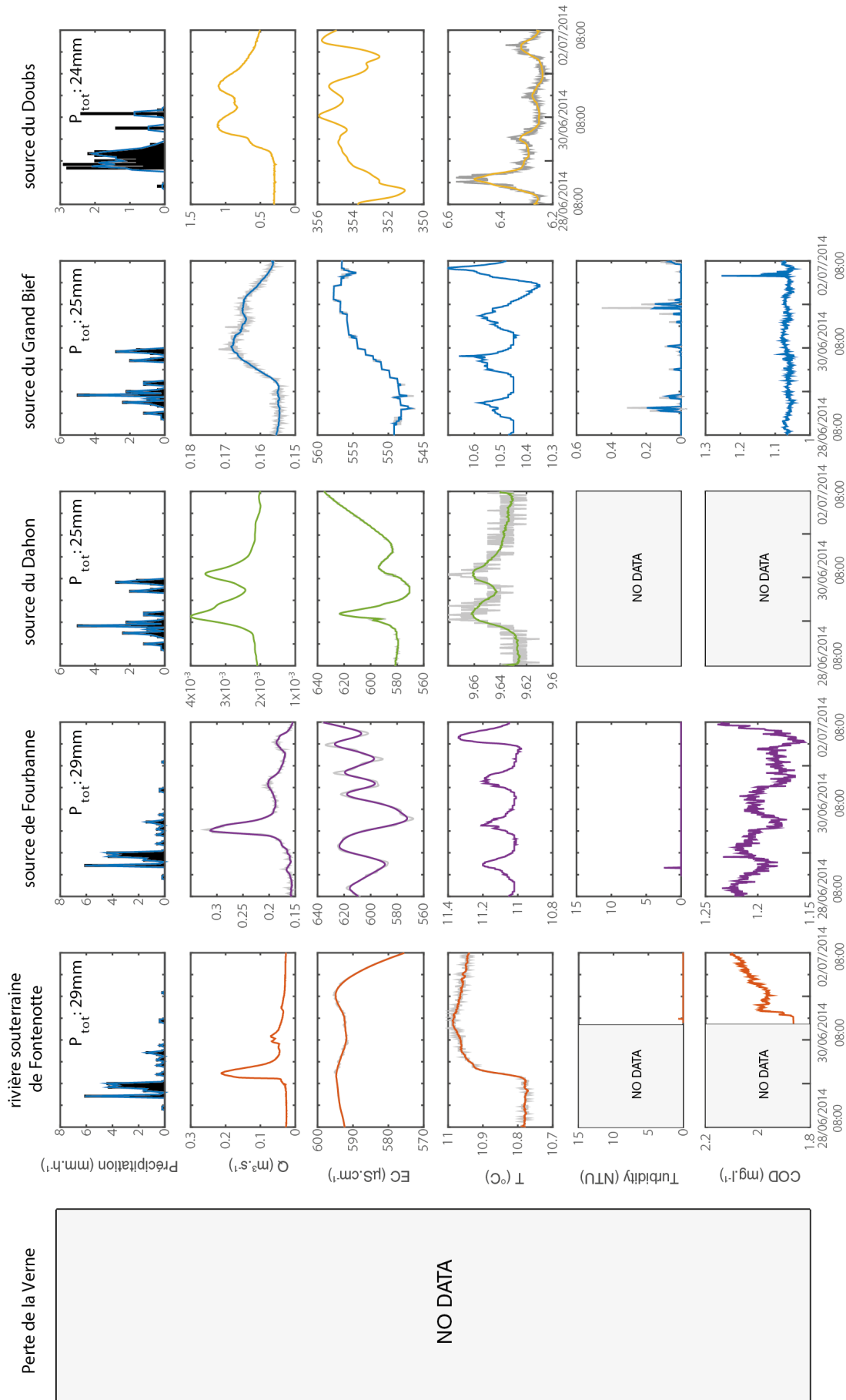
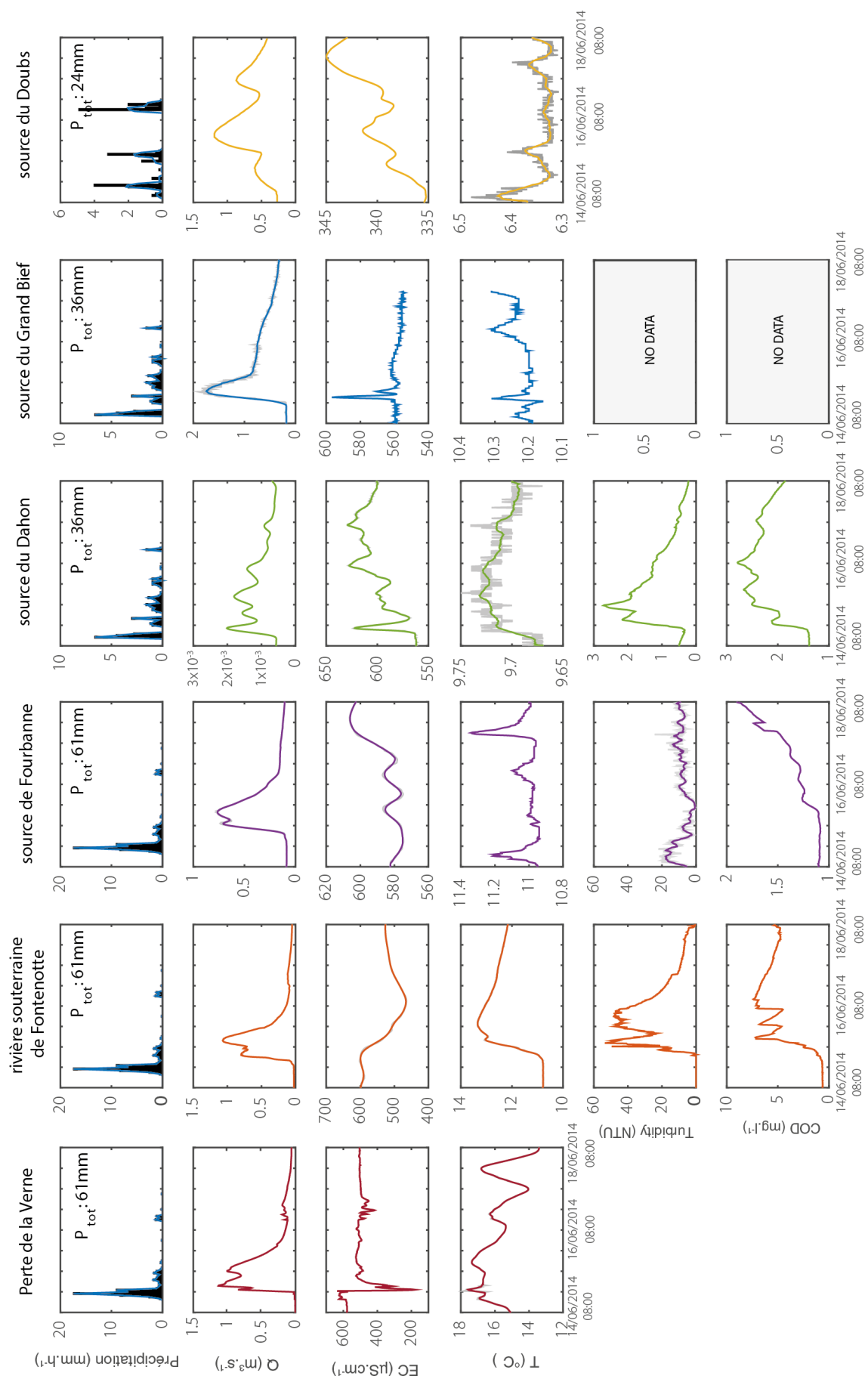
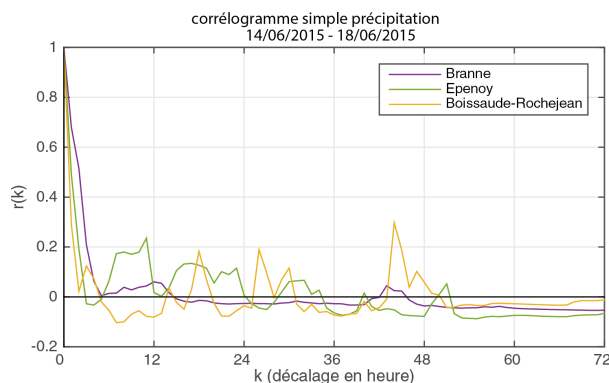


FIGURE B.1 – Suivi physico-chimique des différentes stations de mesures du 28 juin au 2 juillet 2014

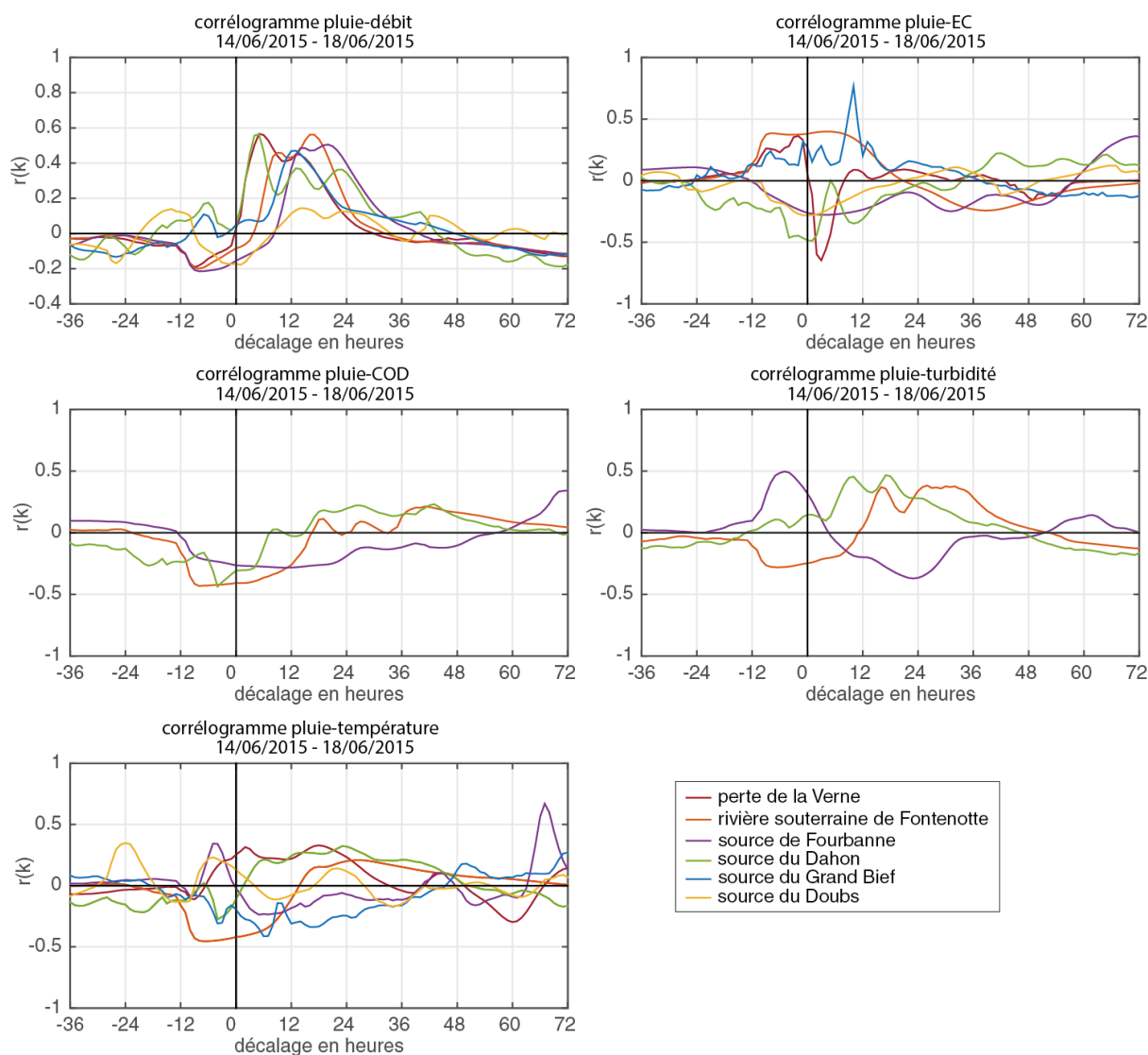


**FIGURE B.2** – Suivi physico-chimique des différentes stations de mesures du 14 au 18 juin 2015





**FIGURE B.3** – Corrélogrammes simples des précipitations sur la période du 14/06/2015 08 :00 au 24/06/2015 08 :00 au pas de temps horaire pour les stations MétéoFrance de Branne, Epenoy et la Boissau-de-Rochejean.



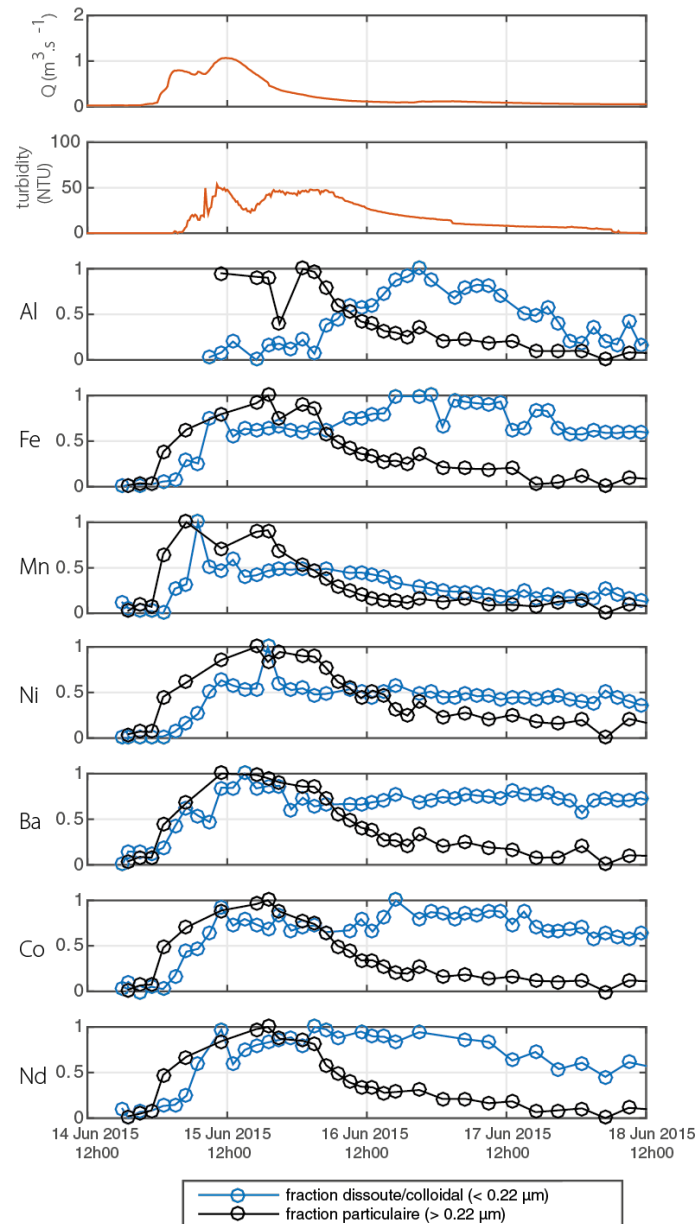
**FIGURE B.4** – Corrélogrammes croisés du suivi physico-chimiques sur la période du 14/06/2015 08 :00 au 18/06/2015 08 :00 au pas de temps horaire.

**TABLE B.1** – Résumé des valeurs de  $k$  et  $r(k)$  des corrélogrammes croisés au pas de temps horaire pour la crue de juin 2015, ainsi que les temps de régulation ( $t.r.$ ). Les valeurs de  $k$  retenues correspondent corrélations maximales pour les débits, températures, COD et turbidité et corrélation inverse pour la conductivité électrique.

		P-Q	P-EC	P-COD	P-turb.	P-temp.
Perte de la Verne	$k$	6 h	34 h	-	-	2 h
	$r(k)$	0.57	-0.58	-	-	0.30
Rivière souterraine de Fontenotte	$k$	10 h	35 h	39 h	25 h	25 h
	$r(k)$	0.51	-0.27	0.22	0.43	0.27
Source de Fourbanne	$k$	14 h	~	~	~	~
	$r(k)$	0.53	~	~	~	~
Source du Dahon	$k$	5 h	12 h	28 h	17 h	6 h
	$r(k)$	0.55	-0.20	0.25	0.41	0.33
Source du Grand Bief	$k$	13 h	-	-	-	~
	$r(k)$	0.56	-0.57	0.37	0.86	0.68
Source du Doubs	$k$	14 h	19 h	~	~	-8 h
	$r(k)$	0.31	-0.11	-	-	0.23



Dynamiques des ETM entre les fractions  
filtrées et particulaires



**FIGURE C.1** – Évolution des teneurs normalisés en Al, Fe, Mn, Ni, Ba, Co et Nd au cours de la crue de juin 2015 à la rivière souterraine de Fontenotte et comparées aux mesures de débit et de turbidité.

## Notations du Chapitre VII

TABLE D.1 – Notations

Symbols	Units	Definitions
*	–	represents the convolution operator
$C_M$	$[m \cdot s^{-1}]$	parameter controlling the celerity of solute flux
$C_Q$	$[m \cdot s^{-1}]$	flood wave celerity
$D_M$	$[m^2 \cdot s^{-1}]$	parameter controlling the diffusivity of solute flux
$D_Q$	$[m^2 \cdot s^{-1}]$	flood wave diffusivity
$(K_Q, K_M)$	–	Hayami kernel function for water flow and solute transport modelling, respectively
$m$	$[kg \cdot s^{-1} \cdot m^{-1}]$	lateral solute flux per unit length
$M$	$[kg \cdot s^{-1}]$	solute flux
$(M_{I,base}, M_{I,flood}, M_{I,tot})$	$[kg \cdot s^{-1}]$	upstream base, flood and total solute flux, respectively
$(M_{O,base}, M_{O,flood}, M_{O,tot})$	$[kg \cdot s^{-1}]$	downstream base, flood and total solute flux, respectively
$(M_{A,base}, M_{A,flood}, M_{A,tot})$	$[kg \cdot s^{-1}]$	lateral base, flood and total solute flux exchanges, respectively
$q$	$[m^2 \cdot s^{-1}]$	lateral flow per unit length
$Q$	$[m^3 \cdot s^{-1}]$	discharge
$(Q_{I,base}, Q_{I,flood}, Q_{I,tot})$	$[m^3 \cdot s^{-1}]$	upstream base, flood and total flow, respectively
$(Q_{O,base}, Q_{O,flood}, Q_{O,tot})$	$[m^3 \cdot s^{-1}]$	downstream base, flood and total flow, respectively
$(Q_{A,base}, Q_{A,flood}, Q_{A,tot})$	$[m^3 \cdot s^{-1}]$	lateral base, flood and total flow exchanges, respectively
$(R1, R2)$	–	reach 1 (s1 to s2) and reach 2 (s2 to s3), respectively
$(s1, s2, s3)$	–	monitoring station 1, 2 and 3, respectively
$(S_{I,base}, S_{I,flood}, S_{I,tot})$	$[g \cdot l^{-1}]$	upstream solute base, flood and total concentrations, respectively
$(S_{O,base}, S_{O,flood}, S_{O,tot})$	$[g \cdot l^{-1}]$	downstream solute base, flood and total concentrations, respectively
$(S_{A,base}, S_{A,flood}, S_{A,tot})$	$[g \cdot l^{-1}]$	lateral solute base, flood and total concentrations, respectively
$t$	$[s]$	time
$U$	–	percentage of the unsaturated conduit length along R2
$x$	$[m]$	downstream distance