

**Modélisation stochastique du transfert des pesticides dans les sols et
les eaux souterraines. Application à la vulnérabilité des puits.**

Thèse de doctorat

Présentée à

L'Université du Québec

Institut National de la Recherche Scientifique

INRS-Eau

par

Lahcen Ait-Ssi

Mai 1993

RÉSUMÉ

La modélisation du transfert des contaminants de sources diffuses dans l'environnement peut généralement se faire à l'aide de deux types de modèles: soit les modèles déterministes dans lesquels la dispersion numérique est difficile à contrôler, soit les modèles stochastiques dans lesquels la dispersion hydrodynamique est le résultat des variations spatiales et/ou temporelles de certains paramètres hydrogéologiques clef tels que la conductivité hydraulique. Un modèle stochastique couplé de transfert de pesticides en zones non saturée et saturée, considérant un écoulement en régime permanent, constitue le produit de cette thèse. Dans ce modèle, le terme de dispersion est obtenu par la résolution de l'équation d'Ito Fokker Planck dans une grille de différences finies à l'aide de la marche au hasard des particules de référence. L'avantage de ce modèle est l'élimination de la dispersion numérique, ainsi que le gain en temps CPU et en espace mémoire sur ordinateur par suite de l'application du principe de convolution.

Il découle de cette étude que la méthode de marche au hasard qui, jusqu'à présent, était largement utilisée dans le transport des contaminants issus de sources ponctuelles, peut être adaptée favorablement aux transferts de sources de contamination diffuses. De même, cette étude montre que l'utilisation d'un modèle stochastique couplé en régime permanent permet de représenter adéquatement le cheminement et le comportement des pesticides depuis leur épandage en surface jusqu'à leur apparition dans un puits de pompage. L'application de ce modèle à un cas de contamination réelle des eaux souterraines de la région de Portneuf (Québec) a montré l'intérêt d'un tel outil pour l'évaluation de la vulnérabilité des eaux souterraines et des puits et surtout pour la détermination des périmètres de protection de ces derniers vis-à-vis d'utilisation d'un pesticide dans une zone agricole. Enfin, un autre avantage de ce type de modèle est d'être un outil de gestion dont on peut se servir dans les programmes de protection et de surveillance de la qualité des eaux souterraines menacées par des sources de contamination diffuses.

ABSTRACT

Modeling of the transport of non point source contaminants can be done by using two types of model: either deterministic models in which the numerical dispersion is difficult to control, or stochastic models in which the hydrodynamic dispersion is the result of spatial and/or temporal variations of a few key hydrogeological parameters such as hydraulic conductivity. The aim of this thesis is the development of a coupled stochastic transport model in unsaturated and saturated zones. In this model, the dispersion term is achieved by resolving the Ito Fokker Planck equation by finite differences using tracking particles and the random walk method. This method does not introduce numerical dispersion into the calculation and the use of convolution principle saves CPU time and space during the computer-based simulations.

One of this study's results is that the random walk method, which has been widely used in the modeling of transport of point source contamination, is also feasible when applied to the study of non point source contamination. Furthermore, this study shows that a coupled stochastic model provides a good representation of the fate and behavior of pesticides in unsaturated and saturated zones, from their application on the ground surface to their subsequent detection in wells. The application of this model to a real case of groundwater contamination near Quebec City illustrates the interest of this tool for evaluating the vulnerability of groundwaters and wells, and especially for delineating the wellhead protection area for a given pesticide in an agricultural zone. Finally, this model may be used as management tool in monitoring and protection programmes of groundwater quality menaced by non point source contaminations.

REMERCIEMENTS

Tout d'abord, je tiens à remercier l'Institut National de la Recherche Scientifique pour le financement qu'il m'a accordé. Mes remerciements vont aussi au corps professoral de l'INRS-Eau pour la formation multidisciplinaire que j'ai pu recevoir dans le domaine des sciences de l'eau. En particulier, je dois toute ma reconnaissance et ma gratitude à Monsieur Jean-Pierre Villeneuve qui a accepté de diriger cette thèse avec qui j'ai beaucoup appris; je lui dois pour cela un respect considérable. Mes salutations vont aussi à Monsieur Olivier Banton qui a co-dirigé et a suivi de très près mes travaux de recherche. Je lui suis très reconnaissant de ses amples et judicieux conseils. Sa lecture critique de ce manuscrit a contribué à lui donner sa forme actuelle. Les suggestions fructueuses de Monsieur Denis Isabel, Professeur à l'Université Laval, m'ont été très utiles. Je le remercie pour sa sympathie et sa contribution pour l'usage des logiciels et matériels informatiques.

J'exprime aussi mon respect au reste du personnel de l'INRS-Eau dont le personnel administratif, le service informatique, le service de documentation, les associés de recherche et les secrétaires. Je ne pourrai passer sans exprimer ma profonde gratitude à mes amis ainsi qu'à tous ceux qui m'ont aidé de près ou de loin. Leurs conseils, leurs soutiens et leurs encouragements, sont inestimables à mon sens pour toute la période de la mise en forme de cet ouvrage.

Les examinateurs trouveront ici tous mes remerciements pour le temps qu'ils consacreront à l'évaluation de cette thèse.

- v -

Enfin, à mes chers parents, frères et soeurs qui n'ont ménagé aucun effort pour me permettre de continuer les études et à qui je dédie le présent travail, je leur exprime toute ma reconnaissance et ma gratitude.

SOMMAIRE

	Page
Résumé	ii
Abstract	iii
Remerciements	iv
Sommaire	vi
Liste des figures	ix
Liste des tableaux	x
Liste des symboles	xi
CHAPITRE 1. INTRODUCTION	1
1.1 Problématique	1
1.2 État de la recherche	2
1.3 Objectifs	4
CHAPITRE 2. MODÉLISATION DU TRANSPORT DE PESTICIDES EN ZONE SATURÉE	7
2.1 Écoulement	7
2.2 Transport	9
2.3 Techniques de modélisation de l'écoulement et du transport	10
2.3.1 Méthode des différences finies	10
2.3.2 Méthode des éléments finis	11
2.3.3 Méthode des caractéristiques	12
2.3.4 Méthode de marche au hasard	12
2.3.5 Méthode des éléments frontières	14
2.4 Discussion	14
CHAPITRE 3. FORMALISME MATHÉMATIQUE DE LA MODÉLISATION PAR MARCHE AU HASARD	18
3.1 Concepts théoriques du transport par marche au hasard	18
3.2 Détermination des vitesses de déplacement des particules	23
3.3 Adsorption	25
3.4 Dégradation	26

CHAPITRE 4. MODELE COUPLÉ ET MÉTHODOLOGIE	28
4.1 Description du modèle STOPEST	28
4.1.1 Programme de l'écoulement	28
4.1.2 Programme du transport	30
4.2 Couplage des modèles VULPEST ET STOPEST	31
4.2.1 Le modèle VULPEST	31
4.2.2 Le couplage	31
4.3 Conditions aux limites et initiales	35
4.4 Démarche de simulation et calcul des concentrations	36
4.5 Validation du modèle	46
4.5.1 Cas d'une injection ponctuelle continue	46
4.5.2 Analyse des résultats	48
CHAPITRE 5. APPLICATION A UN CAS RÉEL	54
5.1 Description du site d'étude	54
5.2 Modélisation du transfert de l'aldicarbe dans les zones non saturée et saturée	57
5.2.1 Contexte de la simulation	57
5.2.2 Analyse des résultats	62
5.3 Calibration du modèle	66
5.3.1 Conductivité hydraulique	67
5.3.2 Dispersivité longitudinale	68
5.3.3 Dégradation	68
5.3.4 Calibration	69
5.3.5 Analyse et discussion des résultats	69
5.4 Délimitation du périmètre de protection d'un puits	74
CHAPITRE 6. CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS	80
BIBLIOGRAPHIE	84
ANNEXES	97
ANNEXE A: PROCESSUS NATURELS RÉGISSANT LE TRANSFERT DE PESTICIDES DANS LES EAUX SOUTERRAINES	A1
A.1 Processus physiques	A1
A.1.1 L'advection	A1
A.1.2 La dispersion	A2

A.2 Processus chimiques	A6
A.2.1 L'adsorption	A6
A.2.2 L'hydrolyse	A8
A.3 Processus biologiques	A9
A.4 Bibliographie	A11

ANNEXE B: FONCTIONS DES SOUS-PROGRAMMES DU MODELE STOPEST B1

B.1 Cas de l'écoulement	B1
B.2 Cas de transfert de masse	B9
B.3 Bibliographie	B15

ANNEXE C: LE MODELE VULPEST C1

LISTE DES FIGURES

Figure 1.	Organigramme du modèle d'écoulement (régime permanent)	29
Figure 2.	Organigramme du modèle de transfert de pesticides en zone saturée	32
Figure 3.	Schéma montrant le couplage des modèles de transport en zones non saturée et saturée	34
Figure 4.	Schéma du panache d'une source de pollution continue obtenu par superposition des masses d'une source ponctuelle	40
Figure 5.	Comparaison des résultats du modèle avec ou sans convolution . .	41
Figure 6.	Comparaison des courbes de fuite obtenues par marche au hasard (symboles) et solution analytique (courbes) dans le cas de l'advection-dispersion	49
Figure 7.	Comparaison des courbes de fuite obtenues par marche au hasard (symboles) et solution analytique (courbes) dans le cas de l'advection pure	50
Figure 8.	Panache résultant d'une source d'injection ponctuelle (comparaison du modèle avec une solution analytique en 2D)	51
Figure 9.	Effet de la dispersion pure sur la distribution des concentrations d'une source de contamination ponctuelle	52
Figure 10.	Schéma de localisation du site d'étude	55
Figure 11.	Délimitation du domaine des simulations	60
Figure 12.	Courbe de fuite stochastique de l'arrivée à la nappe du pesticide aldicarbe (obtenue par le modèle VULPEST)	61
Figure 13.	Distribution de la charge hydraulique dans le domaine	63
Figure 14.	Courbe de fuite stochastique des concentrations simulées parvenant au puits	65
Figure 15.	Courbe de fuite stochastique des concentrations au puits après calibration du modèle	71
Figure 16.	Sensibilité du modèle aux variations des paramètres de simulation	73
Figure 17.	Concentrations ($\mu\text{g/L}$) d'aldicarbe dans le domaine	75
Figure 18.	Illustration du périmètre de protection d'un captage d'eau	77
Figure 19.	Délimitation du périmètre de protection du puits	79
Figure B1.	Organigramme du modèle d'écoulement (régime permanent)	B2
Figure B2.	Organigramme du modèle de transfert de pesticides en zone saturée	B10

Figure B3. Organigramme d'une simulation du transfert de pesticides en régime d'écoulement permanent (méthode de déplacement aléatoire des particules) B13

Figure C1. Organigramme du modèle VULPEST C2

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1. Conditions aux limites envisagées 37

Tableau 2. Concentrations en résidus toxiques totaux de l'aldicarbe ($\mu\text{g/L}$) mesurées dans les eaux des puits (voir fig. 10). Analyses effectuées par: Rhone-Poulenc Agr., () Agriculture Canada, [] Environnement Québec. . 58

Tableau 3. Valeurs des paramètres obtenus par calibration comparées à celles provenant de la littérature. 70

LISTE DES SYMBOLES

- b : épaisseur saturée de l'aquifère (L);
- C : concentration du soluté (ML^{-3});
- C_0 : concentration initiale du soluté (ML^{-3});
- C_w : concentration du flux W (ML^{-3});
- C_{norm} : norme admissible de concentration du pesticide considéré au puits (ML^{-3});
- C_{max} : concentration maximale du pesticide arrivant à la nappe (ML^{-3});
- C_{r1} : concentration imposée sur une frontière (ML^{-3});
- D : coefficient de dispersion (L^2T^{-1});
- F_n : flux hydrique imposé sur une frontière par unité d'épaisseur d'aquifère (L^2T^{-1});
- f_{oc} : fraction de carbone organique du sol (MM^{-1});
- h : charge hydraulique (L);
- h_0 : charge hydraulique initiale (L);
- h_{r1} : charge hydraulique imposée sur une frontière (L);
- i_f : taux d'infiltration annuel (LT^{-1});
- K : conductivité hydraulique (LT^{-1});
- k_d : coefficient de partition du pesticide (L^3M^{-1});
- K_{oc} : coefficient de partition d'un contaminant (organique) entre l'eau et la phase solide (fraction organique) (L^3M^{-1});
- m : masse d'une particule au temps t (M);
- m_0 : masse initiale d'une particule (M);
- m_d : masse totale dégradée au temps t (M);
- m_s : masse adsorbée (M);
- n : porosité efficace de l'aquifère (%);
- n_i : vecteur unitaire perpendiculaire à une frontière et dirigé vers l'extérieur;
- q_i : vitesse moyenne de Darcy dans la direction i (LT^{-1});
- q_n : flux de masse imposé sur une frontière (MT^{-1});

- R : coefficient de retard;
- RN : générateur de nombres aléatoires compris entre 0 et 1;
- r_i : rayon d'influence du puits de pompage (L);
- t : temps (T);
- T : transmissivité de l'aquifère (L^2T^{-1});
- v : vitesse réelle des particules (LT^{-1});
- W : flux d'eau entrant (+) ou sortant (-) par unité de surface du milieu ($L^3T^{-1}L^{-2}$);
- x_i : système de coordonnées cartésiennes dans les directions X, Y et Z (L);
- ρ : densité du fluide (ML^{-3});
- ρ_b : densité volumique du sol (ML^{-3});
- λ : coefficient de dégradation (T^{-1});
- Γ_1 : frontière de Dirichlet;
- Γ_2 : frontière de Neumann.

CHAPITRE 1. INTRODUCTION

1.1 Problématique de la contamination par les pesticides

L'eau souterraine est d'une importance capitale dans la plupart des régions du monde. Toutefois, cette ressource qui était jadis de bonne qualité, se trouve actuellement menacée par diverses sources de contamination ponctuelles et diffuses. Les sources ponctuelles ont fait l'objet de nombreux travaux et recherches sur le terrain et en laboratoire. Par contre, les sources diffuses et particulièrement la contamination par les pesticides en zone agricole, n'ont attiré l'attention des chercheurs, scientifiques et gouvernements que depuis la fin des années 70.

Dans les pays agricoles de climat humide, la contamination des eaux souterraines par des contaminants organiques (ex. pesticide) ou inorganiques (ex. nitrate, chlorure) est très prononcée, particulièrement à cause des faibles profondeurs des nappes phréatiques, de l'humidité élevée du sol et des fortes applications de fertilisants et de pesticides. L'emploi de ces produits n'a pas toujours connu de gestion rationnelle de la part des utilisateurs qui en usaient à leur gré. Aux États Unis, 39 à 50 pesticides ont été détectés dans des puits de 24 états (Hallberg, 1989). L'aldicarbe, l'atrazine et le carbofurane sont des pesticides fréquemment détectés et observés dans les eaux souterraines (Harkin *et al.*, 1986; Wartenberg, 1988; Moye et Miles, 1988; Hallberg, 1989; Pionke et Glotfelty, 1989). En Europe, les pesticides triazines et leurs dérivés sont souvent rencontrés dans les eaux souterraines des aquifères superficiels (Leistra et Boesten, 1989). Au Canada, en 1985, plus de 500 ingrédients actifs de pesticides étaient enregistrés concernant 5000 produits de contrôles (Pierce et Wong, 1988). De nombreux puits ont été contaminés par les pesticides et leurs résidus, en particulier par l'atrazine et le 2,4-D, dans les régions agricoles du Sud de l'Ontario (Frank, 1986;

Frank et al., 1987a,b) et par l'atrazine, l'aldicarbe, le carbofurane et le piclorame au Québec (Beaudoin, 1982; Villeneuve et al., 1985).

Dans la plupart des cas, les contaminants provenant des pratiques agricoles sont présents dans les eaux souterraines en faibles concentrations et leur détection n'a été possible que grâce au développement de la chimie analytique durant ces dernières décennies. Ces produits peuvent migrer sur de grandes distances sans que leur toxicité soit diminuée par des processus d'atténuation. Quoique les composés organiques soient généralement moins solubles dans l'eau souterraine que les composés inorganiques, leurs concentrations dépassent souvent les normes de potabilité et les risques auxquels ils exposent la santé humaine sont non négligeables.

A la lumière des problèmes qui menacent la qualité de l'eau souterraine, et notamment l'alimentation en eau potable des puits en secteur agricole, le souci d'intervention et de prévention se fait de plus en plus sentir dans tous les pays et chez les responsables de l'environnement. La lutte contre cette contamination est devenue une préoccupation majeure. Les chercheurs et scientifiques s'intéressent à la caractérisation des phénomènes et processus qui régissent le comportement et la migration des pesticides dans les sols et les eaux souterraines ainsi qu'à leur modélisation mathématique et à la prédiction de l'évolution spatio-temporelle de cette contamination. La recherche vise aussi la restauration et la réhabilitation des sites malheureusement déjà contaminés.

1.2 État de la recherche

En général, la contamination des eaux souterraines par une source diffuse ne peut se produire sans que le contaminant ne traverse la zone non saturée, sauf dans un cas de nappe affleurente. La modélisation du transport des pesticides en zone saturée ne peut donc se réaliser sans procéder au préalable à celle en zone non saturée. Dans

cette dernière, les pesticides migrent essentiellement verticalement. Avant d'atteindre la nappe phréatique, plusieurs processus physiques, chimiques et biologiques complexes interviennent le long du parcours des pesticides. Ceux-ci affectent le devenir des pesticides et contrôlent leur persistance dans le milieu. Une synthèse de ces processus, réalisée à partir d'une revue de littérature, est donnée par Moye et Miles (1988) ainsi que par Yaron (1989). D'autres travaux sur le transport des solutés en zone non saturée ont donné lieu au développement de modèles informatiques tant analytiques (Rose et Passioura, 1971; Van Genuchten et Wierenga, 1976; Moreale et Van Bladel, 1982; Huyakorn et al., 1987) que numériques (Carsel et al. 1984; Lindstrom et Piver, 1985; Mulkey et al., 1986; Wagenet et Hutson, 1987; Leonard et al., 1987; Tim et Mostaghimi, 1989a et b, 1990). En se basant sur l'importance de la variabilité spatiale des paramètres et des propriétés du milieu souterrain (Bababola, 1978; Gelhar et al., 1979; Amoozegar-Fard et al., 1981; Dagan, 1982, 1983; El-Kadi, 1984; Hoeksema et Kitanidis, 1985), quelques modèles stochastiques de transport des pesticides en zone non saturée ont vu le jour (Villeneuve et al. 1990, 1987; Isabel, 1988). Dans ce même état d'esprit, Small et Mular (1987) ont utilisé un modèle stochastique pour modéliser le transport des nitrates en zone non saturée en tenant compte également de la variabilité temporelle de certains paramètres hydrologiques.

Une première étude de modélisation du transport des pesticides en zones saturée/non saturée a été faite par Atwood et Dean (1985) sur un site de culture de citronnier en Floride en utilisant les modèles PRZM (Pesticide Root Zone Model; Carsel et al., 1984) et CFEST (Combined Fluid-Energy-Solute Transport; Gupta, 1982). Une autre étude est décrite par Jones (1986) faisant intervenir le modèle PRZM et un modèle en éléments finis développé à l'Université du Wisconsin. D'autres chercheurs de cette université (Harkin et al., 1986) ont utilisé le modèle PRZM et le modèle de "marche au hasard" développé par Prickett et al. (1981). Cependant, le seul modèle actuel qui tienne vraiment compte du couplage du transport des pesticides en zones saturée et non saturée est le modèle RUSTIC développé par l'EPA (Dean et al., 1989a,b). Ce modèle se distingue aussi par sa capacité d'étudier l'influence de la variabilité spatiale

de certains paramètres sur le transport de pesticides en utilisant la méthode de Monte Carlo. Le modèle RUSTIC est constitué de trois modules: les modèles PRZM, VADOFT (**VADO**se Flow and Transport) et SAFTMOD (**SA**turated Flow and Transport **MO**del). Ces deux derniers modèles utilisent la méthode des éléments finis et sont couplés à l'équation de Richard pour résoudre l'équation différentielle de l'écoulement. Le modèle VADOFT simule le transport en zone non saturée et est unidimensionnel vertical tandis que le modèle SAFTMOD simule le transport bidimensionnel vertical ou horizontal en zone saturée. Le couplage de ces modèles se fait sur une base spatio-temporelle. L'utilisation de la méthode de Monte Carlo, dont le principe consiste à générer un grand nombre de réalisations aléatoires, rend l'usage d'un tel modèle couplé difficile, surtout lorsque les trois modules sont couplés. D'autre part, dans les simulations de transport horizontal, le modèle RUSTIC dilue la masse du pesticide arrivant à la nappe sur toute l'épaisseur de celle-ci. Dès le départ, le modèle RUSTIC crée donc une grande dilution dans le milieu en dispersant le pesticide sur toute la colonne de la zone saturée. Cette dispersion se répercute sur l'ensemble des simulations et compromet la qualité des résultats. D'après Jones (1986), des études expérimentales ont montré que, dépendamment de la configuration des points d'échantillonnage, la migration des résidus du pesticide aldicarbe est restreinte à une profondeur ne dépassant pas 3 à 6 m au-dessous de la surface libre à cause de la dégradation et de l'écoulement à prédominance horizontale. Cependant, cette profondeur peut être dépassée dans une nappe phréatique plus épaisse, là où des composantes verticales des vitesses sont développées, soit au voisinage immédiat des puits de pompage, soit à côté des barrières naturelles ou artificielles du milieu.

1.3 Objectifs

Le but principal de cette recherche consiste à développer un modèle stochastique couplé du transfert de pesticides en zones non saturée et saturée. Afin d'atteindre ce but, trois objectifs ont été fixés:

Objectif 1: Le transfert de pesticide dans les eaux souterraines peut se faire en modélisant séparément celui en zone non saturée et celui en zone saturée. Puisque nous avons eu recours à un modèle stochastique de transfert de pesticide en zone non saturée (le modèle VULPEST développé à l'INRS-Eau (Villeneuve *et al.*, 1987, 1990)), notre premier objectif s'étend au développement d'un modèle stochastique de transfert horizontal des pesticides (le modèle STOPEST) dans la zone saturée. Comme le phénomène stochastique pris en considération par VULPEST est régi par la méthode de Monte Carlo, nous avons tenu compte de ce phénomène, dans le modèle STOPEST, à l'aide de la méthode de marche au hasard par déplacement aléatoire des particules de référence. Notons que cette méthode a été largement utilisée avec beaucoup de succès dans la modélisation du transport des contaminants de sources ponctuelles (Kinzelbach et Ackerer, 1986; Kinzelbach, 1988; Uffink, 1983, 1988). Dans le cadre de cette étude, nous visons à démontrer la pertinence et l'utilité d'étendre cette méthode aux cas de contamination diffuse et plus particulièrement au transfert de pesticides dans les eaux souterraines.

Objectif 2: Puisque les deux modèles effectuant le transfert des pesticides en zones non saturée et saturée sont indépendants, notre deuxième objectif consiste à envisager un couplage qui permette la conservation du bilan de masse à la sortie et à l'entrée des deux modèles (élimination des pertes de masse) et à déterminer l'existence de conditions hydrodynamiques favorables dans lesquelles ce couplage peut s'opérer.

Objectif 3: L'évaluation de la vulnérabilité des eaux souterraines et des puits à la contamination par les pesticides et la détermination des périmètres de protection de ces puits peuvent être basées sur le modèle stochastique couplé. Rappelons que ce genre de modèle, permettant la détermination du périmètre de protection pour le cas de contamination par les pesticides, est quasi-absent de la littérature.

Ce modèle permettra d'une part, le suivi spatio-temporel de la contamination par le pesticide étudié, ce qui aidera l'utilisateur à dresser une cartographie de la

contamination et, d'autre part, la localisation des zones de captage d'eau de bonne qualité. Par ailleurs, ce modèle devra pouvoir être utilisé comme outil de gestion et de décision pour des programmes de suivi et de protection de la qualité des eaux souterraines. Enfin, nous pensons que l'application de ce modèle devra aider à l'élaboration de programmes d'intervention nécessaires pour restaurer et réhabiliter des sites contaminés ou pour éviter d'éventuelles contaminations de sources d'eau exploitables dans une région agricole donnée.

CHAPITRE 2. MODÉLISATION DU TRANSPORT DE PESTICIDES EN ZONE SATURÉE

L'eau est le principal agent moteur du transport des pesticides dans l'environnement. La plupart des composés ont des interactions dipôle-dipôle ou ion-dipôle avec les molécules d'eau et s'y trouvent sous forme complètement ou partiellement dissoute. Le sort de ces produits est donc déterminé par le mouvement de l'eau qui les transporte soit en surface vers les lacs ou rivières, soit à travers les couches de sol vers les nappes souterraines. La modélisation mathématique qui décrit ce phénomène est présentée à la section 2.1 pour l'écoulement de l'eau et à la section 2.2 pour les processus de transport des pesticides (une description plus détaillée se trouve à l'annexe A).

2.1. L'écoulement

L'écoulement de l'eau souterraine est régi, pour un milieu saturé, hétérogène et anisotrope, par la loi de Darcy qui stipule que le flux hydrique q est proportionnel au gradient de la charge hydraulique h selon un tenseur de proportionnalité $[K]$ appelé conductivité hydraulique.

$$q = -[K] \frac{\partial h}{\partial x_i} \quad (1)$$

où

x_i est le système de coordonnées cartésiennes dans les directions x , y et z (L);

t est le temps (T).

L'écoulement est également régi par la loi de la conservation de la masse (définie par

l'équation de continuité) qui, comme son nom l'indique, conserve la quantité de matière en mouvement dans un milieu. Pour un milieu de porosité n et un fluide de densité ρ , cette loi est définie par la relation suivante:

$$-\frac{\partial h}{\partial X_i} (\rho q) = \frac{\partial (\rho n)}{\partial t} \quad (2)$$

En intégrant dans la direction z de la base b de l'aquifère jusqu'au sommet de la zone saturée et en considérant un milieu poreux incompressible et un fluide incompressible, on obtient l'équation suivante pour un aquifère à surface libre:

$$-\frac{\partial}{\partial X_i} ((h-b) q) = n \frac{\partial h}{\partial t} \quad (3)$$

La combinaison de la loi de Darcy et de l'équation de continuité est connue sous le nom d'équation de diffusivité (de Marsilly, 1981, 1986; Freeze et Cherry, 1979), qui s'exprime en régime transitoire de la façon suivante:

$$\frac{\partial}{\partial X_i} ((h-b) [K] \frac{\partial h}{\partial X_j}) + W = n \frac{\partial h}{\partial t} \quad (4)$$

où W est le flux entrant (+) ou sortant (-) par unité de surface du milieu ($L^3 T^{-1} L^{-2}$).

L'équation [4] est une équation différentielle, quadratique (non linéaire de type parabolique) qui admet une solution continue dans l'espace et dans le temps.

2.2. Le transport

Les processus physiques, chimiques et biologiques constituent les principaux facteurs qui influencent le comportement et le cheminement des pesticides dans les zones non saturée et saturée. Ces processus peuvent se produire d'une façon indépendante ou simultanée, en fonction de la nature des pesticides, des propriétés du milieu et des conditions climatiques.

Une revue de littérature documentée de ces processus se trouve à l'annexe A. Il en découle que l'advection, la dispersion, l'adsorption et la dégradation constituent les processus déterminants qui influencent le devenir de la plupart des pesticides dans les eaux souterraines.

L'utilisation de la variation des flux engendrés par ces différents processus sur un volume élémentaire représentatif (VER) conduit au développement de l'équation classique du transport d'un soluté non conservatif dans un aquifère non confiné (Konikow et Grove, 1977):

$$nR \left(\frac{\partial C}{\partial t} + \lambda C \right) = - \frac{\partial}{\partial X_i} (q_i C - [D] \frac{\partial C}{\partial X_j}) + W(C - C_w) \quad (5)$$

où

C est la concentration du soluté (ML^{-3});

C_w est la concentration du flux W (ML^{-3});

[D] est le tenseur de dispersion (L^2T^{-1});

q_i est la vitesse moyenne de Darcy dans la direction i (LT^{-1});

R est le coefficient de retard;

λ est le coefficient de dégradation (T^{-1}).

Contrairement à l'équation d'écoulement, il s'agit ici d'une équation différentielle de type hyperbolique.

Ces deux équations forment la base du modèle de transport développé. L'équation de l'écoulement sert à déterminer le champ d'écoulement (vitesses) dans le milieu poreux et l'équation de transport permet de représenter la propagation du composé chimique dans ce milieu.

2.3 Techniques de modélisation de l'écoulement et du transport.

Les équations d'écoulement et de transport sont des équations différentielles de second ordre qui n'admettent généralement pas de solution analytique exacte (à cause de la non linéarité du système d'équations) et leur résolution n'est donc possible dans la plupart des cas que par des méthodes numériques. Les principales méthodes numériques utilisées pour résoudre ces équations sont celles utilisant les différences finies, les éléments finis, la méthode des caractéristiques, la marche au hasard et les éléments frontières. La description de chacune de ces méthodes, qui est présentée aux sections suivantes, constitue une synthèse d'éléments et remarques puisés dans Pinder et Bredehoeft (1968), Freeze (1971), Goblet (1981), Vigouroux (1981), Bouchard et Lencioni (1983), Huyakorn et Pinder (1983), Kinzelbach (1988), Pinder (1988) et Kinzelbach et Uffink (1989).

2.3.1 Méthode des différences finies.

Traditionnellement, c'est la méthode la plus utilisée. Elle consiste à discrétiser le domaine d'étude en blocs ou mailles (de forme carrée ou rectangulaire), identifiés par des points ou noeuds. Son principe est simple et consiste à remplacer l'équation différentielle en chaque noeud par une série d'équations algébriques de différences

finies issues du développement en séries de Taylor (généralement d'ordre 2). Cette méthode a l'avantage d'être de conception théorique facile à comprendre et les données d'entrée sont faciles à manipuler. Son inconvénient réside dans la difficulté à représenter des domaines de géométries irrégulières et complexes et dans la possibilité d'engendrer de la dispersion numérique. Bien que ce phénomène puisse être atténué par une discrétisation spatiale et temporelle plus fine, cette solution risque toutefois de s'avérer coûteuse en temps de calcul.

2.3.2 Méthode des éléments finis.

Le principe de cette méthode consiste à subdiviser la région d'étude en un ensemble de sous-domaines ou éléments délimités par des noeuds. Dépendamment de la dimension du problème et de ses caractéristiques physiques, plusieurs sortes d'éléments (linéaires, triangulaires, quadratiques ou cubiques) peuvent être envisagés (Zienkiewicz, 1977; Huyakorn et Pinder, 1983; Dhatt et Touzot, 1984). Contrairement à la méthode des différences finies, cette méthode utilise une approche intégrale (fonctions continues) pour résoudre les équations différentielles. L'approche variationnelle et l'approche des résidus pondérés (Galerkin ou collocation) peuvent être utilisées à cette fin. Les variables dépendantes sont ainsi approximées par des fonctions d'interpolation de base (linéaires, triangulaires, quadratiques ou cubiques) et l'expression intégrale doit être développée pour chaque élément en fonction de tous ses noeuds. Ce développement combiné à des conditions aux limites appropriées nous donne une série d'équations différentielles linéaires (ou équations algébriques) de premier ordre dépendant du temps. La résolution de ces équations se fait ensuite par différences finies en ce qui concerne la discrétisation temporelle. L'avantage de cette méthode consiste en sa robustesse (capacité de tenir compte des géométries irrégulières complexes) et en sa précision élevée. Son principal inconvénient réside dans le concept théorique de base qui n'est pas à première vue intuitif. Cette méthode présente aussi une certaine difficulté dans la programmation et dans la modification des données d'entrée. La dispersion numérique reste toujours un problème inévitable qui limite l'utilisation de la méthode sous certaines conditions.

2.3.3 Méthode des caractéristiques (MOC: Method of Characteristic; anciennement appelée PIC: particle-in-cell).

Cette méthode est de formulation intuitive pour le transport fortement advectif et traite séparément la dispersion dans le cas de l'équation de transport par advection-dispersion.

Dans cette méthode, l'obtention du terme advectif consiste à: 1) déterminer tout d'abord le champ des vitesses aux noeuds de la grille considérée, 2) introduire dans chaque maille un nombre de particules de référence (4 à 9 particules par maille selon Konikow et Bredehoeft (1978)), et 3) déplacer chaque particule le long des lignes de courant (ou caractéristiques).

Le terme dispersif est obtenu en affectant une concentration à chaque particule. L'équation de transport est résolue par la méthode de différences finies pour introduire le phénomène de dispersion (mélange). Ensuite, à chaque pas de temps, la concentration moyenne est calculée par comptage des particules qui se trouvent dans chaque maille. Cette méthode pose également certains problèmes de dispersion numérique, de conservation de la matière et de convergence.

2.3.4 Méthode de marche au hasard (Random Walk Method).

Connue également sous le nom de méthode de déplacement aléatoire des particules de référence, cette méthode a été introduite dans les calculs numériques à la fin des années 70 (Ahlstrom et al. 1977; Smith et Schwartz, 1980; Prickett et al. 1981). C'est une méthode lagrangienne (Mouchel et al., 1990) de conception simple, essentiellement basée sur l'analogie entre les processus stochastiques et la théorie de la diffusion. Elle considère la dispersion dans un milieu poreux comme un phénomène markovien (Uffink, 1988). Ce phénomène peut être décrit en déplaçant un ensemble de particules de référence représentant la masse d'un polluant à l'aide de deux mouvements. Le premier mouvement (déterministe) est conditionné par la vitesse moyenne de l'écoulement et le second (stochastique) par une dispersion

aléatoire autour de la direction moyenne de l'écoulement. Ce mouvement peut être représenté par une distribution statistique donnée en fonction des vitesses d'écoulement et des coefficients de dispersivité longitudinale et transversale.

Cette technique présente plusieurs avantages par rapport à la méthode des caractéristiques ou à la plupart des autres méthodes numériques, les principaux étant les suivants (Prickett et al., 1981; Kinzelbach, 1988): 1) absence de dispersion numérique dans la résolution de l'équation du transport spécialement dans des cas présentant des valeurs élevées du nombre de Peclet et une forte anisotropie, 2) contrairement aux méthodes eulériennes qui fournissent une solution directe des concentrations, cette méthode déplace un ensemble de particules de référence dans le milieu à partir duquel la concentration est calculée, 3) le mouvement des particules est continu dans l'espace et peut être représenté facilement sur une interface graphique, 4) contrairement à la méthode des caractéristiques, la connaissance de l'emplacement des particules n'est nécessaire qu'aux endroits où il y a présence de contaminants et la concentration n'est calculée qu'au moment et à l'endroit désiré, ce qui permet de réduire la propagation des erreurs au cours du calcul des concentrations en fonction du temps, 5) les solutions sont additives, 6) le temps CPU sur ordinateur est nettement réduit par rapport à la méthode des caractéristiques.

Les inconvénients de cette technique sont: 1) le développement de fluctuations (oscillations) aléatoires des concentrations calculées parfois grossières, 2) comme pour la méthode des caractéristiques, des concentrations plus grandes que les concentrations à la source peuvent être observées surtout quand une discrétisation large est utilisée aux limites où les conditions sont imposées (tels que les puits d'injection), 3) dans certains cas, la méthode nécessite un nombre élevé de particules pour arriver à une solution acceptable (lissage des fluctuations des concentrations).

Enfin, contrairement aux approches stochastiques de modélisation qui déterminent la dispersion à partir de la variation spatiale de certains paramètres (ex. conductivités

hydrauliques ou vitesses), cette méthode aussi bien que les précédentes, a besoin des valeurs appropriées de dispersivités longitudinale et transversale mesurées sur le terrain. Ceci constitue donc une difficulté pour la plupart des travaux de modélisation du transport de soluté en zones saturée ou non saturée.

2.3.5 Méthode des éléments frontières. Cette méthode a connu récemment un grand essor en hydrogéologie. Elle est de même conception que la méthode intégrale des résidus pondérés (éléments finis). L'avantage de cette méthode réside dans sa capacité de réduire la dimensionnalité d'un problème. Le nombre d'équations à résoudre se trouve donc restreint et seuls les noeuds de base situés sur le périmètre du domaine (frontière) sont considérés. La solution de l'équation différentielle à l'intérieur du domaine est obtenue par simple intégration linéaire sur tous les noeuds de singularité situés sur la frontière (Brebbia, 1978; Liu et Liggett, 1978; Liggett et Liu, 1983). Son inconvénient est qu'elle est limitée aux problèmes simples généralement représentés par l'équation de Laplace. Cette méthode donne une grande précision de la solution aux noeuds de la frontière ou assez loin de celle-ci. Quant aux noeuds proches de la frontière où la pondération est moins bonne il suffit d'augmenter le nombre de noeuds sur la frontière en face de ceux-ci pour augmenter la précision. Cette solution risque parfois de devenir coûteuse en temps CPU.

2.4 Discussion

Chacune de ces méthodes présente des avantages et des inconvénients et, d'après une étude de comparaison faite par Kinzelbach (1988), le choix de l'une d'entre elles dépend tout simplement du problème à traiter. En adoptant le principe selon lequel la dispersion est provoquée par la variation spatiale de certains paramètres physiques du milieu tels que la conductivité hydraulique, certains auteurs (Villeneuve et al., 1990, 1987; Isabel, 1988) ont développé des modèles stochastiques pour étudier ce phénomène en s'affranchissant du coefficient de dispersion dans l'équation du transport en zone non saturée. D'autre part, Geng (1988) a également négligé ce

phénomène dans le cas du transport des nitrates dans un bassin hydrologique, en supposant toutefois que l'étalement de la concentration d'une contamination diffuse dans l'espace est essentiellement dû à la distribution spatiale des apports. Geng (1988) suppose que la dispersion est un phénomène qui influence surtout la propagation des polluants d'origine ponctuelle se caractérisant par un fort gradient de concentration au voisinage du front. Il a donc modélisé le transport d'une contamination diffuse par un modèle purement advectif en utilisant les différences finies.

La dispersion hydrodynamique est une propriété propre du milieu (voir A.1.2 en annexe A) et son effet est indépendant du type de polluant. L'influence de la dispersion est nettement visible dans le cas d'une contamination ponctuelle. Son omission dans le calcul du transport des contaminants de sources diffuses, sous prétexte que cet effet est masqué ou atténué par la distribution spatiale du phénomène, ne reflète pas objectivement la réalité. Même si la contamination par les pesticides est une contamination diffuse, la dispersion ne peut être négligée, mais elle peut être considérée comme faible. Ceci est d'autant plus valable si le transport du contaminant doit être simulé par des modèles déterministes incapables de générer ce phénomène sur une base stochastique. Cette hypothèse fera l'objet d'une vérification dans cette étude.

L'équation différentielle de l'écoulement est de type parabolique et peut être facilement résolue par l'une des méthodes standard de différences finies ou d'éléments finis. C'est la méthode des différences finies qui a été choisie dans cette étude. Sous des conditions d'advection dominante (nombre de Peclet assez grand), l'équation différentielle du transport devient hyperbolique et sa résolution par les méthodes des différences finies ou des éléments finis peut entraîner le développement de concentrations négatives, ce qui n'a pas de sens physique. D'après Yeh et Gwo (1990) ce problème peut être évité par l'utilisation des schémas implicites qui sont inconditionnellement stables, mais introduisent malheureusement une grande dispersion numérique parfois difficilement contrôlable. Le fait de négliger la

dispersion dans les simulations du transport ou de la considérer comme faible limite l'utilisation de ces méthodes. Par contre, dans ces conditions, la méthode de marche au hasard des particules est considérée stable et exempte de dispersion numérique, et peut être adoptée afin de résoudre l'équation du transport (Ahlstrom et Foote, 1976; Kinzelbach, 1988; Tompson et Dougherty, 1988; Tompson et Gelhar, 1990). Cette méthode était surtout utilisée dans des problèmes de transport originant de sources de contamination ponctuelle mais n'a pas été rigoureusement appliquée aux cas de contamination diffuse à cause, sans doute, du temps CPU et de l'espace mémoire élevés sur ordinateur que nécessite le déplacement d'un grand nombre de particules dans le domaine simulé.

Nous tentons de montrer dans ce travail l'intérêt d'étendre cette méthode au transport des sources de contamination diffuse dans la zone saturée d'un aquifère poreux et plus particulièrement le cas des pesticides. Nous nous sommes basés pour réaliser cette tâche sur les trois objectifs suivants:

- 1- le développement du modèle sur un système informatique lourd "VAX/VMS 780" mais transportable à des système plus petits;
- 2- l'utilisation d'un algorithme de déplacement rapide des particules, et
- 3- l'exploitation du principe de convolution dans les calculs.

On doit rappeler qu'un essai de ce genre a déjà été fait à l'Université du Wisconsin par Harkin et al. (1985) en utilisant le modèle de Pricket et al. (1981). Cependant, en plus des trois objectifs que nous avons mentionnés plus haut, notre travail se distingue par le point majeur suivant:

Le modèle de marche au hasard de Pricket et al. (1981), tel que mentionné par Walton (1989), est très contesté actuellement à cause de la méthode de régénération des particules. En effet, les coordonnées des particules ne sont pas conservées entre deux déplacements consécutifs, i.e. plutôt ne sont pas transférées d'une simulation au pas

de temps suivant. De ce fait, cette méthode entraîne une mauvaise précision des déplacements des particules dans certaines conditions, principalement dans le cas d'un milieu hétérogène, et génère une importante dispersion numérique.

Ce sont donc ces raisons qui nous ont poussées à opter pour la méthode de marche au hasard et à l'appliquer au transfert des pesticides dans la zone saturée.

CHAPITRE 3. FORMALISME MATHÉMATIQUE DE LA MODÉLISATION PAR MARCHE AU HASARD

La méthode de marche au hasard est largement utilisée dans les modèles mathématiques rencontrés dans la littérature, surtout en hydrogéologie des contaminants (Konikow et Bredehoeft, 1978; Schwartz et Crowe, 1980; Prickett *et al.*, 1981; Kinzelbach, 1986; Bear et Verruijt, 1987 et Walton, 1989). Notons en outre que cette méthode se distingue par sa versatilité. En effet, en plus des avantages mentionnés plus haut, certains auteurs (Ackerer, 1988; Rouleau, 1988; Ackerer *et al.*, 1990) l'ont adapté à plusieurs types de problèmes de transfert de contaminants en 2 et 3 dimensions dans des milieux stratifiés ou fissurés. Cette méthode se distingue aussi par le fait que chaque particule est une entité ou un modèle en soi pouvant être contrôlé individuellement. Chaque particule de référence est déplacée et est identifiée au cours du temps par sa position et sa masse, et que les concentrations en tout point du domaine ne sont évaluées qu'au temps désiré. Le modèle appliqué aux particules peut être modifié de manière à prendre en compte certains processus bio-physico-chimiques. Certains auteurs (Andricevic et Fouloula-Georgiou, 1990, Tompson et Dougherty, 1990) l'ont ainsi adopté pour étudier le transport de solutés réactifs (adsorption) et non conservatifs (dégradation).

3.1 Concepts théoriques du transport par marche au hasard

Le déplacement des particules est continu dans l'espace. Uffink (1983) a montré que la distribution des particules est gaussienne dans l'espace après un certain déplacement dans un champ d'écoulement permanent et uniforme. L'importance de la moyenne et de la variance de ces déplacements des particules représente respectivement celle de l'advection et de la dispersion (Uffink, 1988). Comme la

dispersion engendrée par la marche au hasard est un processus markovien, les déplacements des particules par dispersion sont statistiquement indépendants. Ainsi, en négligeant les interactions entre les particules, chaque particule devient une entité subissant deux mouvements indépendants: un mouvement advectif (déterministe) décrit par le terme $V dT$, et un mouvement dispersif (stochastique) représenté par une distribution normale autour de la position moyenne résultant de l'écoulement. Ce phénomène aléatoire est représenté suivant l'axe OX par le terme $(2 D_L dT)^{1/2} Z$, où Z est une variable aléatoire de distribution normale centrée et réduite. La formule adoptée par Kinzelbach (1986) pour évaluer ce terme est:

$$Z = -6 + \sum_{i=0}^{12} RN \quad (6)$$

où

RN est un nombre aléatoire entre 0 et 1.

L'équation générale du transport représentant la trajectoire d'une particule devient, compte tenu de la dispersion longitudinale et transversale (Prickett et al., 1981; Kinzelbach et Ackerer, 1986):

$$X(t+dT) = X(t) + V_x dT + (G_1 Z_1 - G_2 Z_2) \sqrt{dT} \quad (7)$$

$$Y(t+dT) = Y(t) + V_y dT + (G_3 Z_1 + G_4 Z_2) \sqrt{dT}$$

où

$$G_1 = \sqrt{\frac{2\alpha_L}{V}} V_x \quad (8)$$

$$G_2 = \sqrt{\frac{2\alpha_T}{V}} V_y$$

$$G_3 = \sqrt{\frac{2\alpha_L}{V}} V_y$$

$$G_4 = \sqrt{\frac{2\alpha_T}{V}} V_x$$

$$V = \sqrt{v_x^2 + v_y^2} \quad (9)$$

α_L et α_T forment respectivement les dispersivités longitudinale et transversale (L).

Kinzelbach et Ackerer (1986), Kinzelbach (1986) et Uffink (1988) ont montré que la densité de probabilité (f) d'un ensemble de particules déplacées d'une façon aléatoire dans le temps et dans l'espace est équivalente à l'équation de Fokker-Planck qui s'exprime, dans le cas unidimensionnel, par:

$$\frac{\partial f}{\partial t} = \frac{\partial^2}{\partial X^2} (D_L f) - \frac{\partial (vf)}{\partial X} \quad (10)$$

qui peut s'écrire en développant le premier terme de droite:

$$\frac{\partial f}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial X} (D_L \frac{\partial f}{\partial X} + f \frac{\partial D_L}{\partial X}) - \frac{\partial (vf)}{\partial X} \quad (11)$$

ou encore

$$\frac{\partial f}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial X} (D_L \frac{\partial f}{\partial X}) + \frac{\partial}{\partial X} (f \frac{\partial D_L}{\partial X}) - \frac{\partial (vf)}{\partial X} \quad (12)$$

pour donner finalement la forme suivante:

$$\frac{\partial f}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial X} (D_L \frac{\partial f}{\partial X}) - \frac{\partial}{\partial X} ((v - \frac{\partial D_L}{\partial X}) f) \quad (13)$$

Par ailleurs, cette équation n'est équivalente à l'équation usuelle d'advection-dispersion que si le coefficient de dispersion (D_L) est constant dans l'espace. Dans la réalité, comme la dispersion est un phénomène aléatoire variable, cette équation ne peut représenter adéquatement le transport advectif-dispersif à moins qu'une correction ne soit apportée au terme de vitesse. La vitesse corrigée devient (en deux dimensions):

$$V_x^* = V_x + \frac{\partial D_{xx}}{\partial X} + \frac{\partial D_{xy}}{\partial Y} \quad (14)$$

$$V_y^* = V_y + \frac{\partial D_{yx}}{\partial X} + \frac{\partial D_{yy}}{\partial Y}$$

avec

$$D_{xx} = \alpha_L \frac{V_x^2}{V} + \alpha_T \frac{V_y^2}{V} + d_0 \quad (15)$$

$$D_{yy} = \alpha_T \frac{V_x^2}{V} + \alpha_L \frac{V_y^2}{V} + d_0$$

$$D_{xy} = D_{yx} = (\alpha_L - \alpha_T) \frac{V_x V_y}{V}$$

où d_0 est le coefficient de diffusion ($L^2 T^{-1}$).

Cette correction augmente le temps de calcul du terme advectif et requiert une grande précision de la solution puisque ce terme contient des dérivées partielles. Le développement des dérivées de dispersion (équation [15]) aboutit aux expressions suivantes:

$$\frac{\partial D_{xx}}{\partial X} = \left(\frac{2\alpha_L}{V} - \frac{D_{xx}}{V^2} \right) V_x \frac{\partial V_x}{\partial X} \quad (16)$$

$$\frac{\partial D_{yy}}{\partial Y} = \left(\frac{2\alpha_L}{V} - \frac{D_{yy}}{V^2} \right) V_y \frac{\partial V_y}{\partial Y}$$

$$\frac{\partial D_{yx}}{\partial X} = (\alpha_L - \alpha_T) \frac{V_y^3}{V^3} \frac{\partial V_x}{\partial X}$$

$$\frac{\partial D_{xy}}{\partial Y} = (\alpha_L - \alpha_T) \frac{V_x^3}{V^3} \frac{\partial V_y}{\partial Y}$$

Kinzelbach et Ackerer (1986) et Uffink (1988) ont démontré que cette correction supplémentaire permet, d'un point de vue physique, la conservation du flux de particules due à la dispersion entre deux points de l'espace où les vitesses d'écoulement sont différentes. Ainsi, il sert à éviter l'accumulation des particules dans des zones de stagnation (faible dispersion ou diffusion pure) se produisant à côté d'obstacles (frontières, culs de sacs, aval des puits de pompage, etc.). L'équation finale englobant cette correction est:

$$X(t+dT) = X(t) + V_x^* dT + (G_1 Z_1 - G_2 Z_2) \sqrt{dT} \quad (17)$$

$$Y(t+dT) = Y(t) + V_y^* dT + (G_3 Z_1 + G_4 Z_2) \sqrt{dT}$$

3.2 Détermination des vitesses de déplacement des particules

Les vitesses sont calculées par le modèle d'écoulement à partir des distributions des charges et des conductivités hydrauliques aux noeuds situés au centre des mailles (application de la loi de Darcy). La porosité et la conductivité hydraulique sont

considérées constantes dans chaque maille et peuvent varier d'une maille à une autre. Le déplacement des particules se fait par le mouvement de l'eau souterraine, c'est-à-dire par la vitesse d'écoulement. Si les vitesses nodales ne sont pas constantes, la vitesse de chaque particule doit être déterminée en tout point à l'intérieur des cellules du maillage.

La précision des résultats obtenus par la méthode de marche au hasard dépend largement de celle du champ de vitesses de déplacement des particules. Puisque le mouvement des particules est continu dans l'espace, celui-ci requiert une méthode performante de calcul des vitesses dans l'espace avec un schéma adéquat d'interpolation utilisant les valeurs discrètes des vitesses nodales, fournies par le modèle d'écoulement. L'interpolation linéaire (Reddell et Sunada, 1970, cité par Goode, 1990; Pollock, 1988) et l'interpolation bilinéaire (Konikow et Bredehoeft, 1978; Schwartz et Crowe, 1980; Prickett et al., 1981; Goode, 1990) sont largement utilisées dans les modèles lagrangiens. La méthode la plus simple consiste à affecter une vitesse constante à toute la maille. L'inconvénient de cette méthode est le saut des particules qui se produit au passage des limites présentant de fortes hétérogénéités (ex. entre deux mailles voisines de perméabilités très différentes). D'après Goode (1990), le choix d'un schéma d'interpolation adéquat dépend de la conceptualisation des hétérogénéités et des contrastes de transmissivités d'un aquifère. En principe, le meilleur schéma d'interpolation des vitesses est celui qui conserve le déplacement par advection des particules le long des lignes de courant. L'utilisation d'une discrétisation spatiale et temporelle fine aide à respecter ce phénomène. Malheureusement, le déplacement d'un nombre élevé de particules dans ces conditions est limité du point de vue du temps de calcul et de l'espace mémoire sur ordinateur.

En différences finies, l'interpolation linéaire s'adapte bien avec les schémas centrés d'écoulement. Elle donne des vitesses en X indépendantes de la position en Y et vice-versa. Par contre, cette interpolation produit des discontinuités de vitesses, qui

peuvent être atténuées par l'interpolation bilinéaire (Goode, 1990). D'après cet auteur, l'interpolation linéaire entraîne, dans un aquifère homogène, des discontinuités et parfois des erreurs sur les vitesses, tandis que l'interpolation bilinéaire fournit des vitesses continues et réelles. D'autre part, pour des aquifères légèrement hétérogènes dans lesquels la transmissivité varie peu, l'application de l'interpolation bilinéaire semble plus performante que celle de l'interpolation linéaire.

Comme les gradients de vitesse sont très faibles dans les eaux souterraines (contrairement à l'écoulement de surface), les schémas d'interpolation simples sont représentatifs à condition d'utiliser des pas de temps et d'espace convenables. Dans ce cas, l'utilisation du schéma explicite qui donne plus de poids à la vitesse de départ des particules peut être valable. Les autres schémas (Runge-Kutta, semi-implicite, etc.) nécessitent des temps de calcul supérieurs, pour une précision équivalente à celle obtenue dans le cas des eaux souterraines, avec le simple schéma explicite.

3.3 Adsorption.

Lorsque les conditions d'adsorption (présence de matières organiques, température et pH favorables) sont rencontrées (voir A.2.1 annexe A), ce processus retarde la propagation des pesticides dans les eaux souterraines. Ainsi, la vitesse réelle du transport v devient plus faible que celle des eaux souterraines, soit:

$$v = \frac{q}{nR} \quad (18)$$

où R est le coefficient de retard.

La masse de pesticide adsorbée sur la matrice solide du milieu poreux peut être

évaluée (Kinzelbach et Uffink, 1989) par:

$$m_s = m(R-1) \quad (19)$$

où

m est la masse d'une particule au temps t (M);

m_s est la masse adsorbée (M).

3.4 Dégradation.

En présence des seuls phénomènes d'advection et de dispersion (absence de dégradation), la masse de chaque particule demeure constante au cours de son déplacement dans le milieu souterrain. Par contre, dans le cas des produits non conservatifs subissant des réactions de dégradation chimique (hydrolyse) ou biologique (biodégradation), la masse des particules diminue graduellement au cours du temps. Deux approches ont été utilisées dans la littérature pour tenir compte de ce phénomène: soit en détruisant les particules par une probabilité constante (Kinzelbach et Uffink, 1989), soit en diminuant leur masse graduellement au cours du temps à l'aide d'une loi d'ordre 1 (Ahlstrom et Foote, 1976; Schwartz et Crowe, 1980). La masse non dégradée au temps t est régie par une relation exponentielle de la forme:

$$m = m_0 e^{-\lambda t} \quad (20)$$

où m_0 est la masse initiale d'une particule (M).

La masse totale dégradée m_d au temps t étant:

$$m_d = m_0 (1 - e^{-\lambda t}) \quad (21)$$

CHAPITRE 4. MODELE COUPLÉ ET MÉTHODOLOGIE

4.1 Description du modèle STOPEST.

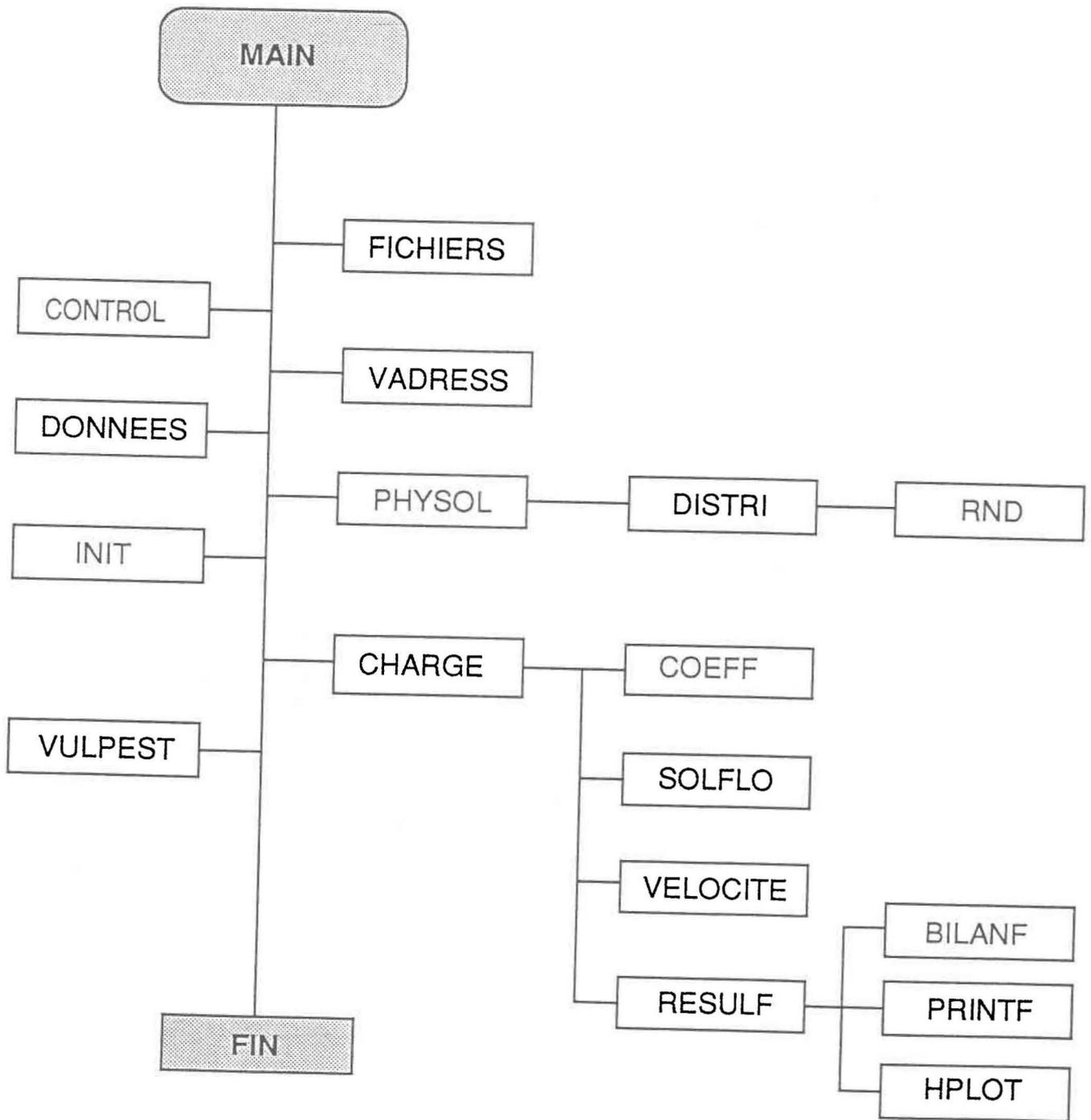
Le modèle STOPEST (modèle Stochastique de Transfert hOrizontal des PESTicides) développé dans cette étude est constitué d'un module qui calcule le champ d'écoulement et d'un autre qui calcule le transfert de masse dans un milieu poreux. C'est un modèle bidimensionnel horizontal. Il calcule le transport des pesticides en zone saturée et utilise une méthode stochastique (marche au hasard) pour tenir compte du phénomène aléatoire de dispersion.

4.1.1 Programme de l'écoulement.

Le programme d'écoulement est écrit en FORTRAN 77 sur un ordinateur VAX/VMS 780 et utilise une technique itérative SIP (Strongly Implicit Procedure) empruntée à Stone (1968) et Weinstein et al. (1969) pour la résolution du système d'équations algébriques en différences finies. Une description sommaire de cet algorithme est présentée à l'annexe B1. Il est prouvé que cette technique SIP est d'une performance supérieure, du point de vue temps de calcul et vitesse de convergence, à la plupart des autres techniques itératives (relaxation, surrelaxation successive et direction alternative implicite). Elle est largement utilisée en programmation (Trescott 1975, Trescott et al., 1976, Trescott et Larson, 1977, MacDonald et Harbaugh, 1984, Azevedo et al. 1988).

Le modèle d'écoulement bidimensionnel horizontal utilise une discrétisation spatiale variable et s'opère en régime d'écoulement permanent. Plusieurs sous-programmes composant le corps de ce modèle sont indiqués dans l'organigramme de la figure 1. Une description sommaire des fonctions de chacun de ces sous-programmes se trouve

Figure 1. Organigramme du modèle d'écoulement (régime permanent)



à l'annexe B1. Ce programme permet de calculer la distribution des charges hydrauliques dans le domaine étudié et par conséquent le champ de vitesses responsable du transport des pesticides dans le milieu poreux. Différentes conditions aux limites peuvent être envisagées et une géométrie plus ou moins régulière des frontières du domaine peut être prise en compte. De même, différentes distributions statistiques des paramètres d'entrée peuvent être considérées (porosité, densité apparente, conductivité hydraulique, etc.). Enfin, ce modèle tient compte également des sources de pompage et d'injection, et calcule le bilan hydrique après chaque simulation.

4.1.2 Programme de transport.

Le programme de transport est également écrit en FORTRAN 77 et est couplé au programme d'écoulement. Il utilise le champ de vitesses calculé par ce dernier et résout l'équation du transport de soluté en utilisant la méthode de déplacement aléatoire des particules. Ce programme est du même concept que celui utilisé dans les modèles de Prickett et al. (1981) et de Walton (1989). Toutefois, plusieurs améliorations y ont été apportées:

- 1- l'interpolation des vitesses (Konikow et Bredehoeft, 1978; Goode, 1990; et Schafer-Perini et Wilson, 1991) pour tenir compte du mouvement continu des particules dans l'espace;
- 2- l'introduction des termes additionnels de Fokker-Planck pour éliminer l'accumulation des particules dans les zones de stagnation d'eau et au voisinage des frontières imperméables (Uffink, 1988; Kinzelbach et Uffink, 1989);
- 3- l'utilisation du produit de convolution (Kinzelbach et Uffink, 1989) pour diminuer le temps CPU sur ordinateur et rendre la méthode de déplacement des particules applicable au transport des pesticides dans les eaux souterraines;
- 4- la détermination des périmètres de protection des puits pour déterminer la vulnérabilité des puits à une telle contamination.

Plusieurs sous-programmes ont été développés à cette fin et constituent la charpente du modèle de transport selon la disposition indiquée par l'organigramme de la figure 2. Les fonctions de chacun de ces sous-programmes sont détaillées dans l'annexe B2.

4.2 Couplage des modèles VULPEST ET STOPEST

4.2.1 Le modèle VULPEST.

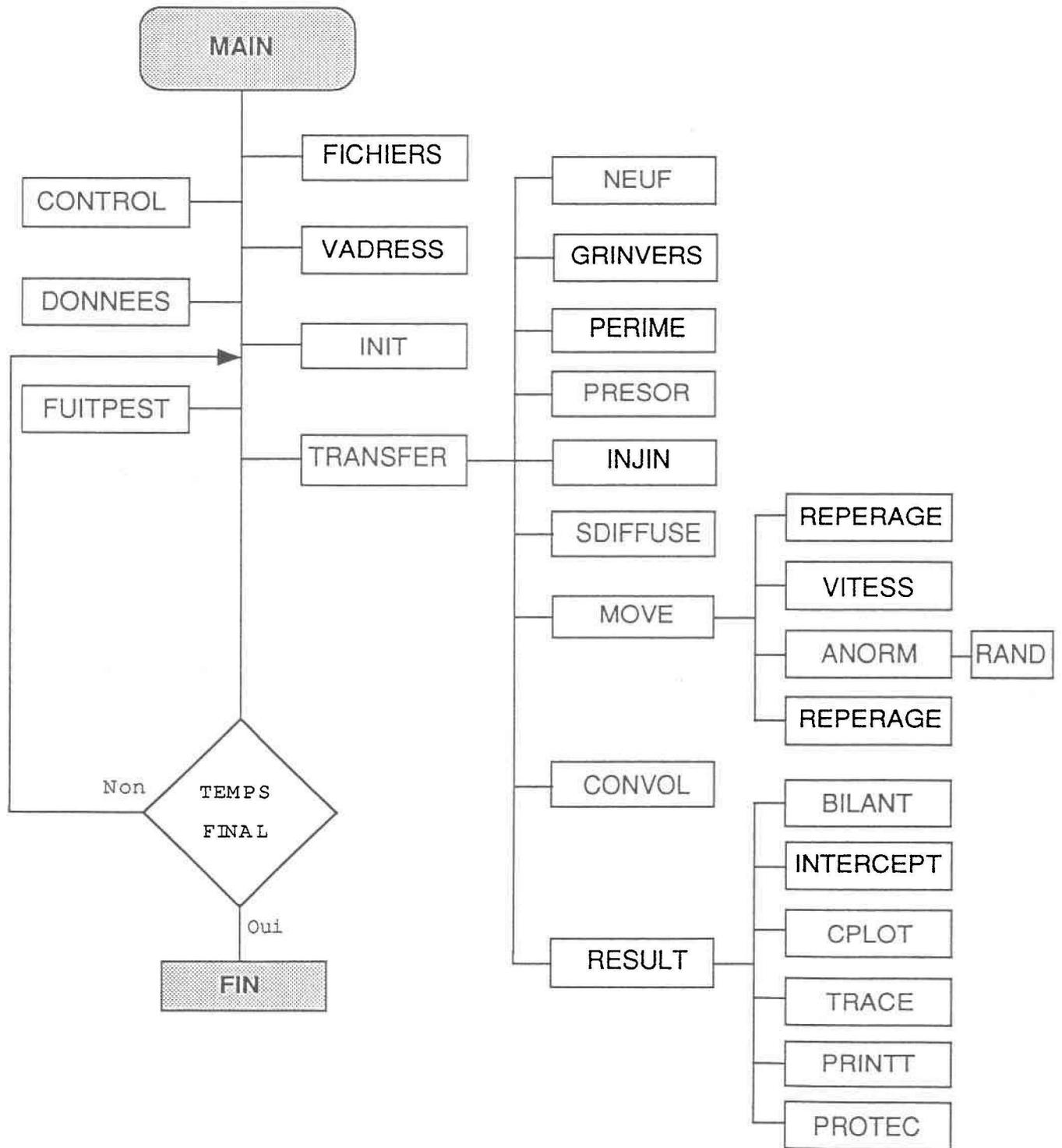
Le modèle VULPEST est un modèle stochastique simulant le transfert des pesticides en zone non saturée (Villeneuve et al., 1987, 1990). Il prend en compte la variabilité spatiale des différents paramètres physiques du sol (conductivité hydraulique, porosité, profondeur de la nappe, etc.) en utilisant la méthode de Monte Carlo. Cette méthode permet de générer un grand nombre de réalisations du transfert du pesticide en utilisant des valeurs de paramètres choisies aléatoirement par le modèle sur les distributions statistiques des paramètres déclarées par l'utilisateur (voir annexe C).

Pour son fonctionnement, VULPEST a besoin de données sur les caractéristiques du sol, du pesticide, du climat et du type de culture. Les résultats du modèle sont les concentrations maximales, les concentrations moyennes annuelles, les quantités totales de pesticides arrivant à la nappe et la courbe de fuite stochastique des concentrations. Les concentrations formant la courbe de fuite stochastique et les quantités d'eau infiltrées constituent les données d'entrée, fournies par VULPEST, pour le modèle STOPEST en zone saturée. Le pas de temps utilisé dans les simulations de VULPEST doit être déterminé par le programme d'écoulement du modèle STOPEST.

4.2.2 Le couplage.

Théoriquement, on peut distinguer quatre scénarios possibles de régime d'alimentation de la nappe par des pesticides: un écoulement permanent ou transitoire du flux d'eau alimentant la nappe et un régime permanent ou transitoire d'arrivée à la nappe des concentrations de pesticides.

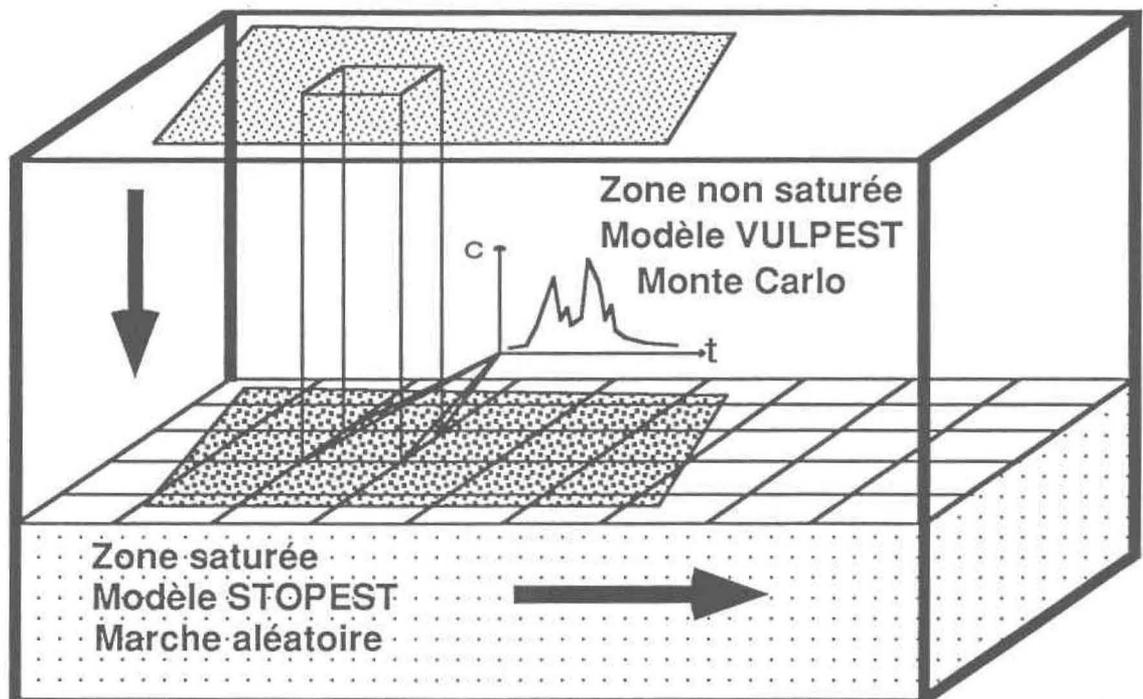
Figure 2. Organigramme du modèle de transfert de pesticides en zone saturée



Dans la réalité, un régime permanent d'alimentation de la nappe par un flux constant de pesticides est presque impossible. Ceci est dû à plusieurs facteurs variables dont les plus importants sont la fréquence et la période d'épandage du pesticide, sa dégradation, l'humidité du sol et la variabilité des propriétés physiques et hydrauliques du milieu. Le cas plus réaliste est celui où des quantités variables de pesticides atteignent la nappe et migrent à l'intérieur de celle-ci suivant le régime d'écoulement existant. Les quantités de pesticides qui atteignent la nappe correspondent aux données de la courbe de fuite stochastique fournie par VULPEST. Sur une échelle régionale, les flux d'eau infiltrés dans une nappe phréatique ne modifient pas notablement l'épaisseur de cette nappe devant son étendue. Cette hypothèse de Dupuit permet de considérer un régime d'écoulement stationnaire dans la zone saturée. D'autre part, selon Kinzelbach et Ackerer (1986), l'utilisation d'un champ d'écoulement stationnaire est justifiée dans ces conditions, puisque le temps de séjour des pesticides dans les eaux souterraines est souvent plus grand que l'échelle des variations temporelles du champ d'écoulement ou que la durée pour laquelle on effectue une simulation. L'avantage d'un tel régime est de fournir un champ de vitesses calculé une seule fois et utilisé par la suite dans toutes les simulations de transfert de pesticide.

Dans cette étude, nous avons considéré le couplage d'un régime d'écoulement permanent uniforme dans la zone saturée et d'un régime transitoire d'alimentation de la nappe par des pesticides. Ce couplage doit être réalisé de façon à respecter le bilan de masse des flux d'eau et des pesticides au passage de la zone non saturée à la zone saturée. Il ne s'agit donc pas d'un couplage physique au sens strict, car les deux modèles ne sont pas mathématiquement reliés par l'équation de Richard, mais plutôt d'un couplage partiel dans lequel les deux modèles sont indépendants (figure 3). Ce couplage consiste à accumuler dans une matrice linéaire les quantités d'eau et de pesticides, fournies par VULPEST, qui arrivent à la nappe durant chaque intervalle de temps. La courbe de fuite stochastique est reconstituée sur la période de simulation

Figure 3. Schéma montrant le couplage des modèles de transport en zones non saturée et saturée



désirée, et les concentrations de pesticide arrivant à la nappe sont converties en masses. Les résultats des flux d'eau et de contaminants obtenus servent de données d'entrée au modèle STOPEST pour le calcul du transfert des pesticides en zone saturée. L'approche de ce couplage permet donc de considérer des pas de temps de simulation différents pour les deux modèles de transport en zones non saturée et saturée. Cependant, la seule contrainte est le respect du bilan de masse à la fin d'une simulation. De plus, pour des raisons de simplicité des calculs, les pas de temps considérés dans le modèle VULPEST doivent être des fractions entières des pas de temps utilisés dans le modèle STOPEST.

Lors de la conversion des concentrations de pesticide en masses équivalentes, deux cas peuvent être utilisés pour quantifier le taux de particules entrant dans la nappe. Le premier cas (méthode utilisée par Schwartz et Crowe, 1980) consiste à fixer la masse des particules et à ajuster en conséquence leur nombre total pour chaque maille. Cette méthode n'a aucune restriction sur le pas d'espace, mais elle entraîne des erreurs sur le bilan de masse et exclut la convolution étant donné que le nombre de particules peut varier d'un pas de temps à l'autre si le flux massique est variable. Le deuxième cas consiste à fixer le même nombre de particules pour chaque maille, puis à affecter à chacune de ces particules une masse proportionnelle à la concentration injectée. C'est ce deuxième cas qui sera utilisé dans cette étude puisqu'il a l'avantage de conserver le bilan de masse.

4.3 Conditions aux limites et initiales.

Le choix des conditions aux limites est un problème délicat souvent rencontré en modélisation. Un choix adéquat devrait être basé plus particulièrement sur des considérations relatives à la réalité physique du terrain et aux contraintes appliquées au système. Ces limites doivent donc être déterminées de façon à respecter ou à reproduire la dynamique du système. En général, ceci est difficile à déterminer à l'échelle locale d'une région donnée à moins que des mesures hydrogéologiques

suffisantes soient acquises. Par contre, pour des modèles régionaux, l'opération consiste souvent à faire coïncider les limites du modèle avec les limites naturelles du terrain, là où certaines propriétés physiques et hydrogéologiques sont connues (rivière, lac, mer, milieux imperméables, etc.).

En ce qui concerne les conditions aux limites du modèle d'écoulement, des conditions assez simples peuvent être choisies, telles que des limites imperméables (condition de Neumann) dans le sens transversal à l'écoulement, des limites à charges constantes (condition de Dirichlet) et des limites à flux ou gradients constants ou variables (condition de Neumann) dans le sens de l'écoulement.

Quant aux conditions aux limites pour le déplacement des pesticides, on peut considérer des limites de différents types: 1) des limites imperméables; 2) des limites libres ou pièges au niveau desquels les particules quittent le domaine (exutoire du domaine ou puits de pompage); 3) des limites où des concentrations constantes sont imposées (ces concentrations C_0 sont obtenues en distribuant uniformément des particules de masse constante dans un volume et en remplaçant, à chaque pas de temps, les particules qui quittent ce volume); 4) des limites à flux constants dans lesquelles un certain nombre de particules pénètrent dans le domaine à chaque intervalle de temps. Une synthèse de ces conditions décrites mathématiquement par Townley et Wilson (1985), Franke et al.(1987), Sorek (1988) et Galeati et Gambolati (1989) est faite au tableau 1.

4.4 Démarche de simulation et calcul des concentrations

D'après Prickett et al. (1981), une solution exacte par la méthode de marche au hasard demande théoriquement un nombre élevé de particules. Cependant, des expériences pratiques ont montré qu'un nombre relativement petit de particules est suffisant pour le calcul approché du transport. Un minimum de 20 à 25 particules par maille sont suggérées respectivement par Kinzelbach (1988) et Kinzelbach et Uffink (1989) lorsque

Tableau 1. Conditions aux limites envisagées

	écoulement	transfert de masse
Schémas		
Conditions sur H et C (Dirichlet)	$H_{ij}(0) = h_0$ $H_{ij}(t) = h_{\Gamma_1} \text{ sur } \Gamma_1$	$C_{ij}(0) = \begin{cases} c^{(t)} & \text{dans } \Omega \\ 0 & \text{hors } \Omega \end{cases}$ $C_{ij}(t) = c_{\Gamma'_1} \text{ sur } \Gamma'_1$
Conditions sur les flux (Neumann)	$T_{ij} \frac{\partial h}{\partial x_j} \cdot n_i = F_n \text{ sur } \Gamma_2$	$(-D_{ij} \frac{\partial C}{\partial x_j} + vC) \cdot n_i = q_n \text{ sur } \Gamma$

le calcul des concentrations est effectué dans une grille régulière à mailles constantes.

L'introduction dans le temps de nouvelles particules a pour conséquence d'augmenter considérablement le temps de calcul et l'espace mémoire d'ordinateur surtout lorsque le flux particulaire introduit dans le milieu est élevé. Afin d'éviter ce problème, le principe de convolution pour le transfert des pesticides dans les eaux souterraines peut être adopté. Du fait de la linéarité de l'équation de transport, telle que décrite par l'équation de marche au hasard et du phénomène d'additivité des masses, tous les résultats peuvent être superposés tant que des variations brusques de concentration ne se produisent pas aux frontières (Kinzelbach

$$C_{ij}(t) = \int_0^t n_{ij}^0(\tau) \frac{M(t-\tau)}{N b_{ij} dx dy n} d\tau \quad (22)$$

et Uffink, 1989). Ces auteurs ont montré que, dans ces conditions, l'application du principe de convolution permet d'obtenir une solution de l'équation du transport d'une source de contamination ponctuelle (injection continue) dans un écoulement permanent uniforme. Ceci peut se faire en supposant que les déplacements des particules sont statistiquement indépendants dans l'espace et que le chemin emprunté par les particules est statistiquement le même dans le temps. Les déplacements réalisés doivent donc être conservés, soit par la mémorisation des empreintes (coordonnées) des particules déplacées, soit par la sommation des masses de celles-ci au cours du temps dans chaque maille. Par exemple, la distribution d'une source de pollution continue peut être obtenue par convolution en superposant les solutions d'une source d'injection instantanée (ponctuelle ou diffuse) à différentes périodes de temps, soit (Kinzelbach, 1986):

où

- b est l'épaisseur saturée dans une maille (L);
- M est la masse total de polluants au temps $t-\tau$ (M);
- n_{ij}^{δ} est la distribution des particules au temps τ ;
- N est le nombre total de particules dans une maille;
- τ est la période de convolution (T).

D'une autre manière, l'évolution spatiale du panache d'une source continue est équivalente à l'évolution temporelle du panache d'une source instantanée et le panache d'une source de contamination continue peut être obtenu par superposition des différents clichés de l'évolution temporelle de la contamination d'une source ponctuelle injectée pendant une durée finie (figure 4). La méthode de marche au hasard, faisant la superposition des masses par convolution, est plus performante et plus rapide que la méthode sans convolution car elle évite d'une part le déplacement de toutes les particules participant au transport et d'autre part le stockage de leurs coordonnées. Une comparaison des résultats du modèle avec ou sans convolution est présentée à la figure 5. Nous constatons que les résultats sont semblables malgré l'utilisation d'un nombre très différent de particules (125 particules avec convolution et 7250 sans convolution). La comparaison des temps de calcul sur ordinateur (CPU), 4 minutes avec convolution contre 16 minutes sans convolution, montre bien que l'utilisation de ce principe permet un gain important de temps CPU et d'espace mémoire, ce qui explique l'intérêt que nous portons à cette méthode. Le facteur de gain de temps est d'autant plus élevé que le temps de simulation est grand, avec une valeur proportionnelle à $(N+1)/2$, où N représente le nombre de périodes de convolution. Cependant, l'application du principe de convolution suppose que toutes les particules injectées durant un pas de temps ont la même masse, quoique cette masse puisse varier d'un pas de temps à l'autre. Ceci a l'avantage de mémoriser une seule valeur de la masse à chaque pas de temps. Cette exigence confère à la méthode la facilité et la capacité de reproduire en tout temps l'historique de chaque particule (âge ou durée de vie, dégradation de la masse et inventaire des particules sortant du

Figure 4. Schéma du panache d'une source de pollution continue obtenue par superposition des masses d'une source ponctuelle

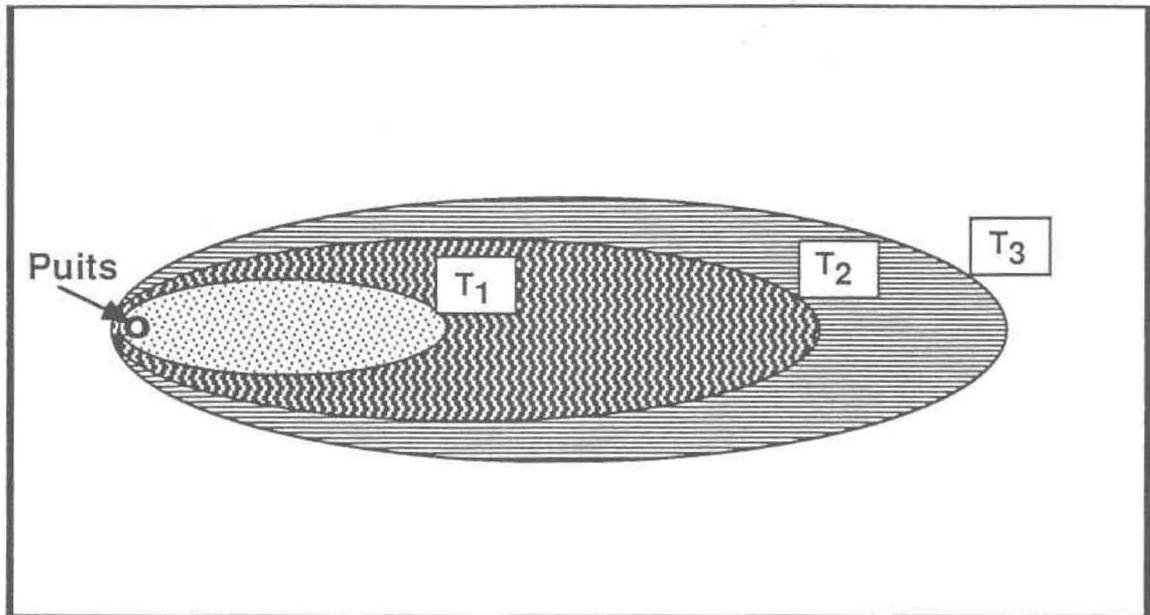
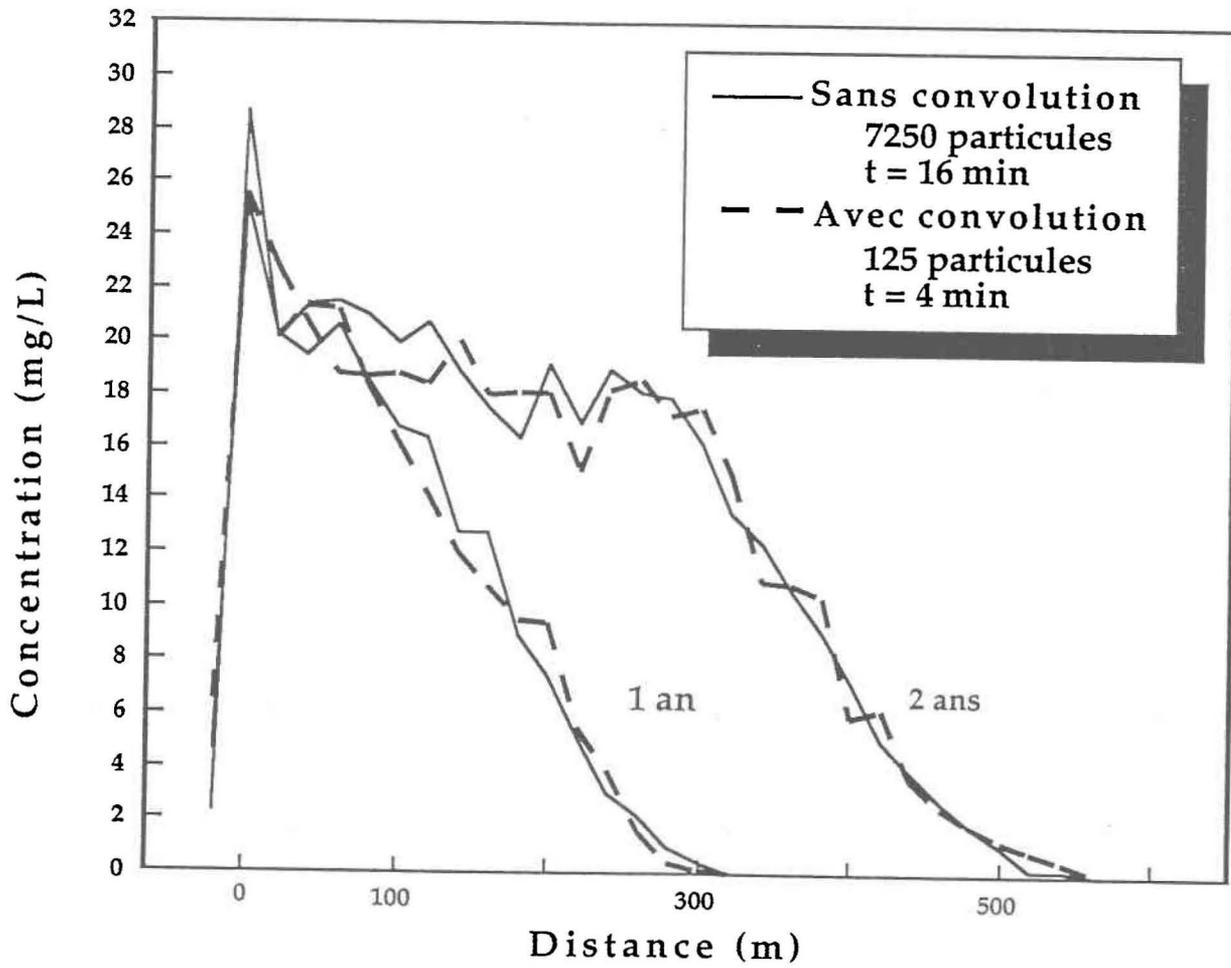


Figure 5. Comparaison des résultats du modèle avec ou sans convolution



domaine par pompage ou aux frontières).

La démarche à suivre pour la simulation du transport en régime permanent d'une quantité de pesticides arrivant à la nappe phréatique et migrant dans l'eau souterraine comprend 13 étapes qui consistent à:

1. Calculer le champ d'écoulement dans le domaine;
2. Déterminer le pas de temps minimal en respectant le critère du nombre de courant $n_c = q_x \, dT / (nRdX) < 1$. Tel qu'indiqué par cette relation, le nombre de courant établit une restriction sur le pas de temps pour un pas d'espace donné;
3. Construire la courbe de fuite du pesticide qui arrive à la nappe par exécution du programme VULPEST;
4. Convertir les concentrations arrivant à la nappe en masses équivalentes (concentration X volume d'eau infiltré);
5. Disperser d'une façon uniforme aléatoire ces particules dans chaque maille et calculer les coordonnées de chacune d'elles;
6. Déplacer chaque particule par la méthode de marche au hasard pendant un intervalle de temps;
7. Repérer chaque particule après son déplacement. Un algorithme rapide est adopté à cet effet;
8. Si les conditions aux limites l'exigent, maintenir les particules dans le domaine d'étude par réflexion de celles qui traversent la frontière;
9. Éliminer les particules interceptées par pompage ou sortant aux frontières là où sont imposés des flux ou des charges.
10. Dégrader la masse des particules si nécessaire;
11. Appliquer le principe de convolution en superposant dans une matrice la masse des particules;
12. Passer au pas de temps suivant et répéter les séquences 4 à 12 autant de fois que nécessaire jusqu'au temps final d'une simulation;
13. A la fin d'une simulation, transformer les masses de contaminant en

concentrations locales.

La méthode de marche au hasard présente quelques difficultés quant à la détermination des pas d'espace, des pas de temps, du nombre de particules à utiliser et du calcul de la concentration à partir de la distribution des particules dans l'espace. Ce problème est très délicat et nécessite une attention particulière afin d'obtenir des résultats représentatifs. En effet, le choix de ces paramètres dépend tout simplement du type de problème à traiter et du degré de précision recherché.

Certains auteurs (Mouchel et al. 1990) rapportent qu'en théorie cette méthode élimine la dispersion numérique, conserve le bilan de masse et ne présente aucune contrainte sur les pas de temps et les pas d'espace comme l'exigent les différences finies ou les éléments finis. Kinzelbach (1986) mentionne que le critère du nombre de courant ($n_c = q_x \, dT / (nRdX) < 1$) doit être respecté pour éliminer les oscillations, d'où une restriction sur le pas de temps. D'autres (Kinzelbach, 1988, et Kinzelbach et Uffink, 1989) suggèrent qu'un nombre relativement plus petit de particules par maille (20 particules ou plus) est généralement suffisant pour représenter le phénomène de transport de contaminants dans les eaux souterraines. Par contre, Tompson et Dougherty (1988) ont montré que dans des systèmes conservatifs, un lissage de la solution du transport demande un nombre élevé de particules (au moins 1000 particules de référence dans des milieux homogènes et plus de 10000 dans des milieux hétérogènes. La réduction des oscillations est proportionnelle à $1/N^{1/2}$, où N est le nombre de particules).

On admet généralement que la discrétisation spatiale doit être grande dans les endroits où les concentrations sont susceptibles de varier très peu et que le pas de temps doit être conforme aux échelles de temps des phénomènes simulés.

Le pas convectif moyen provoqué par un écoulement advectif est:

$$dX = vdT \quad (23)$$

D'après Prickett et al. (1981), selon la discrétisation spatiale envisagée, il faut utiliser au moins 5 pas de déplacement advectif par maille.

Le pas dispersif moyen dû à la dispersion est (Tompson et Dougherty, 1988):

$$dX = \sqrt{2DdT} \quad (24)$$

La somme des termes des équations [23] et [24] donne le pas de déplacement globale moyen, soit:

$$dX = vdT + \sqrt{2DdT} \quad (25)$$

Les pas d'espace utilisés dans le programme de transfert peuvent être spatialement variables mais restent les mêmes pendant toute la durée de simulation. Quant à la discrétisation temporelle, elle peut être constante ou variable. Connaissant les pas d'espace et la dispersion, on peut déduire le pas de temps des équations précédentes. Ainsi, en résolvant l'équation de second degré issue de l'équation [25]:

$$v^2dT^2 - 2(vdX + D)dT + dX^2 = 0 \quad (26)$$

on obtient le pas de temps moyen nécessaire pour parcourir une maille suivant l'axe OX, soit:

$$dT = \frac{v dX + D - \sqrt{D^2 + 2vDdX}}{v^2} \quad (27)$$

On remarque bien, d'après cette équation, que la dispersion (D) et la discrétisation spatiale (dX) contrôlent la détermination du pas de temps. D'une façon générale, l'étude de cette fonction montre que plus la dispersion augmente, plus les pas de temps des simulations doivent diminuer et vice-versa.

Par ailleurs, la détermination des pas de temps doit également être faite de façon à ce qu'aucune particule susceptible d'être interceptée par un puits de rayon d'influence r_i ne puisse sauter celui-ci, soit:

$$dT \leq \frac{r_i}{v} \quad (28)$$

Finalement, le pas de temps optimal proposé pour les simulations numériques est obtenu en choisissant le minimum des pas de temps des équations [23], [24] et [28]:

$$dT = \text{Min}\left(\frac{dX}{5v}, \frac{dX^2}{2D}, \frac{r_i}{v}\right) \quad (29)$$

Les concentrations nodales peuvent être calculées à partir des masses des particules qui se trouvent dans chaque cellule, soit:

$$C_{ij} = \frac{m_{ij}}{n b_{ij} dX dY} \quad (30)$$

4.5 Validation du modèle

4.5.1 Cas d'une injection ponctuelle continue

A des fins de vérification des résultats du modèle avec des solutions analytiques, on détermine par simulation la distribution spatio-temporelle des concentrations dans un milieu homogène. Pour cela, on considère la propagation d'un contaminant à partir d'une source d'injection continue dans un écoulement permanent uniforme en une ou deux dimension(s). Les valeurs des paramètres hydrogéologiques utilisées dans la plupart des simulations sont: 0,35 pour la porosité, $7,70 \times 10^{-4}$ m/s pour la conductivité hydraulique, $1,58 \times 10^{-6}$ m/s pour la vitesse moyenne de pore, 5 m et 0,5 m respectivement pour la dispersivité longitudinale et transversale. S'il y a lieu, les débits d'injection ou de pompage sont respectivement de $3,0 \times 10^{-5}$ m³/s et $3,0 \times 10^{-4}$ m³/s. L'épaisseur saturée de l'aquifère est de 10 m et la concentration en contaminant de l'eau injectée est de 50 mg/L.

L'injection ponctuelle continue est caractéristique des cas de contamination qui parviennent à la nappe en un point donné, soit directement à partir des puits, des fosses septiques ou des déchets (liquides ou solides) entreposés dans le sol, etc.. Deux groupes d'essais tenant compte de ce phénomène ont été effectués:

1- Essais en une dimension

On cherche ici à tester la propagation d'un produit conservatif issu d'une source continue ayant une concentration constante (50 mg/L) imposée en un point donné de la grille. Pour obtenir cette concentration, on calcule la masse du produit à introduire dans la maille; cette masse correspond à la concentration multipliée par le volume d'eau contenu à cet endroit. On introduit alors dans cette maille un nombre fixe de particules auxquelles une fraction de la masse totale est affectée. Ensuite, on détermine pendant un intervalle de temps le nombre de particules qui quittent la maille par entraînement dû à l'advection. Ces particules sont déplacées et les masses sont superposées dans chaque maille à chaque pas de temps. Le fait de remplacer à chaque pas de temps les particules quittant la maille subissant l'injection permet de maintenir la concentration initiale constante à ce niveau. Deux essais de transport ont été effectués: un essai avec advection-dispersion et un autre avec advection seulement. Les solutions analytiques étant obtenues par le logiciel SOLUTE (Beljin, 1985).

2- Essais en deux dimensions

A cause des phénomènes de mélange et de dilution, la concentration de contaminants dans l'eau au point d'injection dans la nappe se trouve modifiée au fur et à mesure que l'alimentation continue, et ce jusqu'à ce qu'un état stationnaire s'établisse à cet endroit. Connaissant le volume d'eau injectée et la concentration du contaminant qu'elle contient, on peut calculer, en un endroit donné, la masse du produit injecté. Ensuite, cette masse est divisée par le nombre de particules considérées. En déplaçant ces particules à chaque pas de temps, on peut déterminer la distribution spatiale des concentrations dans le milieu en tout temps.

Deux essais ont été effectués dans le but de déterminer la performance du modèle par rapport aux solutions analytiques et de tester la capacité du modèle à représenter la dispersion dans l'espace autour d'un point donné. Dans le premier essai, on considère

la propagation d'une seule source d'injection en deux dimensions sous l'effet d'un gradient hydraulique constant et de la dispersion. Dans le deuxième essai, on étudie l'évolution purement dispersive d'une source de pollution ponctuelle.

4.5.2 Analyse des résultats

La figure 5 montre que l'utilisation du produit de convolution donne des résultats satisfaisants. L'utilisation de ce principe fournit un gain d'environ 70 % en temps CPU sur ordinateur en déplaçant uniquement un nombre relativement petit de particules (125). Ce gain est d'autant plus élevé que le temps de simulation est plus grand. Ce même exemple montre que ce principe permet un gain énorme en espace mémoire surtout lorsqu'on déclare des variables en double précision (dans cet exemple, on stocke uniquement les coordonnées de 125 particules au lieu de celles de 7250).

Les figures 6, 7 et 8 comparent les résultats des modèles numériques et analytiques pour le cas d'une injection continue. D'après la figure 6, en tenant compte de l'effet de l'advection-dispersion dans un modèle unidimensionnel, les résultats obtenus par le modèle numérique concordent assez bien avec les solutions analytiques, et ce pour les trois périodes de simulation considérées (1, 2 et 3 ans). Il en est de même pour le cas bidimensionnel tel que montré à la figure 8, et ce pour les deux périodes de simulations (2 et 4 ans). La méthode de marche au hasard induit cependant des oscillations sur la solution, dans le cas dispersif, à cause du faible nombre de particules utilisées. Pour une grande précision des résultats, cette méthode requiert un lissage de la solution mais malheureusement au coût d'un nombre élevé de particules. S'il n'y a pas de dispersion, des fronts abrupts de contamination peuvent être représentés sans difficulté par la marche au hasard (figure 7). Cette méthode représente bien le phénomène d'advection pure et n'engendre pas de dispersion numérique à l'inverse des méthodes de différences finies ou d'éléments finis. En outre, il apparaît que, selon la figure 9 qui montre l'influence d'une dispersion pure

Figure 6. Comparaison des courbes de fuite obtenues par marche au hasard (symboles) et une solution analytique (courbes) dans le cas de l'advection-dispersion

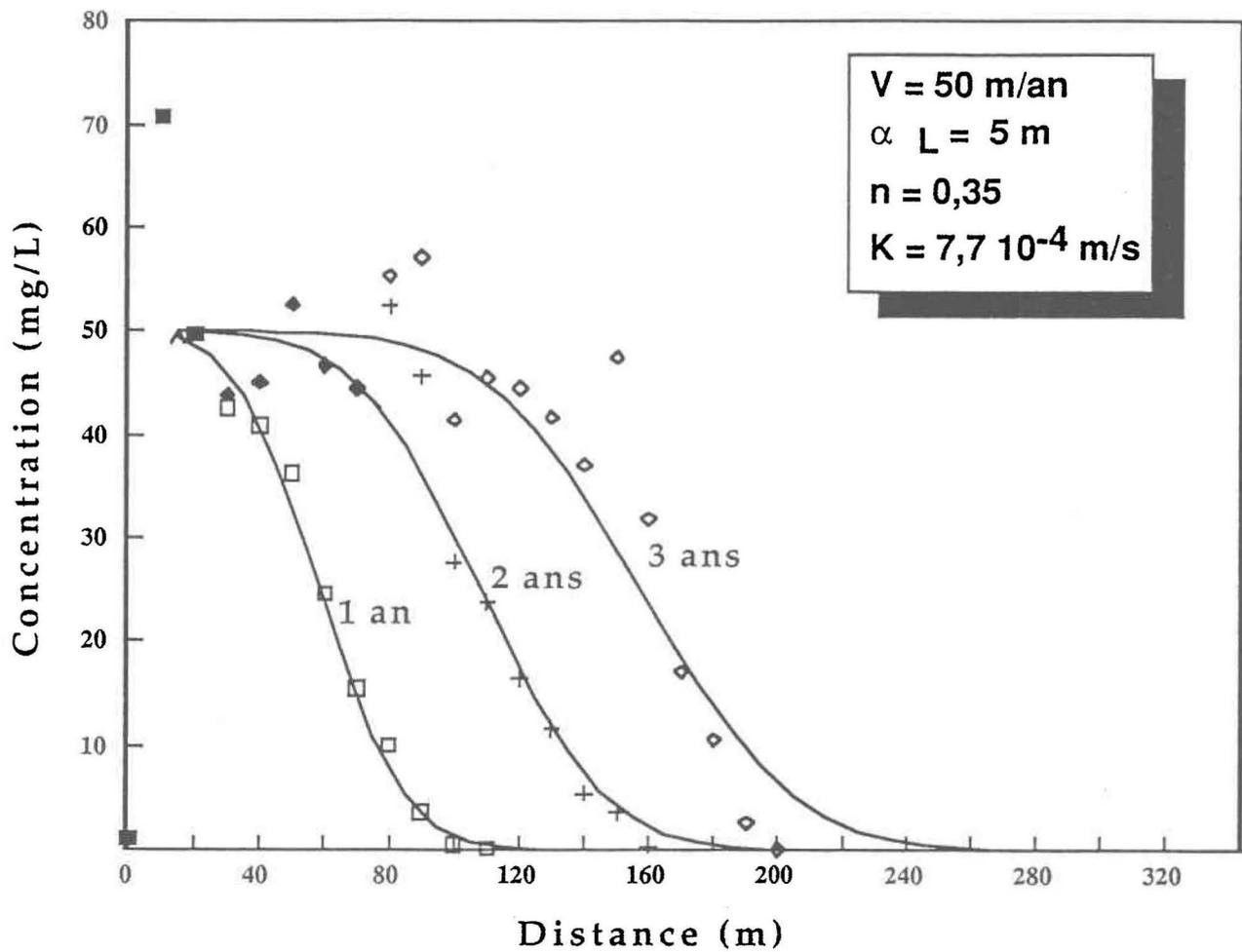


Figure 7. Comparaison des courbes de fuite obtenues par marche au hasard (symboles) et une solution analytique (courbes) dans le cas de l'advection pure

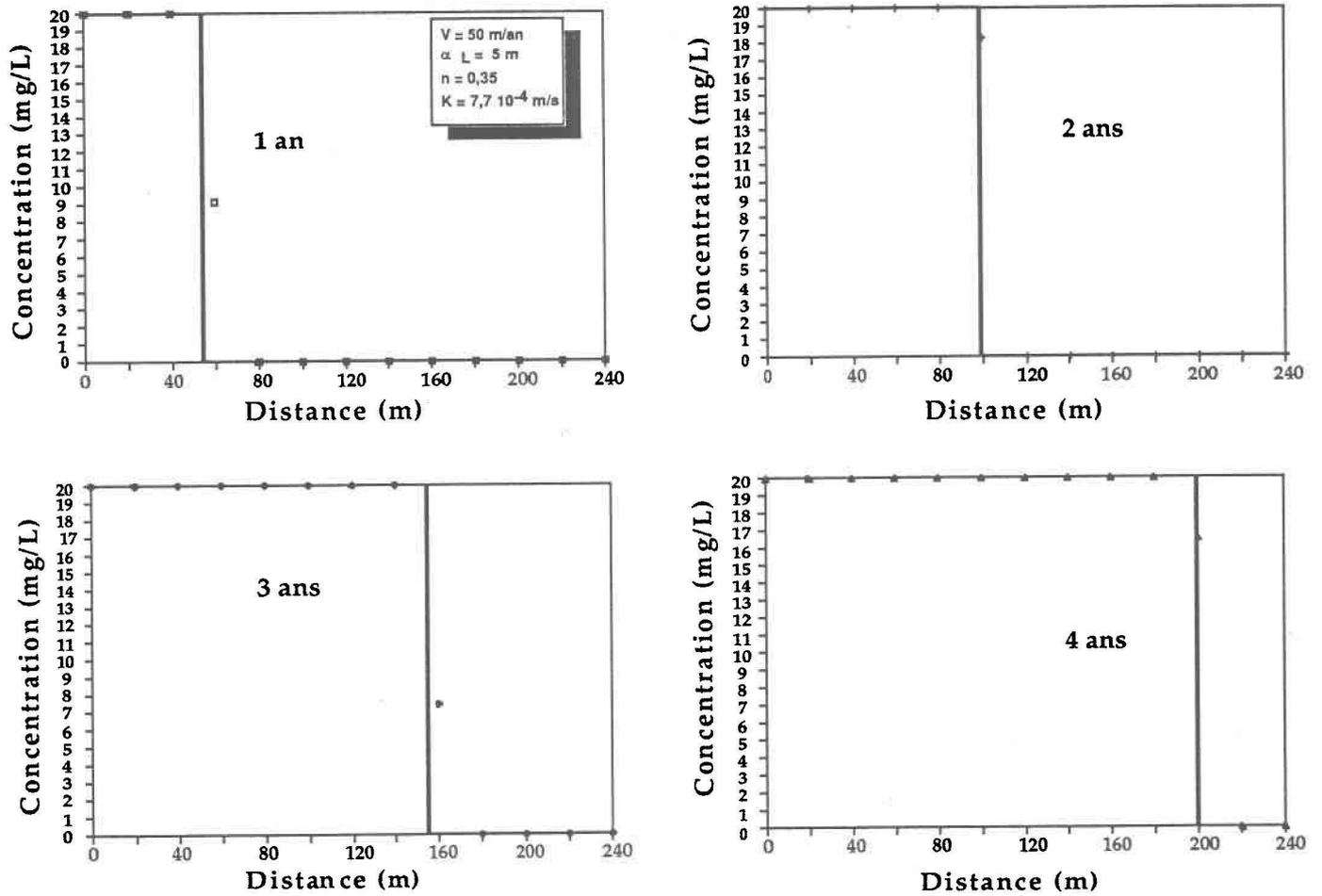


Figure 8. Panache résultant d'une source d'injection ponctuelle (comparaison du modèle avec une solution analytique en 2D)

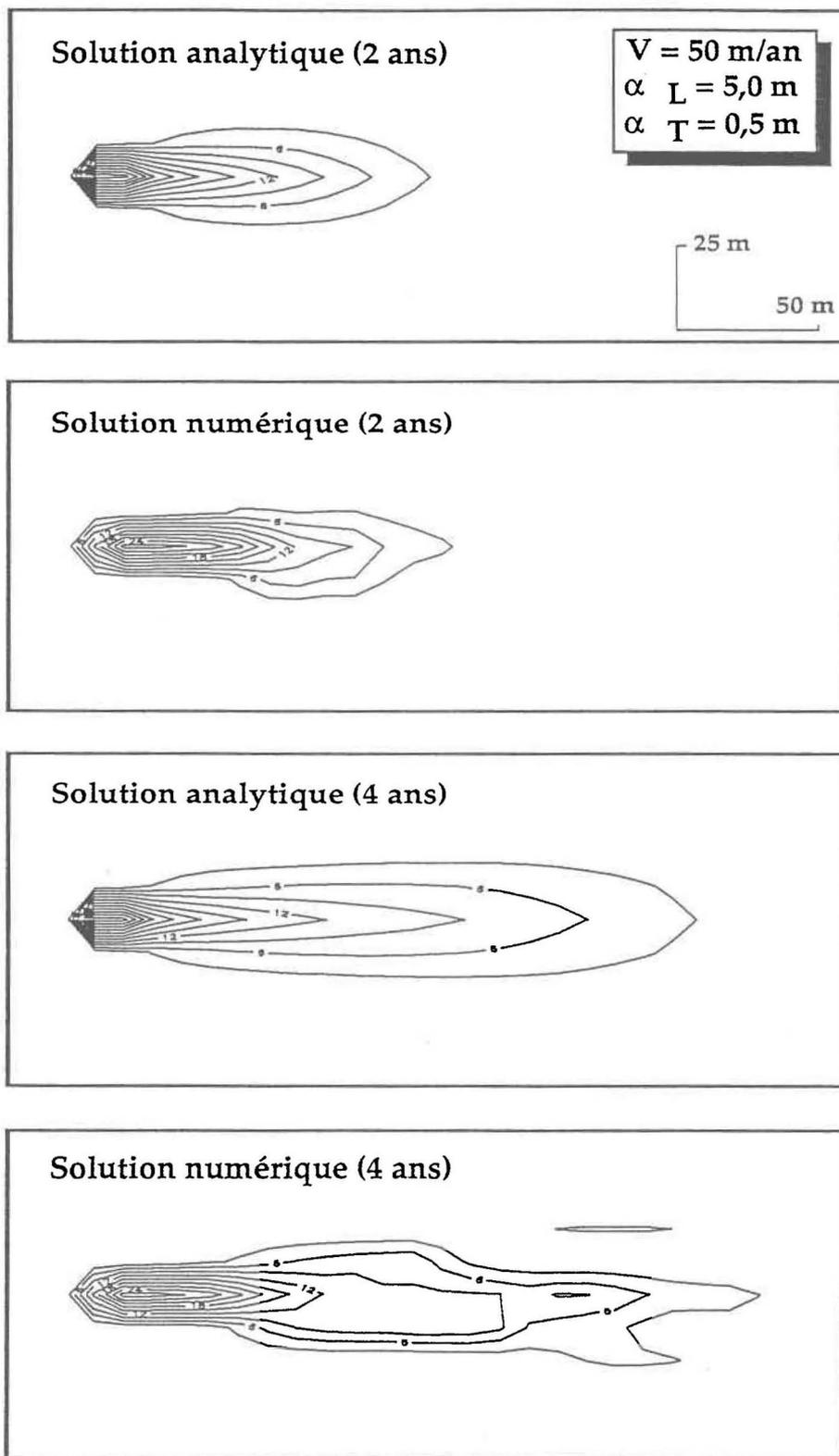
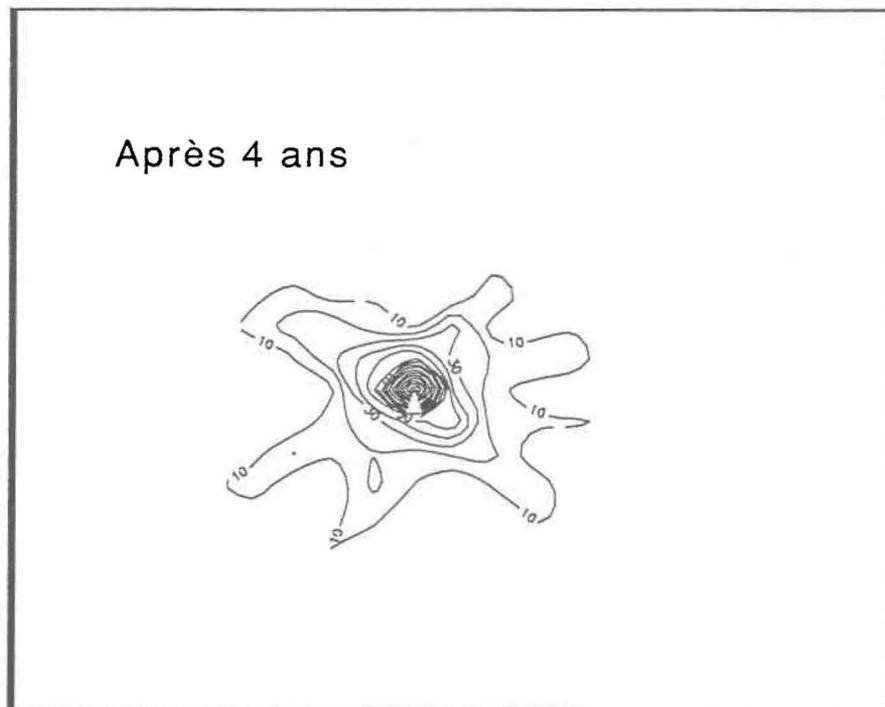
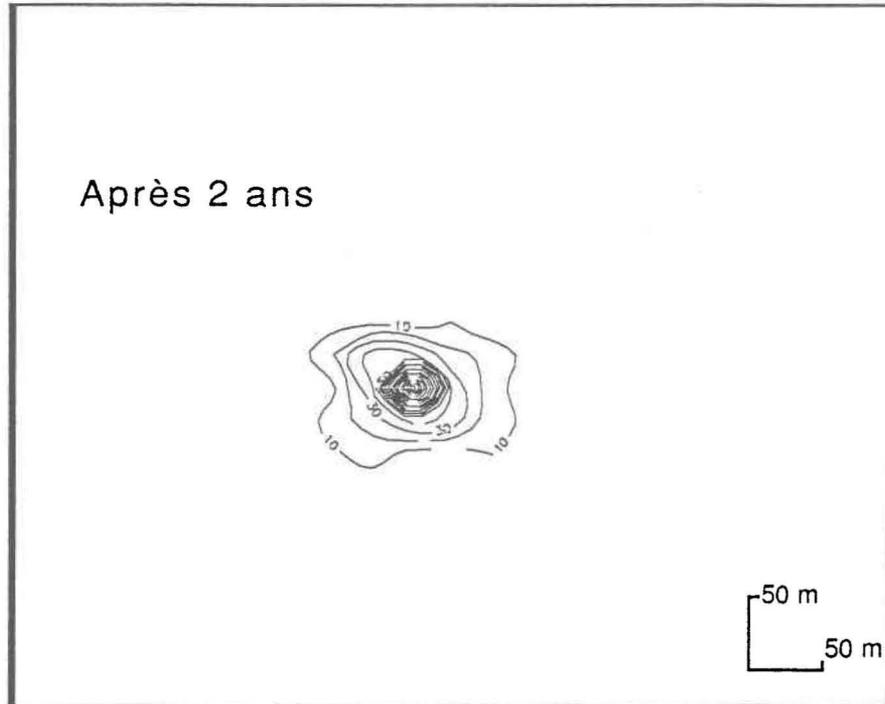


Figure 9. Effet de la dispersion pure sur la distribution des concentrations d'une source de contamination ponctuelle



sur la propagation d'un contaminant de source ponctuelle continue dans un milieu homogène isotrope, la méthode de marche au hasard représente adéquatement le phénomène de dispersion. On remarque bien l'étalement radial des concentrations au cours du temps. Cet étalement (distribution des concentrations) a une forme gaussienne mais présentant des irrégularités (oscillations) en périphérie à cause de la distribution aléatoire d'un faible nombre de particules.

Les résultats ainsi obtenus montrent que le modèle est stable et performant. La méthode de déplacement aléatoire des particules est exempte de dispersion numérique et n'entraîne pas de perte de masse. Une bonne précision des calculs est ainsi obtenue en dehors des points d'injection (l'erreur entre les résultats des modèles numérique et analytique est inférieure à 3 %). En ce qui concerne l'erreur sur l'écoulement, elle est inférieure à 6 %. La précision devient plus grande si l'on choisit des conditions aux limites moins sévères, une discrétisation fine ou une géométrie régulière des frontières.

L'utilisation du principe de convolution est donc d'une grande utilité dans le calcul du transfert des contaminants de sources ponctuelles et son utilisation dans la simulation numérique du transport des contaminants de sources diffuses tels que les pesticides s'avèrerait très intéressante. Notons aussi que l'application de ce principe convient très bien à la modélisation du transfert des pesticides puisque de forts flux de concentration alimentant la nappe ne se produisent presque jamais dans les eaux souterraines.

CHAPITRE 5. APPLICATION A UN CAS RÉEL

5.1 Description du site d'étude

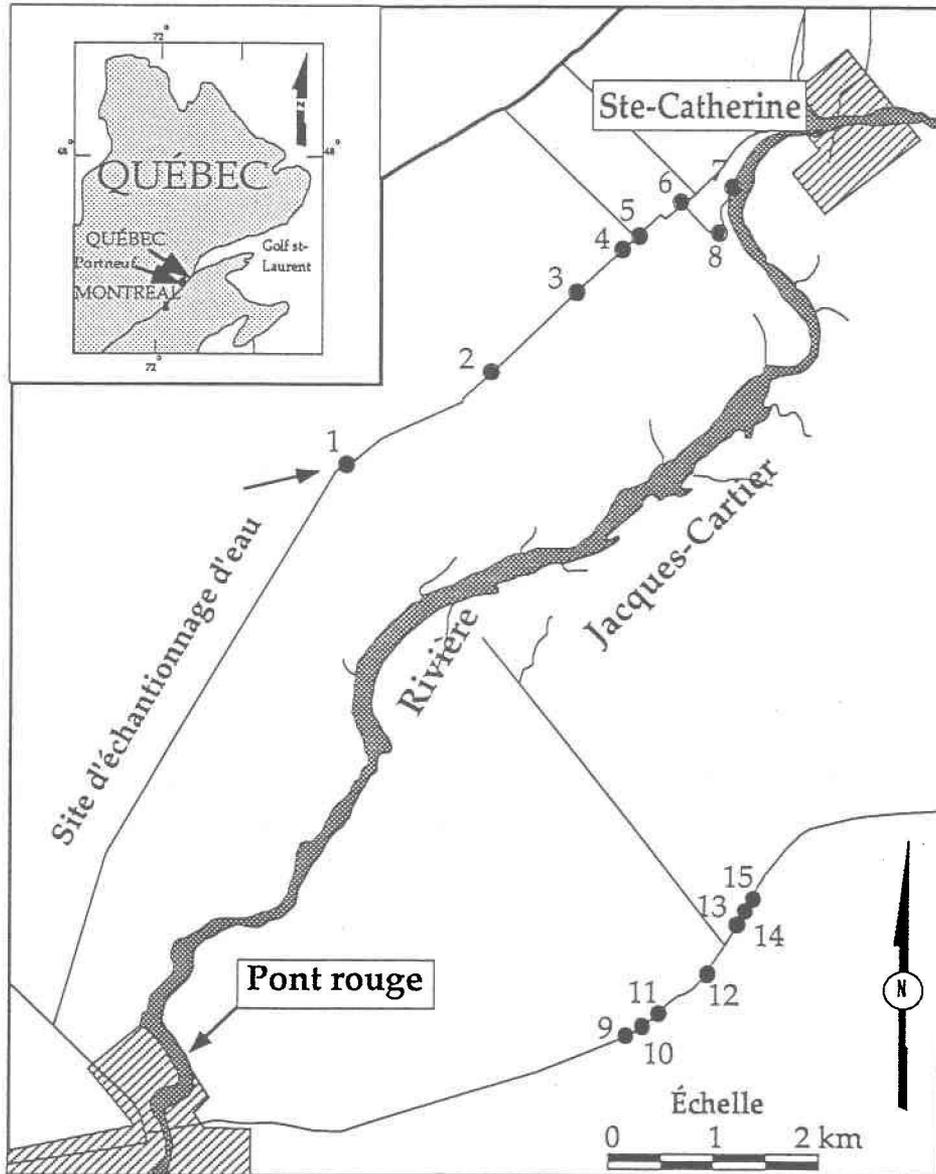
Le site étudié est localisé dans la région Sainte-Catherine-de-la-Jacques-Cartier (comté de Portneuf) à 35 km à l'ouest de la ville de Québec (figure 10).

La géologie de la région est relativement simple. Elle se compose de formations sédimentaires du quaternaire constituées principalement de terrasses faiblement stratifiées de sable moyen à grossier d'origine marine ou fluviale, reposant sur des assises d'argile de la mer Champlain. L'épaisseur de ce sable peut atteindre 20 m par endroit. Le tout repose sur le socle rocheux du bouclier Canadien. La pente du terrain est légèrement faible (0 à 4 %) et le sol est de type podzol humo-ferrique orthique contenant une teneur de 3 à 5 % de matière organique en surface (Banton et al., 1989).

D'un point de vue structural, cette région ne présente pas d'accidents ou d'anomalies géologiques majeurs qui peuvent modifier ses caractéristiques hydrodynamiques. La pente du terrain y est faible et le gradient hydraulique régional y est constant et est évalué à 1/1000 avec un écoulement principalement horizontal (Banton et al. 1992).

Cette région est reconnue pour son potentiel agricole. Les surfaces cultivées sont homogènes et le drainage facile des sables fait de cette région un milieu propice à une culture intensive de la pomme de terre. Cette région a fait l'objet de plusieurs campagnes d'échantillonnage et de surveillance de la qualité des eaux souterraines, entre autres par le Ministère de l'Environnement du Québec (MENVIQ 1987).

Figure 10. Schéma de localisation du site d'étude



Le climat de la région est de type nordique humide avec une température moyenne annuelle de 0 °C; janvier et février sont les mois les plus froids de l'année (jusqu'à -30 °C) et juillet et août sont les plus chauds (jusqu'à +30 °C). En été, l'humidité de l'air peut dépasser 80 %. Les précipitations sont sous forme de neige ou de pluie. Le couvert nival dure environ 5 mois avec une épaisseur moyenne de 200 cm, soit l'équivalent à une lame d'eau de 200 mm/an. Les mois de juillet, août et septembre sont les plus pluvieux de l'année avec une quantité d'eau moyenne de 500 mm/an. L'évaporation totale annuelle est estimée à 400 mm/an.

Les conductivités hydrauliques, la porosité efficace, la densité apparente sèche, le contenu en matière organique et celui en carbone organique ont été mesurés (Banton *et al.*, 1989). Une étude de ces données a été faite sur une base statistique afin de déterminer les moments de premier et second ordres (moyenne et écart type) de chaque paramètre pour les trois horizons de sol ayant des profondeurs respectives: 0 à 20 cm, 20 à 40 cm et 40 à 80 cm. Les techniques d'échantillonnage et de mesure de chacun de ces paramètres est décrite par Banton *et al.* (1989). Ainsi par exemple, les conductivités hydrauliques ont été obtenues sur le terrain à l'aide des perméamètres ou en laboratoire par la méthode de Darcy sur les carottes de sol non-remanié, la porosité efficace est mesurée par double pesée: saturé/séché et le contenu en matières organiques par perte au feu.

Le pesticide utilisé pour la culture de la pomme de terre est l'aldicarbe (oxime de méthyl-2 (méthylthio)-2 propionaldéhyde-O-méthylcarbamoyl), un produit couramment utilisé pour ce genre de culture. C'est un insecticide appartenant au groupe des carbamates. Il est de forme granulaire contenant 5%, 10% ou 15% de la matière active. Il est applicable au temps des semailles (mi-mai) au taux recommandé de 2,24 kg/ha. L'aldicarbe a une grande solubilité dans l'eau (6000 mg/L) et est lessivé par l'humidité du sol. Au cours de sa migration dans le sol, l'aldicarbe s'oxyde en sulfoxyde (oxime de méthyl-2 (méthylsulfinyl)-2 propionaldéhyde-O-méthylcarbamoyl), puis en sulfone (oxime de méthyl-2 (méthylsulfonyl)-2

propionaldéhyde-O-méthylcarbamoyle). Ces trois carbamates (aldicarbe, aldicarbe sulfoxyde et aldicarbe sulfone) sont toxiques et sont transformés par hydrolyse en oximes. Ces produits d'hydrolyse sont beaucoup moins toxiques que l'aldicarbe et ses résidus, et ont peu d'impact environnemental.

Les résultats des analyses de l'eau des puits de cette région à différentes périodes, entre les années 84 et 88, sont montrés au tableau 2. Malgré l'arrêt de l'épandage de l'aldicarbe en 1984, le pesticide persiste encore après 4 ans dans le sol et l'eau souterraine et des concentrations dépassant les normes de potabilité de 9 µg/L, fixée par Santé et Bien-être Social du Canada (1987) [SBSC] ou de 10 µg/L de l'U.S. Environmental Protection Agency (USEPA), sont notées dans certains puits de la région. La superficie des aires traitées autour des puits varie de 1 à 60 ha, avec une moyenne de 18 ha (Banton et al. 1989).

5.2 Modélisation du transfert de l'aldicarbe dans les zones non saturée et saturée.

5.2.1 Contexte de la simulation.

Du fait de la distribution spatiale de l'épandage des pesticides à la surface du sol et de leur transport essentiellement vertical dans la zone non saturée, la zone d'alimentation de la nappe correspond à la projection verticale de la zone d'application sur la surface de la nappe. En traversant la zone non saturée, les pesticides arrivent à la nappe sous forme dissoute et généralement en faibles concentrations, de telle sorte que leur présence dans l'eau souterraine ne modifie pas significativement les propriétés de celle-ci. Pour chaque période de temps et pour un type de pesticide, chaque maille de la grille se trouvant sous la zone d'application et identifiant un même type de sol reçoit une même quantité de pesticide. Ces quantités sont fournies par la courbe de fuite stochastique de VULPEST.

Tableau 2. Concentrations en résidus toxiques totaux de l'aldicarbe ($\mu\text{g/L}$) mesurées dans les eaux des puits (voir fig. 10). Analyses effectuées par: Rhone-Poulenc Agr., () Agriculture Canada, [] Environnement Québec

Site	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
Date															
07/84		7(6.2)	ND	ND(ND)	ND	ND									
10/84		9													
05/85		8(9.8)													
07/85	ND	6(6.3)	ND	ND	1 [ND]	ND			ND	ND	ND	ND[ND]	3(2.6)	ND	ND[1]
10/85	10(3.2)	5	ND	ND	ND	ND	ND	1	ND	ND	ND	ND	2	ND[ND]	ND
07/86	30(23.7)	3		ND(ND)	ND	2	ND	5	ND	ND	ND	ND	1 (ND)	4(2.4)	4
10/86	16	3(ND)			ND(ND)				ND				ND	ND	
07/87	33						ND(ND)	11					ND	ND	
08/87		2[1.2]	ND	2	ND	ND							3	2	
01/88	[11]									[ND]	[ND]		[2]	[ND]	
NAA	3	2	P	2	P	P	P	P	3	3	3	3	3	3	3
DAA	85	84	85	84	82	85	85	85	85	85	85	85	85	85	85

ND: non-déecté ($1 \mu\text{g/L}$); NAA: nombre d'années d'application; DAA: dernière année d'application; P: plusieurs.
(D'après Banton *et al.*;1990)

En présence de très faibles quantités de matière organique dans la zone saturée, ces pesticides migrent à la même vitesse que l'eau souterraine. Le champ des vitesses est nécessaire pour calculer le transfert des pesticides dans l'eau souterraine et pour déterminer la distribution des concentrations de ces produits en tout point de l'aquifère. Ceci est obtenu en déplaçant un nuage de particules de référence dans le domaine simulé. A chacune de ces particules est attribuée une masse correspondant à une fraction de la masse totale du pesticide lessivé dans l'eau.

La zone considérée correspond au site 2 de la figure 10. Ce site a été choisi pour sa représentativité de la région. Il comprend un puits situé à environ 60 m d'une zone de culture de pomme de terre (figure 11). La surface libre de la nappe se trouve à environ 3 m de profondeur tandis que le puits à une profondeur d'environ 6 m. L'épaisseur de la nappe soumise au pompage est donc de 3 m. L'application du pesticide aldicarbe est effectuée pendant deux années, en 1982 et 1983. Les concentrations mesurées dans le puits sont indiquées dans la troisième colonne du tableau 2.

La courbe de fuite stochastique d'arrivée à la nappe du pesticide aldicarbe, donnée par VULPEST, est présentée à la figure 12. Les données de base qui ont servi à construire cette courbe ont été tirées des travaux de Banton *et al.* (1989). Les deux pics de cette figure correspondent aux apports des deux applications. Ces pics indiquent une concentration maximale d'environ 0,5 mg/L du pesticide aldicarbe arrivant à la nappe se produisant presque 6 mois et demi après son application. Cette concentration maximale dépasse de loin la norme d'eau potable qui est de 9 µg/L.

Dans le site de Sainte Catherine de Portneuf, selon les résultats de la simulation l'aldicarbe et ses résidus atteignent la nappe phréatique dans une proportion de 39 %. Cette proportion n'est que de 5 % dans un cas rapporté par Jones (1986) pour une

Figure 11. Délimitation du domaine des simulations

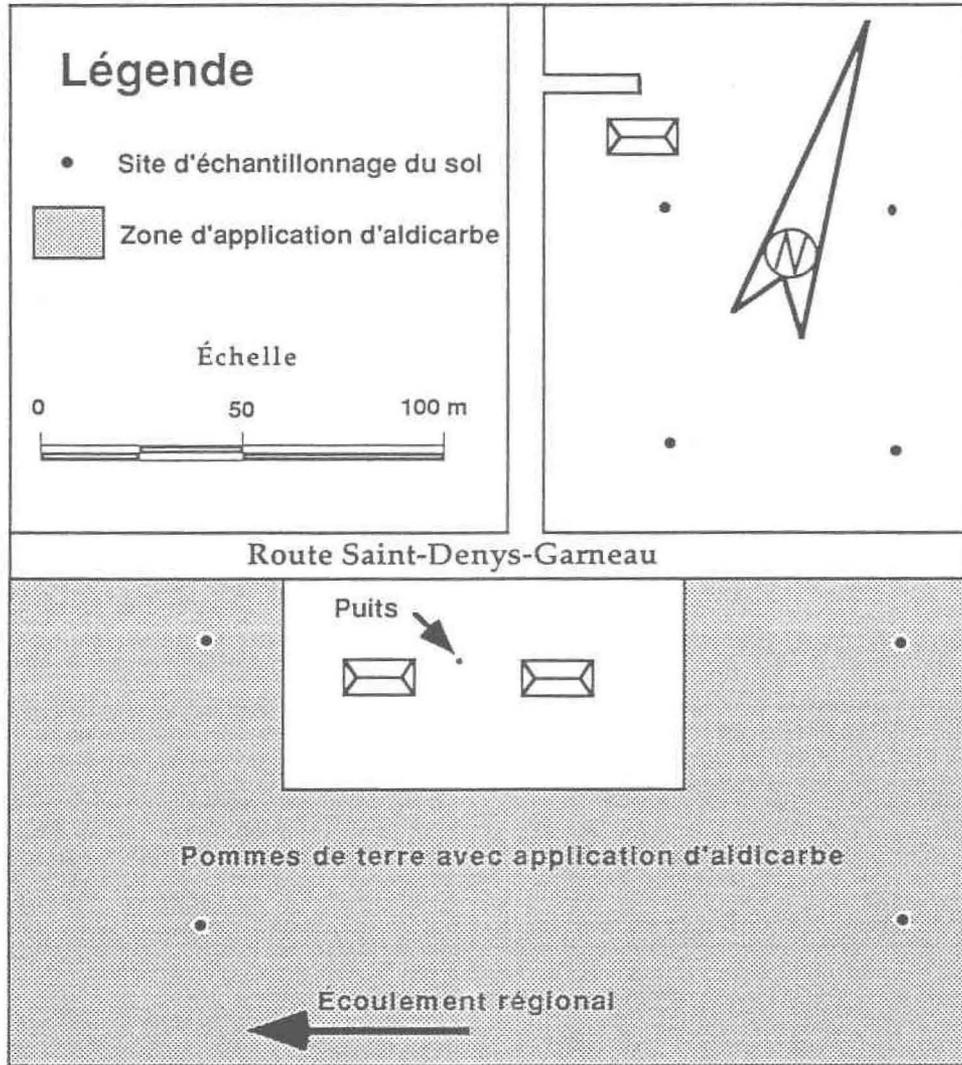
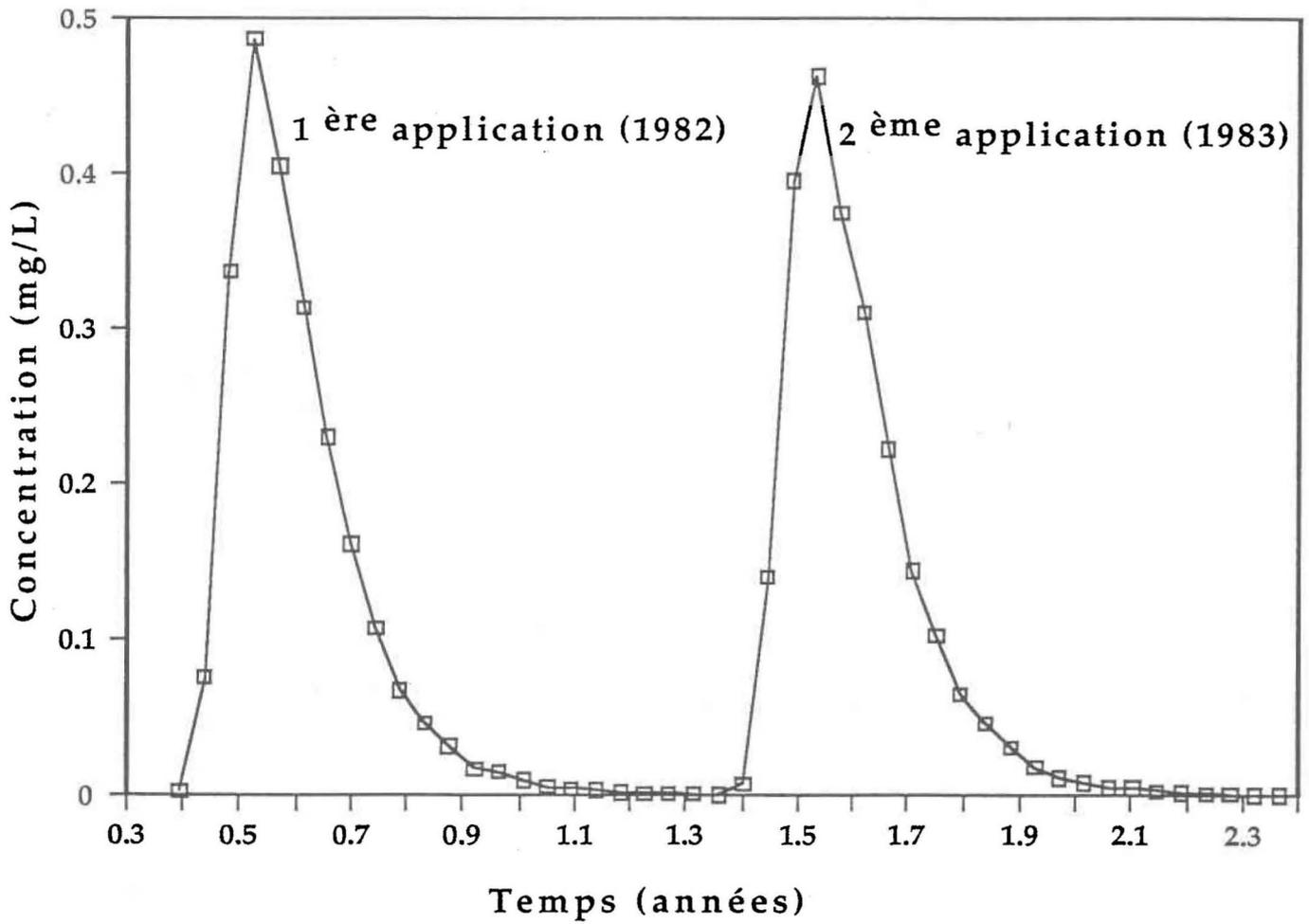


Figure 12. Courbe de fuite stochastique de l'arrivée à la nappe du pesticide aldicarbe (obtenue par le modèle VULPEST)



plantation des arbres citronniers en Floride. Cette proportion peut être influencée par des facteurs/conditions hydrogéologiques et climatiques du milieu.

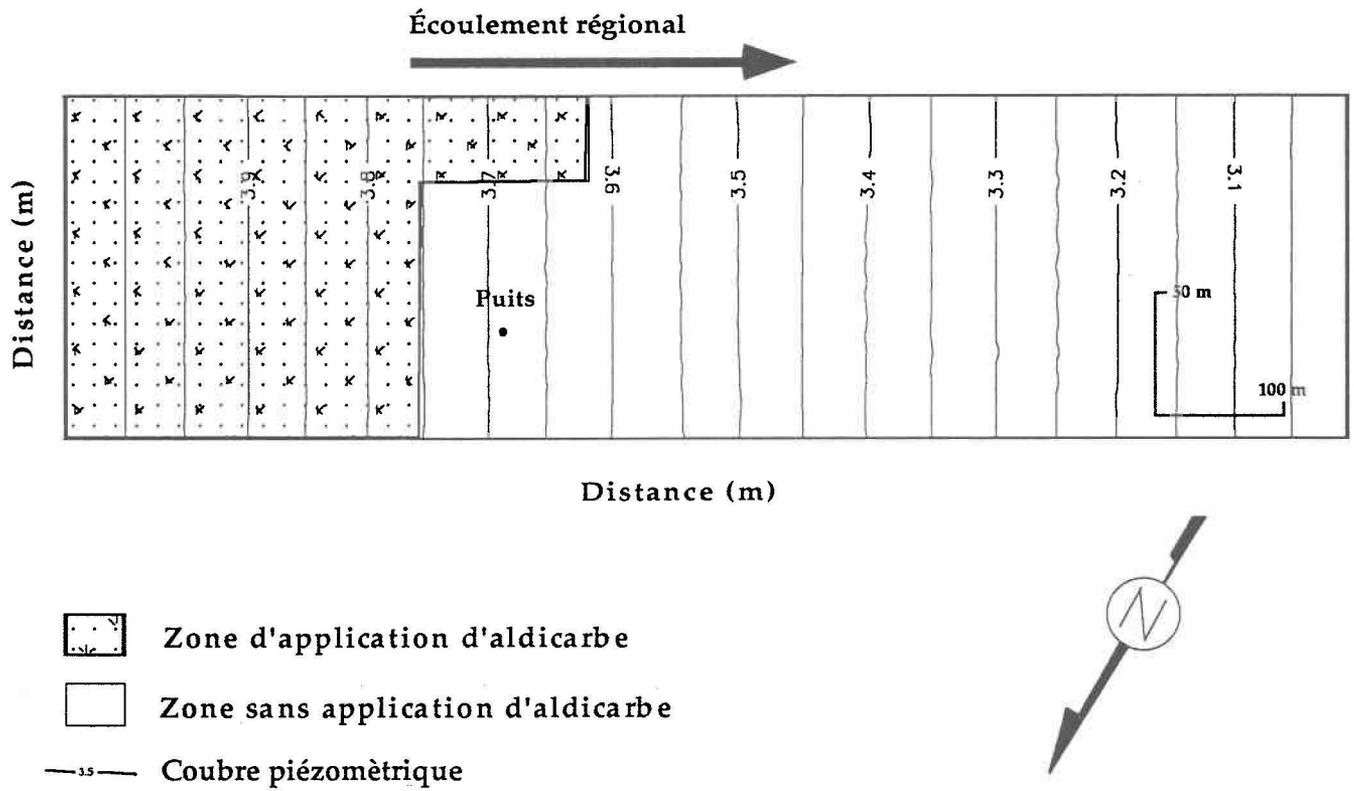
La région simulée est subdivisée en un maillage régulier de 50 x 17 (850) noeuds. Les pas d'espace sont variables sur l'axe des X (15 m à 36 m) et constants sur l'axe des Y (10 m). Les valeurs des paramètres utilisées dans la simulation sont celles mesurées sur le terrain ou en laboratoire en ce qui concerne la conductivité hydraulique ($K = 7,7 \times 10^{-4}$ m/s) et la porosité effective ($n = 0,35$). Par contre, la valeur du taux de dégradation du composé aldicarbe dans la nappe, soit $0,0029 \text{ j}^{-1}$, et correspondant à une demi-vie d'environ 8 mois, a été prise dans la littérature (Jones et al., 1987). En ce qui concerne les dispersivités longitudinale et transversale, nous avons utilisé des valeurs faibles ($\alpha_L = 0,2$ m et $\alpha_T = 0,02$ m) en supposant toutefois que le phénomène de dispersion est compensé par la distribution spatiale de l'épandage des pesticides.

La zone qui a subi une application d'aldicarbe comprend 298 mailles et a une superficie de 4,47 hectares. Une distribution aléatoire de 20 particules par maille est considérée pour le transport (environ 6000 particules sont transportées dans le domaine). Ensuite, une simulation du transfert du pesticide aldicarbe dans la nappe est effectuée sur une période de 5 ans, et ce en appliquant le principe du produit de convolution. Le temps moyen requis par simulation est d'environ 40 minutes en temps CPU avec un pas de temps de 16 jours.

5.2.2 Analyse des résultats

Rappelons que les résidus d'aldicarbe (aldicarbe sulfoxyde et aldicarbe sulfone) n'ont pas été suivis individuellement lors du transport. Dans cette étude, on désigne donc par aldicarbe à la fois l'aldicarbe parent et ses résidus sulfoxyde et sulfone. La distribution des charges hydrauliques responsables du transport du pesticide dans la nappe est donnée à la figure 13. La courbe de fuite stochastique des concentrations

Figure 13. Distribution de la charge hydraulique dans le domaine



d'aldicarbe au puits, obtenue par simulation à partir des données de base ci-dessus, est représentée à la figure 14. On remarque que l'aldicarbe commence à apparaître dans le puits après un temps de transfert d'une année (temps entre l'application du pesticide et sa détection au puits) et que les deux pics correspondant aux deux applications sont bien identifiés dans la courbe avec des concentrations voisines de 24 µg/L et de 30 µg/L. Les fluctuations des concentrations d'aldicarbe indiquées sur cette courbe sont imputées au nombre variable de particules interceptées par le puits dû à la nature aléatoire du calcul par la marche au hasard.

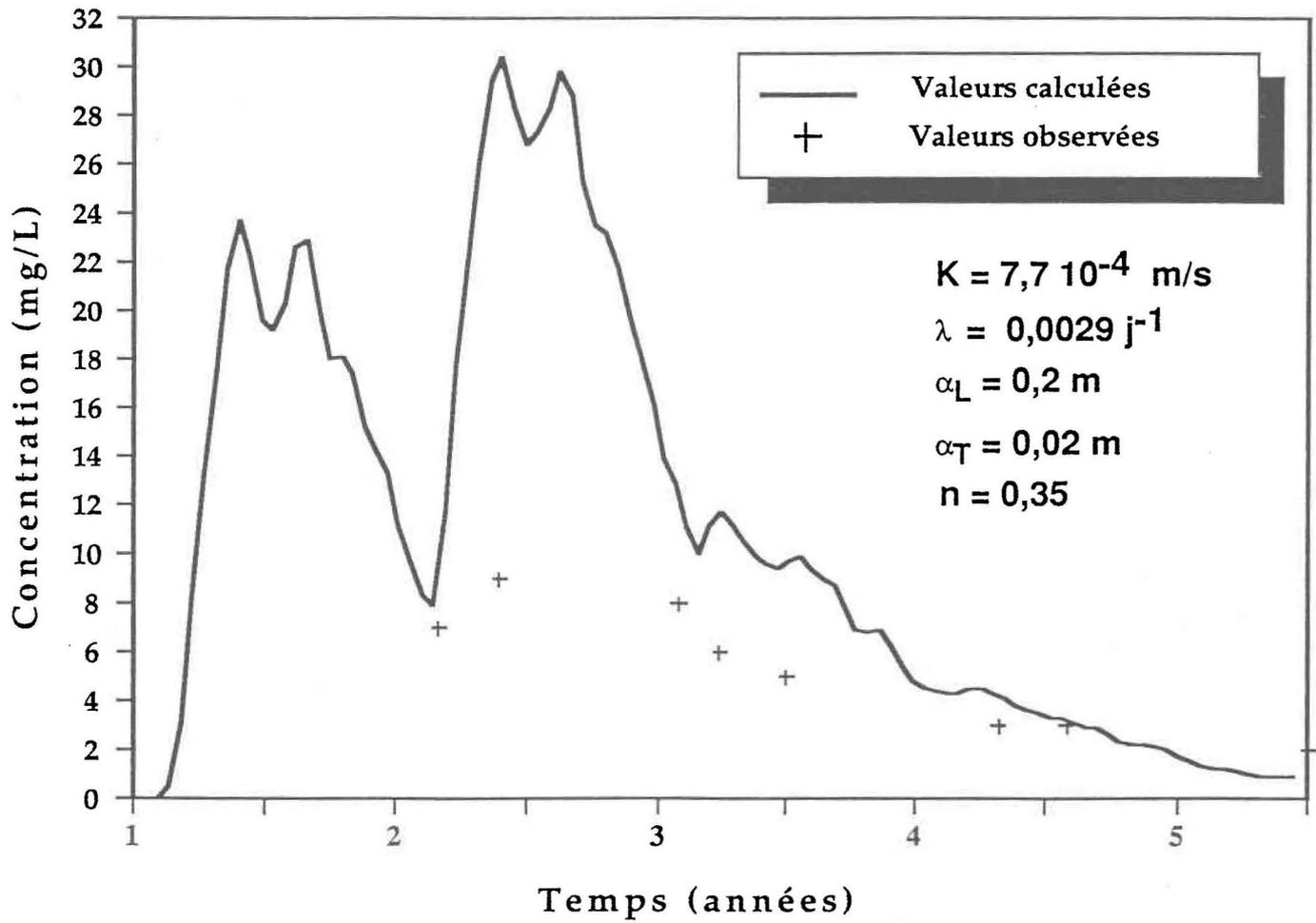
Le rayon d'influence critique d'un puits soumis à un débit de pompage Q peut être déterminé par la relation suivante:

$$r_i = \sqrt{\frac{QdT}{\pi(h-b)n}} \quad (31)$$

Ce rayon est d'environ 3 m pour un pompage au taux de 500 m³/an estimé suffisant pour les besoins d'une famille de quatre individus. Ce rayon est faible et est inférieur à la largeur de la maille contenant le puits. Ainsi, seule une partie des particules se trouvant dans cette maille est pompée. L'influence de ce taux de pompage sur le gradient de la nappe est très faible et non visible (figure 13).

La comparaison des concentrations à la figure 14 montre des écarts entre les résultats des concentrations calculées par le modèle numérique et les concentrations mesurées dans le puits. Il semble que ces écarts soient dus aux incertitudes en ce qui concerne

Figure 14. Courbe de fuite stochastique des concentrations simulées parvenant au puits



les données d'entrée du modèle. Les principaux paramètres (ou facteurs) qui influencent la concentration de pesticides dans les eaux souterraines sont la porosité, la dispersivité et la perméabilité ou la transmissivité de l'aquifère et la dégradation du pesticide et son adsorption dans le milieu. Ces paramètres sont souvent difficiles à mesurer sur le terrain et on ne dispose, dans la plupart des cas, que de peu d'informations ou de données sur celles-ci. Plusieurs auteurs (Amoozegar-Fard et al., 1981; El Kadi, 1984; Dagan, 1984) ont étudié, sur une base statistique ou géostatistique, les incertitudes sur la plupart de ces paramètres. Le problème réside principalement dans la détermination des paramètres clefs agissant sur la distribution spatio-temporelle des concentrations dans les eaux souterraines. Des estimations de ces paramètres peuvent être obtenues par une étude de calibration telle que présentée au paragraphe suivant.

5.3 Calibration du modèle STOPEST

La calibration du modèle STOPEST est effectuée en ajustant les concentrations calculées aux concentrations mesurées. Ceci peut être effectué de plusieurs façons, soit avec la méthode Simplex de Nelder et Mead (1965) (dans Box et al., 1969) ou soit avec la méthode par essai-erreur (selon le schéma de Neuman, 1973, dans Freeze et Cherry, 1979) combinées à une analyse de sensibilité par exemple. C'est cette dernière méthode que nous avons utilisé dans cette étude. Celle-ci consiste à faire varier un paramètre à la fois tout en gardant tous les autres constants et à minimiser les écarts entre les valeurs des concentrations mesurées et calculées. Cette méthode permet de déterminer l'influence directe de chaque paramètre sur le résultat du modèle et ne tient pas compte des corrélations entre les paramètres.

Plusieurs paramètres ont des valeurs incertaines dans cette étude. Nous distinguons ainsi trois types d'erreurs: des erreurs sur les paramètres affectant le transport par advection, la dispersion et finalement la dégradation. Dans le premier cas, on trouve la perméabilité et la porosité, dans le deuxième cas la dispersivité et dans le troisième

cas le coefficient de dégradation. Étant donné que la transmissivité est proportionnelle à la perméabilité, ces deux paramètres sont directement corrélés car l'épaisseur de l'aquifère est supposée uniforme. On suppose que l'erreur sur l'estimation de la porosité est faible, d'où le maintien de la valeur mesurée de ce paramètre dans les simulations. On suppose que la faible stratification du sable de cette région peut entraîner une corrélation entre les dispersivités longitudinale et transversale selon le rapport $\alpha_L/\alpha_T \leq 10$. En respectant ce rapport dans les simulations, on se limitera uniquement à la variation de la dispersivité longitudinale dans l'étude de calibration. Nous n'avons pas considéré le phénomène d'adsorption en raison de l'existence de très faibles quantités de matière organique dans la zone saturée. Comme l'adsorption agit essentiellement sur la vitesse de l'eau souterraine, on suppose que son influence sur cette vitesse est plus faible que celle engendrée par la conductivité hydraulique. Les paramètres les plus incertains et qui sont soumis à la calibration sont donc la conductivité hydraulique, la dispersivité longitudinale et le taux de dégradation.

5.3.1 Conductivité hydraulique

La variation de ce paramètre agit surtout sur la vitesse des eaux souterraines et par conséquent sur le transfert du pesticide dans le milieu. Ainsi, des vitesses élevées entraînent plus rapidement le pesticide et diminuent son temps de séjour dans le domaine. La dégradation agira moins longtemps et entraînera des concentrations plus élevées dans le puits si celui-ci n'est pas très loin de la zone d'application, sinon une grande dilution pourra accompagner ce phénomène. Le phénomène inverse se produit pour des vitesses faibles. Une gamme de variation s'étalant jusqu'à 60 % de part et d'autre de la valeur de la conductivité hydraulique calculée ($7,7 \times 10^{-4}$ m/s) est utilisée pour réaliser l'étude de calibration avec ce paramètre. Pour des conductivités hydrauliques élevées, les résultats du modèle sont plus largement différents des concentrations observées dans le puits. Il en résulte ainsi que seules les variations

négatives sur la valeur originale de la conductivité hydraulique ($7,7 \times 10^{-4}$ m/s) seront étudiées.

5.3.2 Dispersivité

Les faibles valeurs de dispersivité hydrodynamique entraînent une accentuation des pics de concentration, tandis que les grandes valeurs provoquent un étalement de la courbe de fuite. La figure 14 montre un étalement plus important de la courbe des concentrations mesurées et des pics de concentrations simulées plus accentués. Il apparaît donc que l'utilisation de valeurs plus élevées pour les coefficients de dispersivité permettra de rapprocher les valeurs calculées des valeurs expérimentales.

5.3.3 Dégradation

Les pesticides se dégradent dans le sol et les eaux souterraines, et l'hydrolyse en constitue le processus de dégradation prédominant pour le cas de l'aldicarbe (voir annexe A). La valeur de $0,0029 \text{ j}^{-1}$ du taux de dégradation de l'aldicarbe qui provient de la littérature (Jones *et al.*, 1987) a été utilisée dans les simulations pour obtenir la courbe de la figure 14.

En faisant varier le paramètre de dégradation, deux cas peuvent se présenter. Dans le premier cas, une augmentation du taux de dégradation entraîne l'arrivée de concentrations plus faibles au puits, ce qui se traduirait par une diminution des pics de concentrations et par une sous-estimation des concentrations après une période de quatre ans malheureusement. Dans le second cas, une diminution du taux de dégradation augmenterait les concentrations calculées au puits. Il apparaît donc que la variation des paramètres qu'il faut considérer dans la première phase de calibration ne porte que sur la conductivité hydraulique ou sur la dispersivité hydrodynamique. Notons que la méthode de calibration ne tient pas compte des combinaisons des

paramètres (phénomène de corrélation).

Par ailleurs, nous avons vu plus haut (5.3.1) qu'une diminution des conductivités hydrauliques provoque une propagation plus lente du pesticide dans les eaux souterraines et qu'une augmentation de la dispersion (5.3.2) entraîne son étalement. Ceci aura pour conséquence d'atténuer les concentrations des pics et d'entraîner une apparition plus progressive au puits. Ceci va permettre dans un premier temps de diminuer les différences entre les valeurs mesurées et les valeurs calculées, puis on procédera dans un deuxième temps à la variation du coefficient de dégradation si nécessaire. Seules des variations négatives de ce coefficient seront considérées (jusqu'à -30 %), puisque les variations positives entraîneraient une trop grande dégradation.

5.3.4 Calibration

A l'aide de la méthode par essai-erreur, une série de simulations de transfert du pesticide aldicarbe est effectuée en variant progressivement les valeurs des paramètres considérés. A la fin de chaque simulation, on calcule les valeurs cumulées des différences absolues entre les concentrations mesurées et calculées. En analysant ces erreurs et en comparant les courbes des concentrations observées et calculées, on modifie les valeurs des paramètres appropriés et on répète l'approche jusqu'à ce que le cumul des erreurs sur les concentrations soit le plus petit possible. Par l'application de cette méthode, on obtient des valeurs optimales après environ une quinzaine de simulations. La valeur des erreurs cumulées sur les concentrations est de 3,28 µg/L et celle d'avant la calibration était de 36 µg/L, soit une diminution d'un facteur dix.

5.3.5 Analyse et discussion des résultats

Les valeurs des différents paramètres utilisés sont présentées au tableau 3. Ce tableau montre également les valeurs utilisées par: 1) Dean et al. (1989b) dans une simulation

de transport de l'aldicarbe dans l'aquifère de Long Island aux États Unis à l'aide du modèle RUSTIC et 2) Banton et al. (1992) dans une simulation conduisant à la détermination du périmètre de protection de ce puits par une autre méthode.

Tableau 3: Valeurs des paramètres obtenus par calibration comparées à celles provenant de la littérature

Paramètre	Portneuf ¹	Portneuf ²	Long Island ³	unités
Conductivité hydraulique	39(14)*	67(25)*	100	m j ⁻¹
Porosité	0,35	0,35	0,30	
Dispersivité longitudinale	8	0,1	10	m
Dispersivité transversale	0,8	-	0,2	m
Coefficient de retard	1,0	1,0	1,86	
Coefficient de dégradation	0,0026	0,004	0,00076	j ⁻¹

¹ Cette étude

² Banton et al. (1992)

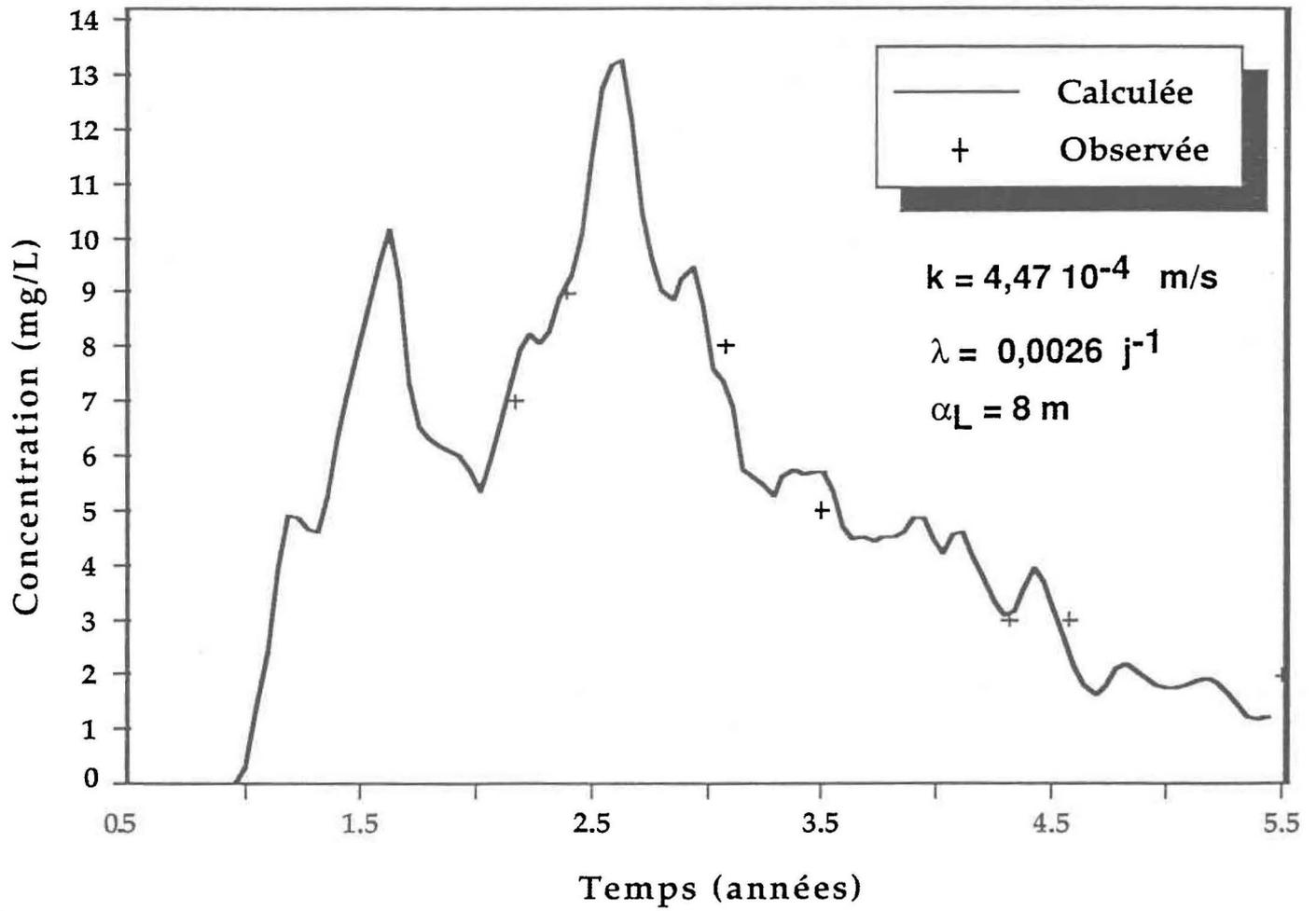
³ Dean et al. (1989b)

* Les valeurs entre parenthèses indiquent les vitesses de Darcy.

Les concentrations d'aldicarbe dans le puits obtenus après calibration sont présentés à la figure 15. On remarque sur cette figure une bonne concordance des résultats du modèle avec les valeurs expérimentales. Cette expérience de calibration confirme donc que les variations des trois paramètres étudiés (conductivité hydraulique, dispersivités et dégradation) influent beaucoup sur l'allure de la courbe de fuite de l'aldicarbe au puits considéré.

Une analyse de sensibilité du modèle a été réalisée. Celle-ci consiste à faire varier chacun de ces trois paramètres un à la fois, et ce à partir des valeurs optimales obtenues par calibration ($K = 4,47 \times 10^{-4} \text{ ms}^{-1}$, $\alpha_L = 8,0 \text{ m}$, $\lambda = 2,6 \times 10^{-3} \text{ j}^{-1}$). Cette

Figure 15. Courbe de fuite stochastique des concentrations au puits après calibration du modèle

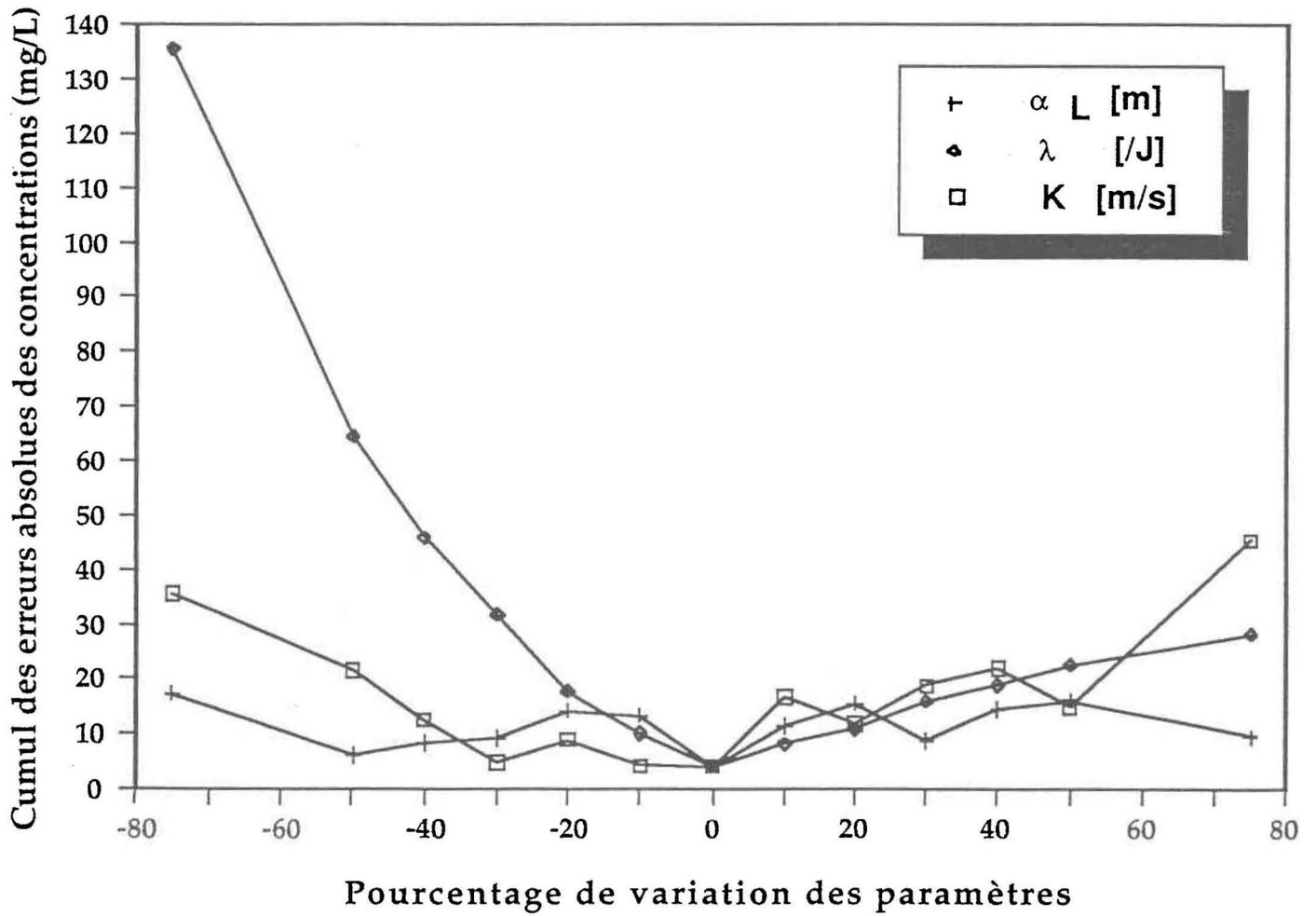


variation s'effectue sur un intervalle de $\pm 75 \%$ autour de la valeur calibrée de chaque paramètre. Les résultats de cette analyse de sensibilité sont présentés à la figure 16 et montrent l'influence de la dispersivité longitudinale, de la dégradation et de la conductivité hydraulique sur le cumul des erreurs absolues des concentrations calculées et mesurées au puits.

Pour les paramètres de dégradation et de conductivité hydraulique, le modèle a réagi d'une façon plus au moins similaire par rapport aux variations positives et de façon très différente en ce qui concerne les variations négatives. Dans l'intervalle de variation considéré, la réponse du modèle à la variation du coefficient de dégradation est plus importante que celle engendrée par la variation de la conductivité hydraulique, elle-même plus grande que celle résultant de la variation de la dispersivité. L'utilisation d'un taux de variation de 75% sur le coefficient de conductivité hydraulique est considérée comme insuffisante car dans la réalité cette variation peut atteindre plusieurs ordres de grandeur. En fait, nous n'avons considéré un intervalle de variation de 75% que pour faire une comparaison des paramètres étudiés sur une même plage de variation. Le modèle est sensible aux variations appliquées, et leur influence n'est pas masquée ou atténuée par le phénomène aléatoire de la méthode de marche au hasard.

Par ailleurs, pour un nombre de degrés de liberté de 5 (8 données expérimentales - 3 paramètres), l'analyse de sensibilité montre que le fait de négliger des paramètres de dispersivité dans la modélisation du transfert des contaminants diffus dans le milieu saturé peut être justifié, malgré qu'il s'agit d'une propriété intrinsèque du milieu indépendante du type de pollution (ponctuelle ou diffuse). Ceci est d'autant plus valable que la modélisation se fait au sein d'une région entièrement affectée par une source de pollution diffuse. D'autre part, l'hypothèse statuant que le phénomène de distribution spatiale de ces sources est suffisant pour représenter le phénomène de dispersion naturelle semble appropriée si l'étude se fait sur une base stochastique.

Figure 16. Sensibilité du modèle aux variations des paramètres de simulation



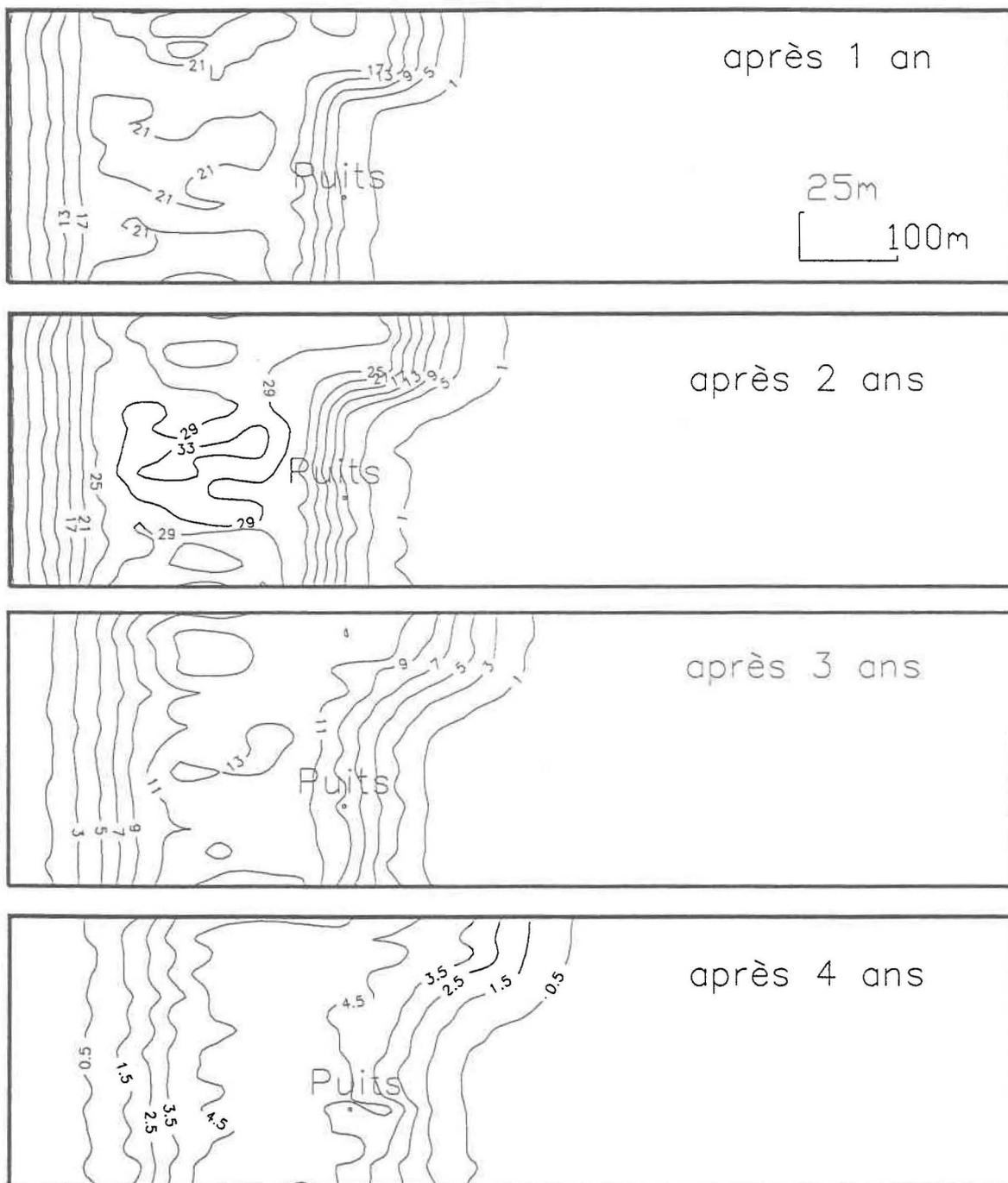
L'évolution annuelle des concentrations d'aldicarbe dans la nappe sur une période de 4 ans est présentée à la figure 17. Le déplacement et la forme de cette enclave de contamination, ainsi que l'effet de dilution ou de dégradation du pesticide sont très visibles au cours du temps. Ceci permet une cartographie de la vulnérabilité de la nappe à la contamination. On remarque que le déplacement du front d'aldicarbe est nettement visible durant la première année et devient beaucoup moins net les années suivantes, et ce à cause de la combinaison de l'effet de la dispersion et de la dégradation. Les concentrations maximales dans la nappe sont de 29 µg/L durant la première année; elles passent à 37 µg/L la deuxième année (augmentation due à la deuxième application du pesticide) et chutent à 17 µg/L la troisième année, atteignant 6 µg/L la quatrième année.

5.4 Délimitation du périmètre de protection d'un puits

Par définition, la zone de protection des puits de pompage s'étend généralement en dehors de l'aire influencée par le captage des eaux (Javandel et Tsang, 1986; Bair et al., 1991; McElwee, 1991). Le périmètre de protection d'un puits est la limite externe d'une zone de captage correspondant à la ligne de partage des eaux autour de ce puits, dans le cas où on ne considère pas l'effet de la dégradation et de la dispersion hydrodynamique. Dans le cas sans dégradation, on représente généralement les zones de captage à l'aide d'isochrones (courbes de même temps de parcours).

Le périmètre de protection est influencé par plusieurs paramètres dont les principaux sont (Lallemand-Barres et Roux, 1989) les propriétés hydrogéologiques de l'aquifère, la profondeur et les caractéristiques des puits, le débit et le temps de pompage, le type de contaminant (persistance et atténuation dans le milieu) et finalement les mécanismes auto-épurgateurs du milieu. Grenier (1986) et Lallemand-Barres et Roux

Figure 17. Concentrations ($\mu\text{g/L}$) d'aldicarbe dans le domaine



(1989) ont défini trois notions du périmètre de protection: le périmètre de protection immédiat qui sert à protéger le puits et l'infrastructure d'exhaure, et les périmètres de protection rapprochés et éloignés qui, en plus du but de protéger le puits et son infrastructure, servent aussi à protéger la nappe souterraine environnante contre la pollution. Le périmètre de protection rapproché d'un puits captant un aquifère d'une nappe libre est présenté à la figure 18 et est donné par Grenier (1986):

$$r = \sqrt{\frac{Q}{\pi i_f} \left(1 - e^{-\frac{r}{b^n}}\right)} \quad (32)$$

où

i_f est le taux d'infiltration annuel (LT^{-1})

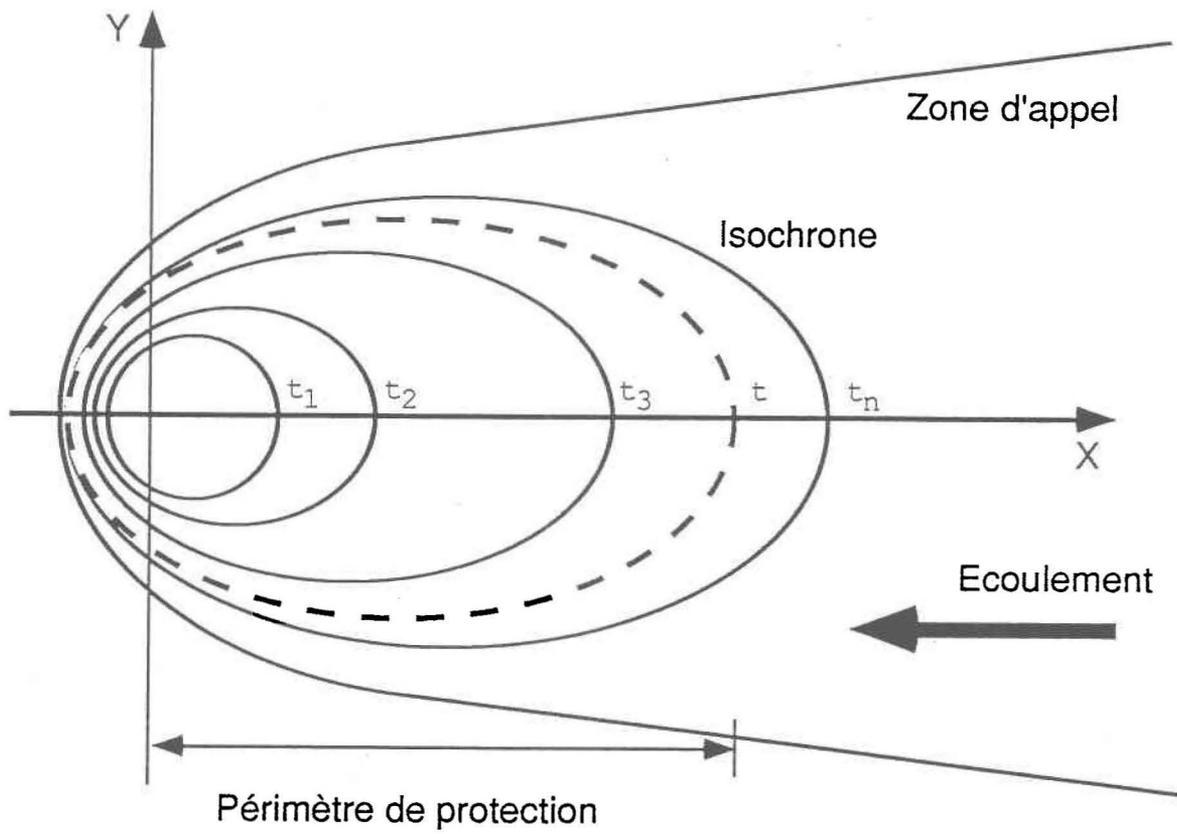
Le modèle STOPEST permet de déterminer ce périmètre pour un pesticide donné. Pour ce faire, nous avons adopté la technique de Shafer (1987) qui consiste à inverser le gradient hydraulique développé dans le milieu, à inverser le sens des pompages-injections et à introduire un ensemble de particules dans le puits étudié. Ces particules sont alors déplacées au cours du temps et on détermine l'enveloppe du nuage après le temps de transfert (T) égal à:

$$T = -\frac{1}{\lambda} \text{Ln}\left(\frac{C_{norm}}{C_{max}}\right) \quad (33)$$

où

C_{norm} est la norme admissible de concentration du pesticide considéré au puits (ML^{-3});

Figure 18. Illustration du périmètre de protection d'un captage d'eau

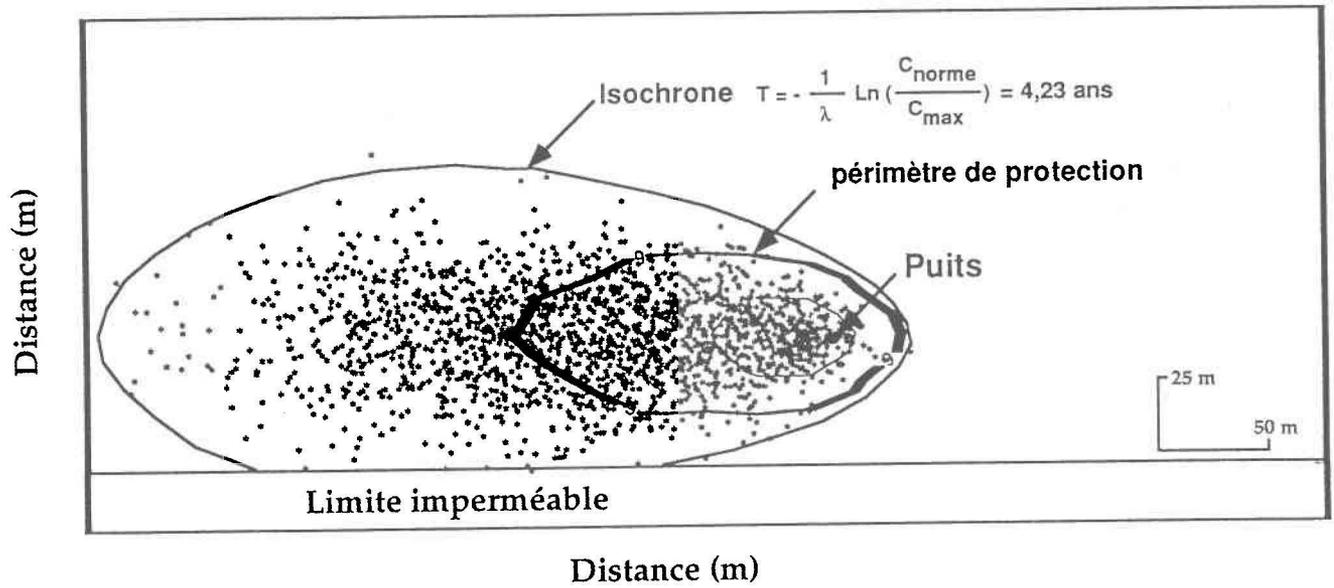


C_{\max} est la concentration maximale du pesticide arrivant à la nappe (ML^{-3}).

En considérant la norme de $9 \mu\text{g/L}$ fixée par SBSC et une concentration maximale d'aldicarbe de $0,5 \text{ mg/L}$ arrivant à la nappe et un taux de dégradation de $0,0026 \text{ j}^{-1}$, l'isochrone $T = 4,23$ ans, donné par l'équation [33], correspond à l'enveloppe externe du nuage de particules présenté à la figure 19. Cette figure montre également le périmètre de protection correspondant à la courbe d'isoconcentration $9 \mu\text{g/L}$ (norme qu'il faut respecter au puits). Dans les conditions envisagées, la distance maximale qu'il faut respecter entre le puits et le champ d'application de l'aldicarbe est d'environ 155 m . Cette distance est non seulement supérieure à celle estimée à 100 m par Banton *et al.* (1992) pour ce même site (cette différence est imputée aux valeurs différentes des paramètres utilisés (voir tableau 3) et/ou aux différentes méthodes considérées), mais également supérieure à celle estimée par Jones (1986) en Floride (50 m) et à celle imposée par la législation 001 du MENVIQ (30 m). Cependant, elle est très faible par rapport à celle imposée au Wisconsin ($1,67 \text{ km}$). On peut remarquer aussi que ce périmètre de protection est supérieur à celui de $19,3 \text{ m}$ calculé par l'équation [31] obtenu pour un taux d'infiltration annuel i de 300 mm et un temps de transit t de $4,23$ ans (temps de séjour de l'aldicarbe dans le milieu).

Il découle donc des résultats de cette modélisation que la recommandation du fabricant du pesticide aldicarbe, qui préconise de ne pas appliquer au Canada le composé aldicarbe à moins de 150 mètres d'une source d'eau potable, semble sécuritaire pour les puits de la région étudiée. La modélisation mathématique permet ainsi de délimiter un périmètre de protection et de déterminer les risques de contamination d'un puits par un pesticide spécifique.

Figure 19. Détermination du périmètre de protection du puits



CHAPITRE 6. CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS

Cette étude permet de dégager les principales conclusions suivantes:

- Le premier objectif de notre recherche était de développer un modèle stochastique de transfert horizontal des pesticides dans les eaux souterraines. On a ainsi montré que dans le cas d'un régime d'écoulement permanent uniforme, l'utilisation de l'approche lagrangienne, simulant de façon aléatoire le phénomène de dispersion par la marche au hasard des particules, est adaptée à la simulation du transport des pesticides dans les eaux souterraines. Il en découle, compte tenu de la précision recherchée et de l'équipement informatique disponible, que la méthode de marche au hasard, qui a été jusqu'à présent appliquée aux contaminants de sources ponctuelles, peut être adaptée favorablement aux transferts de contaminants de sources diffuses. Ceci a été rendu possible grâce à l'utilisation du principe de la convolution qui permet un gain important en temps CPU et en espace mémoire. En considérant ce principe, une distribution aléatoire d'une vingtaine de particules par maille et par pas d'injection semble suffisante pour une bonne précision de résultats. L'analyse des bilans de masse et la comparaison des résultats du modèle avec des solutions analytiques montrent que celui-ci est stable, et que le problème de la dispersion numérique, dont souffrent les modèles en différences finies et en éléments finis, semble être résolu par l'utilisation de la méthode de marche au hasard. Enfin, l'extension de cette méthode au transfert de contaminants diffus augmente son intérêt et son champ d'application dans le domaine de la modélisation.
- Le deuxième objectif fixé était d'envisager le couplage des deux modèles de transport en zones non saturée et saturée. La modélisation du transfert de pesticides

dans les eaux souterraines est réalisée grâce au couplage partiel considéré en régime d'écoulement permanent des modèles VULPEST et STOPEST. L'utilisation d'un tel couplage s'avère d'une grande utilité puisque d'une part, les deux modèles peuvent être indépendants et d'autre part, le bilan de masse global à l'interface de ces modèles peut être respecté. Ceci permet donc une manipulation plus facile des deux modèles, et ce en utilisant des procédures en batch d'exécution des programmes (simulations sur VAX/VMS ou sur petit système). A l'inverse des modèles qui utilisent un couplage parfait, tels que le modèle RUSTIC, le couplage partiel que nous avons adopté permet un gain appréciable en temps CPU et en espace mémoire, et ainsi permet en s'associant à la marche au hasard une étude du transfert d'une contamination sur une grande échelle.

- Le troisième objectif était d'évaluer la vulnérabilité des eaux souterraines et des puits à la contamination par les pesticides et à déterminer les périmètres de protection de ces puits. Le modèle stochastique couplé, utilisant les méthodes de marche au hasard et de Monte Carlo respectivement pour le transport en zones saturée et non saturée, a été appliqué à un site ayant présenté une contamination des eaux souterraines. Cette application a montré l'intérêt d'un tel outil d'une part pour l'évaluation de la vulnérabilité des eaux souterraines et des puits et d'autre part, pour la détermination des périmètres de protection de ces derniers. La détermination de ce périmètre de protection est liée à la connaissance des caractéristiques physiques du milieu, des propriétés physico-chimiques du pesticide et finalement des normes de qualité de l'eau relatives au pesticide. Il apparaît que la modélisation numérique a pu permettre la prédiction de la distribution spatiale et temporelle des concentrations du pesticide dans les eaux souterraines et dans le puits ainsi que la délimitation du périmètre de protection de ce puits.

Les résultats obtenus sont intéressants et se révèlent plus significatifs que ceux des modèles déterministes, puisque la variabilité spatiale des paramètres peut être prise

en compte. Ces résultats peuvent être représentés sous forme de cartes à l'aide des courbes d'isoconcentration dans le domaine. Enfin, ce modèle peut être utilisé comme outil de gestion dans les programmes de contrôle et de protection de la qualité des eaux souterraines et pour la détermination des périmètres de protection des puits en zone agricole.

Par ailleurs, dans un contexte global, la comparaison des résultats du modèle avec les concentrations d'aldicarbe mesurées au puits montre l'existence d'incertitudes sur certains paramètres du modèle. Une étude de calibration a été réalisée afin de déterminer les paramètres optimaux qui ajustent le modèle aux données expérimentales. La méthode par essai-erreur a été utilisée pour cette fin et montre que la conductivité hydraulique et la dispersivité hydrodynamique sont les paramètres les plus incertains. Par contre, l'analyse de sensibilité montre que le modèle est sensible aux trois paramètres étudiés. Le coefficient de dégradation induit la plus grande sensibilité, suivi par la conductivité hydraulique puis finalement par la dispersivité hydrodynamique. De cette étude de calibration et d'analyse de sensibilité, il découle également, du fait du caractère diffus engendré par la contamination diffuse, que la connaissance des coefficients de dispersion n'est pas tout à fait indispensable à la modélisation de ce phénomène en zone saturée, surtout lorsqu'il s'agit de modélisations stochastiques.

Pour le peu d'informations hydrogéologiques dont on dispose, au moins dans la zone saturée, il serait d'un grand intérêt de faire suite à cette étude afin de recueillir plus de données et de procéder aussi à la validation du modèle STOPEST sur le terrain (d'autres sites de la région).

Étant donné que nous nous sommes restreint à un modèle de transport bidimensionnel avec un couplage en régime d'écoulement permanent, il semblerait opportun et profitable d'étendre cette méthode, dans les applications futures, aux cas tridimensionnels et avec considération d'un couplage en régime transitoire. Ceci

permettrait le suivi du transport des contaminants, notamment des pesticides, dans des situations naturelles plus complexes. Finalement, il est recommandé de tenir compte séparément du transport de chacun des produits de dégradation des composés.

BIBLIOGRAPHIE

- ACKERER, Ph. (1988). Random-Walk Method to Simulate Pollutant Transport in Alluvial Aquifers or Fractured Rocks, pp. 475-486. Groundwater Flow and Quality Modelling. In Proceeding of the NATO Advanced Research Workshop on Advances in Analytical and Numerical Groundwater Flow and Quality Modelling, Lisbon, Portugal. Series C: Mathematical and Physical Sciences, Vol. 24. Custodio, E., A. Gurgui et J.P.L. Ferreira [Eds.] (1988). 843p.
- ACKERER, Ph., R. MOSÉ, et K. SEMRA (1990). Natural Tracer Test Simulation by Stochastic Particle Tracking Method, pp. 595-604. Transport and Mass Exchange Processes in Sand and Gravel Aquifers: Field and Modelling Studies. In Proceedings of the International Conference and Workshop held in Ottawa, Canada, Volume 2, Moltyaner, G. [Eds.].
- AHLSTROM, S.W. et H.P. FOOTE (1976). Transport Modeling in the Environment Using the Discrete-Parcel-Random-Walk Approach. Proc. of the Conf. Env. Modeling Simulation, Ott. W., [Ed.], EPA 600/1-76-016., pp.833-837.
- AHLSTROM, S.W., H.P. FOOTE, R.C. ARNETT, C.R. COLE et R.J. SERNE (1977). Multicomponent Mass Transport Model: Theory and Numerical Implementation (Discrete-Parcel-Random-Walk Version). BNWL-2127. Battelle Pacific Northwest Laboratories. Richland, Washington.
- AMOOZEGAR-FARD, A., D.R. NIELSEN et A.W. WARRICK (1981). Soil Solute Concentration Distribution for Spatially Varying Pore Water Velocities and Apparent Diffusion Coefficients. Soil Sci. Soc. Am. J., Vol. 46, pp. 3-9.
- ANDRICEVIC, R. et E. FOULOULA-GEORGIU (1990). A Particle Tracking Method of Kinetically Adsorbing Solutes in Heterogeneous Porous Media. In Computational Methods in Subsurface Hydrology, pp. 429-435.

- Proceeding of the Eighth International Conference of Computational Methods in Water Resources, Venice, Italy. Gambolati, G.; A. Rinaldo; C.A. Brebbia; W.G. Gray et G.F. Pinder [Eds.], 575p.
- ATWOOD D.F. et J.D. DEAN (1985). Groundwater Quality Assessment Using Unsaturated and Saturated Zone Models. *Env. Eng. Proc. of the 1985 Speciality Conf. Publ.*, by ASCE, ISSN 0-87-262-468-4. pp. 112-119.
- AZEVEDO, J.L.T., F. DURST et J.C.F. PEREIRA (1988). Comparison of Strongly Implicit Procedures for the Solution of the Fluid Flow Equations in Finite Difference Form. *Applied Mathematical Modelling*, Vol. 12, No. 1, pp. 51-62.
- BABALOLA, O. (1978). Spatial Variability of Soil Water Properties in Tropical Soils of Nigeria. *Soil Science*, Vol. 126, No. 5, pp. 269-279.
- BAIR, E.S.; A.E. SPRINGER et G.S. ROADCAP (1991). Delineation of Traveltime-Related Capture Areas of Wells Using Analytical Flow Models and Particle-Tracking Analysis. *Ground Water*, Vol. 29, No.3, pp. 387-397
- BANTON, O., P. LAFRANCE et J.-P. VILLENEUVE (1989). Evaluation de la vulnérabilité des eaux souterraines à la contamination par les pesticides. Une application du logiciel VULPEST dans la région de Portneuf (Québec, Canada). *Water Pollution Research Journal of Canada*, Vol. 24, No. 1, pp. 163-177.
- BANTON, O., P. LAFRANCE et J.-P. VILLENEUVE (1992). Délimitation des périmètres de protection des puits de pompage en zone agricole à l'aide de la simulation mathématique. *Revue des Sciences de l'eau*, Vol. 5, No. 2, pp. 211-227.
- BEAR, J. et A. VERRUIJT (1987). *Modeling Groundwater Flow and Pollution. Theory and Applications of Transport in Porous Media*. Reidel Publishing Company, Dordrecht, Holland, 407 p.
- BEAUDOIN, C.E. (1982). Étude de la rémanence de pesticides retenus dans la nappe phréatique à Sainte-Catherine de Portneuf. Service de l'assainissement agricole. Rapport no. 880014 du Ministère de l'Environnement du Québec.

- Direction générale de l'amélioration et de la restauration du milieu aquatique, 31 p.
- BELJIN, M.S. (1985). A Program Package of Analytical Models for Solute Transport in Groundwater "SOLUTE". IGWMC Groundwater Modeling Softwares. Version: IBM-PC 1.0, Indianapolis, Indiana, 163 p.
- BOUCHARD, J.P. et P. LENCIONI (1983). Simulation du transport de polluant dans les nappes par un modèle à faible diffusion numérique. Relation of Groundwater Quantity and Quality, Proceeding of the Hamburg Symposium, IAHS. no 146, pp. 123-129.
- BOX, M.J., D. DAVIES et W.H. SWANN (1969). Non-Linear Optimization Techniques. Mathematical and Statistical Techniques for Industry. Monograph No. 5. Oliver & Boyd, 60p.
- BREBBIA, C.A. (1978). The Boundary Element Method for Engineers. Pentech Press Limited, Estover Road Plymouth, Devon, 189 p.
- CARSEL, R.F., C.N. SMITH, L.A. MULKEY, J.D. DEAN et P. JOWISE (1984). Users Manual for the Pesticide Root Zone Model (PRZM). Release 1. United States, Environmental Protection Agency, Athens, EPA-600/3-84-109, 216 p.
- DAGAN, G. (1982). Stochastic Modeling of Groundwater Flow by Unconditional and Conditional Probabilities. 1. Conditional Simulation and the Direct Problem. Water Res. Res., Vol. 18, No. 4, pp. 813-833.
- DAGAN, G. (1983). Stochastic Modeling of Solute Transport by Groundwater Flow: State of the Art. Relation of Groundwater Quantity and Quality, Proceeding of the Hamburg Symposium, IAHS. no 146, pp. 91-101.
- DAGAN, G. (1984). Solute Transport in Heterogeneous Porous Formations. J. Fluid Mech., Vol. 145, pp. 151-177.
- DEAN, J.D., P.S. HUYAKORN, A.S. DONIGIAN, Jr., K.A. VOOS, R.W. SCHANZ, Y.J. MEEKS et R.F. CARSEL (1989a). Risk of Unsaturated/Saturated Transport and Transformation of chemical Concentrations (RUSTIC). Volume I: Theory and Code Verification. Environment Research Laboratory. Office

- of Research and Development, U.S. Environmental Protection Agency, Athens. EPA/600/3-89/048a, 203 p.
- DEAN, J.D., K.A. VOOS et S. AL-HASSAN (1989b). Model for Simulating the Effects of Management Practices on Pesticide Concentrations in Groundwater. *Schriften. Ver., Wasser-,Boden-Lufthyg*, Vol. 79, pp. 527-580.
- De MARSILY, G. (1981). *Hydrogéologie quantitative*. Collection sciences de la terre, ed. Masson, 215p.
- De MARSILY, G. (1986). *Quantitative Hydrology*. Chapter 10, Academic Press.
- DHATT, G. et G. TOUZOT (1984). *Une présentation de la méthode des éléments finis*. 2ème édition. Maloine, Paris, au Presses de l'Université Laval, Québec, 543 p.
- EL-KADI, A.I. (1984). *Modeling Variability in Groundwater Flow*. IGWMC, Holcomb Research Institute, Butler University, Indianapolis, Publication No. GWMI 84-10, Institute No. 31, 56 p.
- FRANK, R. (1986). *Rural Water Quality and Pesticides*. *Highlights*, Vol. 9, No. 3, pp. 20-25.
- FRANK, R., B.D. RIPLEY, H.E. BRAUN, B.S. CLEGG, R. JOHNSTON et T.J. O'NEILL (1987a). *Survey of Farm Wells for Pesticides Residues, Southern Ontario, Canada, 1981-1982, 1984*. *Arch. Environ. Toxicol.*, Vol. 16, pp. 1-8.
- FRANK, R., B.S. CLEGG, B.D. RIPLEY et H.E. BRAUN (1987b). *Investigations of Pesticides Contaminations in Rural Wells, 1979-1984, Ontario, Canada*. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.*, Vol. 16, pp. 9-22.
- FRANKE, O.L., T.E. REILLY et G.D. BENNETT (1987). *Definition of Boundary and Initial Conditions in the Analysis of Saturated Ground-Water Flow Systems: An Introduction*. *Techniques of Water-Resources Investigations of the U. S. Geol. Survey*, Chapter B5, Book 3, 15p.
- FREEZE, R.A. (1971). *Three-Dimensional, Transient, Saturated-Unsaturated Flow in a Groundwater Basin*. *Water Res. Res.*, Vol. 7, No. 2, pp. 347-366.

- FREEZE, R.A. et J.A. CHERRY (1979). Groundwater. Prentice-Hall, Inc., Englewood Cliffs, N.J. 07632, ISBN 0-13-365312-9, 604p.
- GALEATI, G. et G. GAMBOLATI (1989). Boundary Conditions and Point Sources in the Finite Element Integration of the Transport Equation. Water Res. Res., Vol. 25, No. 5, pp. 847-856.
- GELHAR, L.W., A.L. GUTJAHR et R.L. NAFF (1979). Stochastic Analysis of Macrodispersion in Stratified Aquifer, Water Res. Res., Vol. 15, No. 6, pp. 1387-1397.
- GENG, Q.Z. (1988). Modélisation conjointe du cycle de l'eau et du transfert des nitrates dans un système hydrologique. Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 225p.
- GOBLET, P. (1981). Modélisation des transferts de masse et d'énergie en aquifère. Thèse de doctorat, École Nationale Supérieure des Mines de Paris, Université Pierre et Marie Curie Paris VI, 202 p.
- GOODE, D.J. (1990). Particle Velocity Interpolation in Block-Centred Finite Difference Groundwater Flow Models. Water Res. Res., Vol. 26, No. 5, pp. 925-940.
- GRENIER, C. (1986). Guide pour la détermination de périmètres de protection autour des captages d'eau souterraine. Rapport non publié. Ministère de l'Environnement de Québec.
- GUPTA, S.K. (1982). Multi-Dimensional Finite-Element Code for the Analysis of Coupled Fluid Energy, and Solute Transport (CFEST). Pacific Northwest Lab., Richland, WA (USA), 93p.
- HALLBERG, G.R. (1989). Pesticide Pollution of Groundwater in the Humid United States. Agriculture, Ecosystems and Environment, Special Issue: Effects of Agriculture on Groundwater, Vol. 26, Nos. 3-4, pp. 299-367.
- HARKIN, J.M., F.A. JONES, R.N. FATHULLA, E.K. DZANTOR et D.G. KROLL (1985). Fate of Aldicarb in Wisconsin Ground Water. In: Evaluation of Pesticides in Ground Water, ACS Symposium Series 315, édité par Garner,

- W.Y., R.C. Honeycutt et H.N. Nigg, 1986, pp. 219-255.
- HOEKSEMA, R.J. et P.K. KITANIDIS (1985). Analysis of the Spatial Structure of Properties of Selected Aquifers. *Water Res. Res.*, Vol. 21, No. 4, pp. 563-572.
- HUYAKORN, P.S. et G.F. PINDER (1983). *Computational Methods in Subsurface Flow*. Academic Press, Inc., Orlando, Florida 32887, 473 p.
- HUYAKORN, P.S., M.J. UNGS, L.A. MULKEY et E.A. SUDICKY (1987). A Three-Dimensional Analytical Method for Predicting Leachate migration. *Ground Water*, Vol. 25, No. 5, pp. 588-598.
- ISABEL, D. (1988). *Modélisation stochastique des pesticides dans la zone vadose*. Thèse de doctorat, INRS-Eau, Québec, 107p.
- JAVANDEL, I. et C.-F. TSANG (1986). Capture-Zone Type Curves: A Tool for Aquifer Cleanup. *Ground Water*, Vol. 24, No. 5, pp. 616-625.
- JONES, R.L. (1986). Field, Laboratory, and Modeling Studies on the Degradation and Transport of Aldicarb Residues in Soil and Groundwater. In: *Evaluation of Pesticides in Ground Water*, ACS Symposium Series 315, Garner, W.Y., R.C. Honeycutt et H.N. Nigg, 1986 [Edis.]; PP. 195-218
- JONES, R.L., A.G. HORNSBY, P.S.C. RAO et M.P. ANDERSON (1987). Movement and degradation of aldicarb residues in the saturated zone under citrus groves on Florida Ridge. *Contaminant Hydrology*, Vol. 1, pp. 265-285.
- KINZELBACH, W. (1986). *Groundwater Modelling: An Introduction with Sample Programs in Basic*. *Developments in Water Science*, Vol. 25, Elsevier, 333p.
- KINZELBACH, W. (1988). The Random Walk Method in Pollutant Transport Simulation, pp. 227-245. In: *Groundwater Flow and Quality Modelling*. *Proceeding of the NATO Advanced Research Workshop on Advances in Analytical and Numerical Groundwater Flow and Quality Modelling*, Lisbon, Portugal. Series C: *Mathematical and Physical Sciences*, Vol. 224. Custodio, E., A. Gurgui et J.P.L. Ferreira [Eds.] (1988). 843p.
- KINZELBACH, W. et P. ACKERER (1986). Modélisation de la propagation d'un contaminant dans un champ d'écoulement transitoire. *Hydrogéologie*, no. 2,

pp. 197-206.

- KINZELBACH, W. et G. UFFINK (1989). The Random Walk Method and Extensions in Groundwater Modelling. Dans: NATO, Advanced Study Institute on Transport Processes in Porous Media, Washington State University, Pullman, Washington, USA, 24 p.
- KONIKOW, L.F. et J.D. BREDEHOEFT (1978). Computer Model of Two-Dimensional Solute Transport and Dispersion in Groundwater, U.S.G.S. Techniques of Water Resources Investigations, Chapter C2, Book 7, 90 p.
- KONIKOW, L.F. et D.B. GROVE (1977). Derivation of Equations Describing Solute Transport in Groundwater. U.S. Geological Survey. Water-Resources Investigations 77-19, pp. 1-30.
- LALLEMAND-BARRES, A. et J.C. ROUX (1989). Guide méthodologique d'établissement des périmètres de protection des captages d'eau souterraine destinée à la consommation humaine. Bureau de recherches géologiques et minières. Manuels et méthodes no. 19. 221 p.
- LEISTRA, M et J.J.T.I. BOESTEN (1989). Pesticide Contamination of Groundwater in Western Europe. Agriculture, Ecosystems and Environment, Special Issue: Effects of Agriculture on Groundwater, Vol. 26, Nos. 3-4, pp. 369-389.
- LEONARD, R.A., W.G. KNISEL et D.A. STILL (1987). GLEAMS: Groundwater Loading Effects of Agricultural Management Systems. Transactions of the ASAE, Vol. 30, No. 5, pp. 1403-1418.
- LIGGETT, J.A. et P.L-F. LIU (1983). The Boundary Integral Equation Method for Porous Media Flow. Ed. George Allen & Unwin Ltd, London, 255 p.
- LINDSTROM, F.T. et W.T. PIVER (1985). A Mathematical Model for the Transport and Fate of Organic Chemicals in Unsaturated/Saturated Soils. Environmental Health Perspectives, Vol. 60, pp. 11-28.
- LIU, P.L-F et J.A. LIGGETT (1978). An Efficient Numerical Method of Two-Dimensional Steady Groundwater Problems. Water Res. Res., Vol. 14, No. 3, pp. 385-390.

- MACDONALD, M.G. et A.W. HARBAUGH (1984). A Modular Three-Dimensional Finite-Difference Ground-water Flow Model. U.S. Geol. Survey, Open-File Report 83-875.
- McELWEE, C.D. (1991). Capture Zone for Simple Aquifers. Computer Notes, Ground Water, Vol. 29, No. 4, pp. 587-590.
- Ministère de l'Environnement du Québec (1987). Evaluation des conséquences de l'utilisation de l'aldicarbe, campagne 1986. Direction des eaux souterraines et de consommation, rapport, No. 1330, 49p.
- MOREALE, A. et R. VAN BLADEL (1982). Migration de pesticides en colonne de sol: Description d'un modèle et solutions analytiques. Pédologie, XXXII, 2, pp. 135-161.
- MOUCHEL, J.M., M.Z. ZHANG, X. BOURRAIN et B. ANDRE (1990). Un modèle lagrangien de qualité. Application à l'Arc à l'aval d'Aix-en-Provence. La Houille blanche No. 3/4, pp. 181-186.
- MOYE, H.A. et C.J. MILES (1988). Aldicarb Contamination of Groundwater. Reviews of Environmental Contamination and Toxicology, Vol. 105, pp. 99-146.
- MULKEY, L.A., R.F. CARSEL et C.N. SMITH (1986). Models for Evaluation of Pesticides Risk to the Environment. In : Agricultural Nonpoint Source Pollution: Model Selection and Application. Developments in Environment Modelling 10. Giorgini, A. et F. Zingales [Eds.], pp. 383-397.
- NELDER, J.A. et R. MEAD (1965). A Simplex Method for Fonction Minimisation. Computer Journal, Vol. 7, pp. 308-313.
- NEUMAN, S.P. (1973). Calibration of Distributed Parameter Groundwater Flow Models Viewed as a Multiple-Objective Decision Process under Uncertainty. Water Res. Res., Vol. 9, pp. 1006-1020.
- PIERCE, R.C. et M.P. WONG (1988). Pesticides in Agricultural Waters: The Role of Water Quality Guidelines. Revue canadienne des ressources hydriques, Vol. 13, No. 3, pp. 33-49.

- PINDER, G.F. et J.D. BREDEHOEFT (1968). Application of Digital Computer for Aquifer Evaluation. *Water Res. Res.*, Vol. 4, No. 5, pp. 1069-1093.
- PINDER, G.F. (1988). An Overview of Groundwater Modelling, pp. 119-134. In *Groundwater Flow and Quality Modelling. Proceeding of the NATO Advanced Research Workshop on Advances in Analytical and Numerical Groundwater Flow and Quality Modelling*, Lisbon, Portugal. Series C: Mathematical and Physical Sciences, Vol. 224. Custodio, E., A. Gurgui et J.P.L. Ferreira [Eds.] (1988). 843p.
- PIONKE, H.B. et D.E. GLOTFELTY (1989). Nature and Extent of Groundwater Contamination by Pesticides in an Agricultural Watershed. *Water Res.*, Vol. 23, No. 8, pp. 1031-1037.
- POLLOCK, D.W. (1988). Semianalytical Computation of Path Lines for Finite-Difference Models. *Ground Water*, Vol. 26, No. 6, pp. 743-750.
- PRICKETT, T.A. T.G. NAYMIK et C.G. LONNQUIST (1981). A Random-Walk Solute Transport Model for Selected Groundwater Quality Evaluations. Illinois State Water Survey, Champaign, Bulletin 65, 101 p.
- REDDELL, D.L. et D.K. SUNADA (1970). Numerical Simulation of Dispersion in Groundwater Aquifers. *Colo. State Univ. Hydrol.*, Paper 41, 79p.
- ROULEAU, A. (1988). A Stochastic Particle Transport Model Based on Directional Statistics of Flow Through Fracture Networks, pp. 393-406. In *Groundwater Flow and Quality Modelling. Proceeding of the NATO Advanced Research Workshop on Advances in Analytical and Numerical Groundwater Flow and Quality Modelling*, Lisbon, Portugal. Series C: Mathematical and Physical Sciences, Vol. 224. Custodio, E., A. Gurgui et J.P.L. Ferreira [Eds.] (1988). 843p.
- ROSE, D.A. et J.B. PASSIOURA (1971). The Analysis of Experiments of Hydrodynamic Dispersion. *Soil Science*, Vol. 111, No. 4, pp. 252-257.
- SANTÉ ET BIEN ETRE SOCIAL DU CANADA (SBSC) (1987). *Recommandations pour la qualité de l'eau potable au Canada*, 20 p.

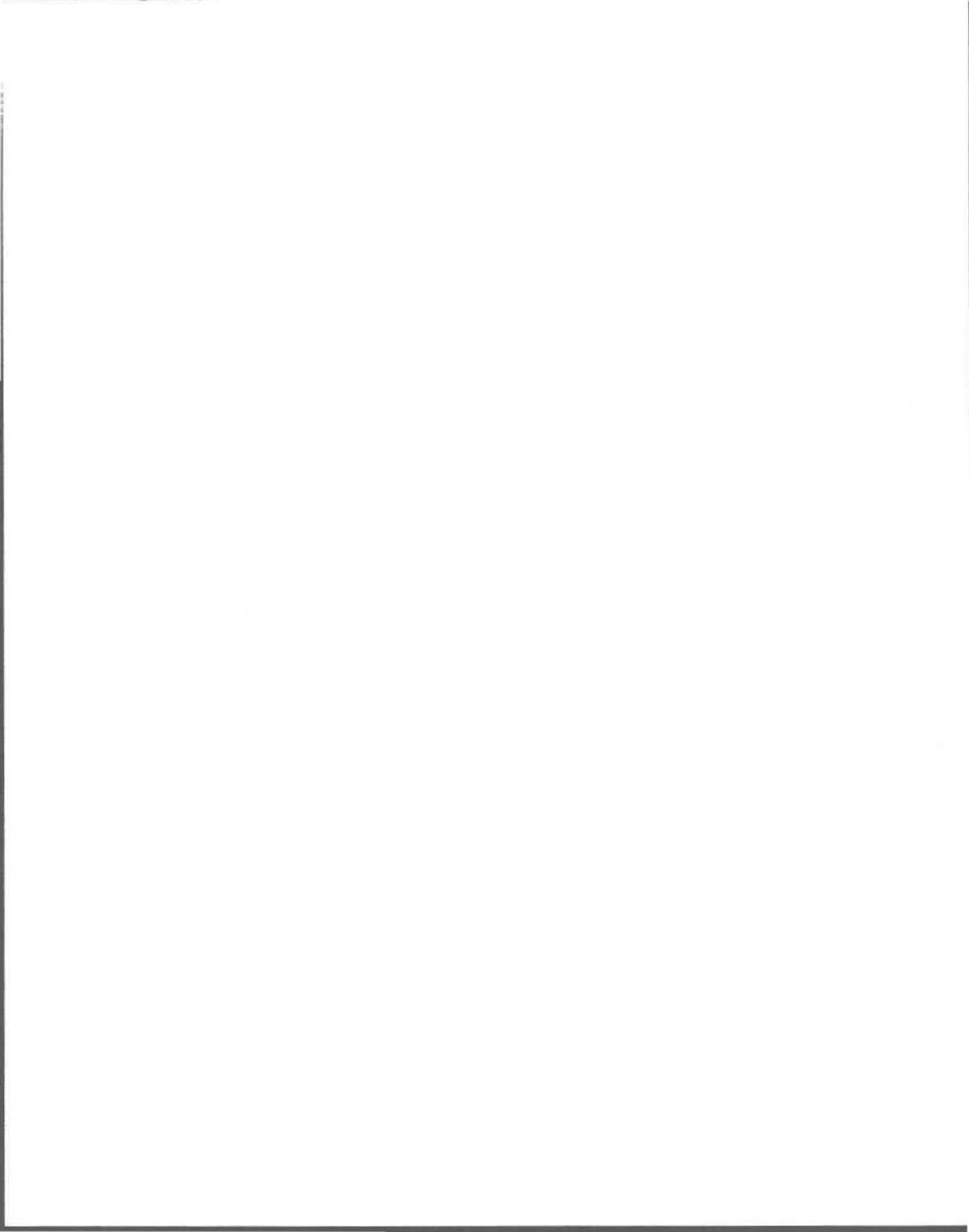
- SCHWARTZ, F.W. et A. CROWE (1980). A Deterministic-Probabilistic Model for Contaminant Transport: User Manual. Report no. B6693, NUREG/CR-1609 CGSEN85U060 GF, U.S. Department of Commerce, National Technical Information Service. 158 p.
- SHAFER, J.M. (1987). Reverse Pathline Calculation of Time-Related Capture Zones in Nonuniform Flow. *Ground Water*, Vol. 25, No. 3, pp. 283-289.
- SCHAFER-PERINI, A.L. et J.L. WILSON (1991). Efficient and Accurate Front Tracking for Two-Dimensional Groundwater Flow Models. *Water Res. Res.*, Vol. 27, No. 7, pp. 1471-1485.
- SMALL, M.J. et J.R. MULAR (1987). Long-Term Pollutant Degradation in the Unsaturated Zone with Stochastic Rainfall Infiltration. *Water Res. Res.*, Vol. 23, No. 12, pp. 2246-2256.
- SMITH, L. et F.W. SCHWARTZ (1980). Mass Transport, 1. A Stochastic Analysis of Macroscopic Dispersion. *Water Res. Res.*, Vol. 16, No. 2, pp. 303-313.
- SOREK, S. (1988). Eulerian-Lagrangian Method for Solving Transport in Aquifers, pp. 201-214. In *Groundwater Flow and Quality Modelling. Proceeding of the NATO Advanced Research Workshop on Advances in Analytical and Numerical Groundwater Flow and Quality Modelling, Lisbon, Portugal. Series C: Mathematical and Physical Sciences, Vol. 224. Custodio, E., A. Gurgui et J.P.L. Ferreira [Eds.] (1988). 843p. pp. 201-214*
- STONE, H.L. (1968). Iterative Solution of Implicit Approximations of Multidimensional Partial Differential Equations. *SIAM J. Numer. Anal.*, Vol. 5, No. 3, pp. 530-559.
- TIM, U.S. et S. MOSTAGHIMI (1989a). Model for Predicting Transport of Pesticides and their Metabolites in the Unsaturated Zone. *Water Resources Bulletin*, Vol. 27, No. 4, pp. 765-774.
- TIM, U.S. et S. MOSTAGHIMI (1989b). Modeling Transport of a Degradable Chemical and its Metabolites in the Unsaturated Zone. *Ground Water*. Vol. 27, No. 5, pp. 672-681

- TIM, U. et S. MOSTAGHIMI (1990). Computer-Based Approach for Assessing Groundwater Pollution Potential By Pesticides. Proceedings: Application of Geographic Information Systems, Simulation Models, and Knowledge-based Systems for Landuse Management. Virginia Polytechnic Institute and State University; Department of Agricultural Engineering. pp. 361-372.
- TOMPSON, A.F.B. and D.E. DOUGHERTY (1988). On the Use of Particle Tracking Methods for Solute Transport in Porous Media. In Computational Methods in Water Resources, Vol. 2, Numerical Methods for Transport and Hydrologic Process. Celia, M., L. Ferrand, C. Brebbia, w. Gray et G. Pinder [Eds.], Elsevier, pp. 227-232.
- TOMPSON, A.F.B. and D.E. DOUGHERTY (1990). Particle-Grid Methods for Reacting Flows in Porous Media: Application to Fisher's equation. In Computational Methods in Subsurface Hydrology, pp.393-398. Proceeding of the Eighth International Conference of Computational Methods in Water Resources, Venice, Italy. Gambolati, G.; A. Rinaldo; C.A. Brebbia; W.G. Gray et G.F. Pinder [Eds.], 575p.
- TOMPSON, A.F.B. et L.W. GELHAR (1990). Numerical Simulation of Solute Transport in Three-Dimensional Randomly Heterogeneous Porous Media. Water Res. Res., Vol. 26, No. 10, pp. 2541-2562.
- TOWNLEY, L.R. et J.L. WILSON (1985). Computationally Efficient Algorithms for Parameter Estimation and Uncertainty Propagation in Numerical Models of Groundwater Flow. Water Res. Res., Vol. 21, No. 12, pp. 1851-1860.
- TRESCOTT, P.C. (1975). Documentation of Finite-Difference Model for Simulation of Three-Dimensional Groundwater Flow: U.S. Geol. Survey. Open-File Report. 75-438, 32 p.
- TRESCOTT, P.C. et S.P. LARSON (1977). Solution of Three-Dimensional Groundwater Flow Equations using the Strongly Implicit Procedure. Journal of Hydrology, Vol. 35, pp. 49-60.

- TRESCOTT, P.C., G.F. PINDER et S.P. LARSON (1976). Finite-Difference Model for Aquifer Simulation in Two Dimensions with Results of Numerical Experiments. Chapter C1, Book 7. Techniques of Water-Resources Investigations, U. S. Geol. Survey, 116 p.
- UFFINK, G.J.M. (1983). A Random Walk Method for the Simulation of Macrodispersion in Stratified Aquifer. Relation of Groundwater Quantity and Quality, Proceeding of the Hamburg Symposium, IAHS. no 146, pp. 103-114.
- UFFINK, G.J.M. (1988). Modeling of Solute Transport with the Random Walk Method, pp. 247-265. In. Groundwater Flow and Quality Modelling. Proceeding of the NATO Advanced Research Workshop on Advances in Analytical and Numerical Groundwater Flow and Quality Modelling, Lisbon, Portugal. Series C: Mathematical and Physical Sciences, Vol. 224. Custodio, E., A. Gurgui et J.P.L. Ferreira [Eds.] (1988). 843p.
- VAN GENUCHTEN, M.Th. et P.J. WIERENGA (1976). Mass Transfer Studies in Sorbing Porous Media: I. Analytical Solutions. Soil Science Society of America Journal, Vol. 40, No. 4, pp. 473-480.
- VIGOUROUX, P. (1981). Conception d'un modèle de propagation de pollution en nappe aquifère. Exemple d'application à la nappe du Rhin. Thèse de Docteur-Ingénieur. Univ. des Sciences et Techniques de Languedoc. 87 p.
- VILLENEUVE, J.-P., O. BANTON et P. LAFRANCE (1990). A Probabilistic Approach for the Groundwater Vulnerability to Contamination by Pesticides: the Vulpest Model. Ecological Modelling, Vol. 51, pp. 47-58.
- VILLENEUVE, J.-P., O. BANTON, et P. LAFRANCE (1987). Développement d'un nouvel outil simple et adaptable pour l'évaluation de la vulnérabilité des eaux souterraines à la contamination par les pesticides. Synthèse. Rapport scientifique INRS-Eau no. 233a, 56p.
- VILLENEUVE, J.-P., P.G.C. CAMPBELL, D. ISABEL et L. WILSON (1985). Problématique de la contamination des eaux souterraines au Québec par les

- pesticides. INRS-Eau, rapport no. 188, 131 p.
- WAGENET, R.L. et J.L. HUTSON (1987). LEACHM: Leaching Estimation And Chemistry Model. A Process-Based Model of Water and Solute Movement, Transformations, Plant Uptake and Chemical Reactions in the Unsaturated Zone. Continuum, Water Resources Institute, Cornell University, Ithaca, New York, Vol. 2, 80 p.
- WALTON, W.C. (1989). Numerical Groundwater Modeling: Flow and Contaminant Migration. Lewis Publishers, Inc., NWWA, 272 P.
- WARTENBERG, D. (1988). Groundwater Contamination by Temik Aldicarb Pesticide: The First 8 Months. Water Res. Res., Vol. 24, No. 2, pp. 185-194.
- WEINSTEIN, H.G., H.L. STONE et T.V. KEAN (1969). Iterative Procedure for Solution of Systems of Parabolic and Elliptic Equations in Three Dimensions. Indus. Engineering Chemistry Fundamentals, Vol. 8, No. 2, pp. 281-287.
- YARON, B. (1989). General Principles of Pesticide Movement to Groundwater. Agriculture, Ecosystems and Environment, Special Issue: Effects of Agriculture on Groundwater, Vol. 26, Nos. 3-4, pp. 275-297.
- YEH, G.T. et J.P. GWO (1990). A Lagrangian-Eulerian approach to Modeling Multicomponent Reactive Transport. In Computational Methods in Subsurface Hydrology, pp. 419-427. Proceeding of the Eighth International Conference of Computational Methods in Water Resources, Venice, Italy. Gambolati, G.; A. Rinaldo; C.A. Brebbia; W.G. Gray et G.F. Pinder [Eds.], 575 p.
- ZIENKIEWICZ, O.C. (1977). The Finite Element Method, 3rd ed., McGraw-Hill, New-York, 787 p.

ANNEXES



ANNEXE A. PROCESSUS NATURELS RÉGISSANT LE TRANSFERT DE PESTICIDES DANS LES EAUX SOUTERRAINES.

Les processus qui influencent le comportement et le cheminement des pesticides dans les sols et les eaux souterraines sont de trois types: physiques, chimiques et biologiques.

A.1 Processus physiques.

Plusieurs recherches rapportent que l'advection et la dispersion sont les principaux processus physiques contrôlant le transport de polluants en zone saturée. Nous allons évoquer dans ce qui suit certains principes et mécanismes qui gouvernent ces processus.

A.1.1 L'advection.

Connue également sous le nom de convection (de Marsilly, 1981), c'est l'entraînement des substances dissoutes par le mouvement des fluides solvants (Gaillard et al., 1977; Goblet et al., 1978). Une fois atteint la zone saturée, les contaminants en solution sont déplacés par l'écoulement de l'eau souterraine de prédominance horizontale sur une échelle locale et régionale. Au voisinage immédiat des puits ou à proximité d'autres limites naturelles du milieu, les contaminants peuvent aussi se propager sous l'effet des composantes latérales et/ou verticales de l'écoulement. Les substances dissoutes conservatives tels les sels et certains composés organiques en faibles quantités se propagent avec la même vitesse que l'eau souterraine. Le flux de masse Φ_v entraîné par ce phénomène est décrit par (de Marsily, 1981):

- A2 -

$$\Phi_v = Cv \quad (A1)$$

où

C est la concentration du soluté (ML^{-3});

v est la vitesse moyenne de pore de l'eau (LT^{-1}).

Pour des substances non conservatives, l'expression ci-dessus devient en introduisant le facteur de retard R:

$$\Phi_v = C \frac{v}{R} \quad (A2)$$

A.1.2 La dispersion.

C'est un autre phénomène par lequel une substance polluante peut migrer dans les eaux souterraines. En se déplaçant, un polluant se dilue (effet du mélange) et s'étale pour occuper un volume plus grand avec une concentration corrélativement décroissante (effet de la dilution). Cet étalement du nuage de contamination est provoqué, d'une part, par le déplacement des molécules sous l'effet de la diffusion moléculaire et, d'autre part, par la dispersion hydrodynamique. La dispersion résultante peut se produire sur une échelle microscopique et macroscopique (Schwartz et Crowe, 1980).

La diffusion moléculaire est le résultat d'une agitation moléculaire (mouvement Brownien) provoquée par l'énergie cinétique des molécules, qui en présence d'un gradient de concentration produit un flux net de soluté vers des zones de faibles concentrations (Goblet et al., 1978; de Marsily, 1981). La dispersion

hydrodynamique (ou dispersion cinématique) est le résultat des fluctuations des vitesses de pores par rapport à la vitesse moyenne des eaux souterraines (Goblet et al., 1978; de Marsily, 1981; Brissaud, 1983). Ces variations de vitesse dans les pores sont dues au profil des vitesses de l'eau plus accentué au centre des pores que vers les parois, et à la complexité des parcours entre les grains, due à la forme, à la taille, à l'agencement des grains.

A l'échelle macroscopique, la dispersion est le résultat des variations spatiales des conductivités hydrauliques (Simmons, 1982a,b; Uffink, 1983; Van Roy, 1986), des hétérogénéités du milieu (Schwartz, 1977; Molinari et al., 1977; Smith et Schwartz, 1980; Simmons, 1982a; Brissaud, 1983; Davis, 1986) ainsi que par l'écoulement non permanent dû par exemple aux variations saisonnières de la recharge (Van Roy, 1986). Plusieurs auteurs (Gillham et Cherry, 1982; Bear et Verruijt, 1987; Neuman et al., 1987) rapportent que dans un régime d'écoulement de fortes vitesses la diffusion moléculaire peut être négligée devant la dispersion hydrodynamique. Bear et Verruijt (1987) rapportent que la diffusion moléculaire peut rendre irréversible le phénomène de dispersion hydrodynamique dans un écoulement purement laminaire, alors que Gillham et Cherry (1982) ajoutent que la dispersion est un processus irréversible pour des systèmes hétérogènes à l'échelle macroscopique. Ceci est également confirmé par Bear et Verruijt (1987) et Kinzelbach et Uffink (1989).

Le flux massique engendré par la dispersion Φ_D , incluant la diffusion, est donné par la loi de Fick (Goblet et al., 1978; de Marsily, 1981):

$$\Phi_D = -D \frac{\partial C}{\partial X_j} \quad (A3)$$

où le tenseur de dispersion D s'écrit dans la direction principale d'anisotropie

(Bear, 1972, de Marsily, 1986):

$$D = \begin{bmatrix} D_L & 0 & 0 \\ 0 & D_T & 0 \\ 0 & 0 & D_T \end{bmatrix} \quad (\text{A4})$$

avec

$$D_L = \alpha_L \mu + d_0 \quad \text{et} \quad D_T = \alpha_T \mu + d_0 \quad (\text{A5})$$

La détermination de la dispersion à l'échelle d'un aquifère constitue un problème majeur. Renault et al. (1975) ont indiqué que la dispersion dépend à la fois de la nature physique du milieu poreux (dimension des pores, porosité, dispersivité) et des propriétés hydrauliques des fluides (densité et viscosité du fluide, vitesse de Darcy et conductivité hydraulique) alors que la dispersivité est une caractéristique intrinsèque du milieu. Plusieurs auteurs ont souligné que les dispersivités mesurées sur le terrain sont d'ordre supérieur à celles obtenues en laboratoire (Renault et al., 1975; Schwartz, 1977). Cette augmentation de la dispersivité sur le terrain est expliquée par l'influence des hétérogénéités et par la variation des propriétés hydrauliques (conductivité hydraulique surtout) du milieu qui sont accentuées par l'effet d'échelle (Gelhar et al., 1979; Matheron et de Marsily, 1980; Brissaud, 1983; Roberts et al., 1985). Des études stochastiques (Gelhar et al., 1979; Dagan, 1983) ou déterministes (Matheron et de Marsily, 1980) indiquent que le phénomène de dispersion peut très bien ne pas obéir à la loi de Fick dans certaines conditions et que la dispersivité longitudinale augmente d'une façon non linéaire avec la distance (ou le temps) de parcours jusqu'à une valeur

limite asymptotique (Dieulin, 1980; Dieulin et al. 1981; Goblet, 1981; Dagan, 1983; Uffink, 1983). Une étude plus élaborée sur le terrain au site de Borden confirme cette augmentation des dispersivités avec la distance de parcours (Sudicky et al., 1983). Ces auteurs ont attribué cette augmentation aux hétérogénéités locales du milieu (la dispersivité longitudinale a augmenté de 0,01 m à 0,08m sur 11 m de distance et de 0,005 m à 0,03m pour la dispersivité transversale). Freyberg (1986) a remarqué que la dispersivité transversale diminue avec le temps.

Brissaud (1983) ajoute que l'évaluation expérimentale des propriétés dispersives d'un milieu poreux est fonction de la localisation des mesures ainsi que du procédé de mesure lui même et que l'échelle de l'écoulement de la parcelle expérimentale doit être suffisamment grande par rapport à celle des hétérogénéités locales. A cause de l'effet d'échelle sur la dispersivité, certains chercheurs suggèrent l'utilisation de coefficients de dispersivité plus grands pour caractériser le transport sur des échelles régionales. Au contraire, Smith et Schwartz (1980) concluent que l'utilisation de coefficients de dispersion plus grands ne reflètent pas réellement le processus physique. Ils ajoutent que les dispersivités obtenues en colonne au laboratoire ne peuvent être intégrées aux études de transport de polluants dans le sol qu'après une analyse statistique de la variabilité spatiale de la conductivité hydraulique. Klotz et al. (1980) et Moltyaner (1986) ont par contre remarqué que les données de dispersivité obtenues en laboratoire peuvent être du même ordre de grandeur que celles mesurées sur le terrain. Certains auteurs ont imputé les différences notées aux procédés de mesures tel que montré par Brissaud (1983) ou à la fréquence d'échantillonnage tel qu'indiqué par Leland et Hillel (1982) ou à l'effet d'échelle et aux hétérogénéités (Gelhar et al., 1979, Sudicky et al., 1983, etc.).

A.2 Processus chimiques

A.2.1 L'adsorption.

La phase solide du sol est responsable de la rétention et de l'immobilisation de divers composés en solution. Ainsi, l'adsorption d'un soluté sur un solide est un phénomène d'interface. La surface des solides est constituée généralement d'atomes ou d'ions dont les liaisons ne sont pas complètement saturées. Il en résulte l'existence de surfaces chargées électriquement développant des forces (de type Van der Waals par exemple), avec des substances libres en solution. Un soluté s'adsorbe facilement si son affinité par rapport à la phase solide est plus grande que celle par rapport à la phase aqueuse dans laquelle il se trouve (Roberts et al. 1985). L'adsorption peut être irréversible (chimisorption) ou réversible (physisorption). La chimisorption est fortement affectée par les cinétiques des réactions chimiques. Celles-ci sont généralement lentes et n'entraînent pas d'équilibre. La physisorption développe un équilibre chimique local dans lequel l'adsorption se fait d'une façon instantanée et réversible. Ce type d'adsorption est principalement responsable de la rétention des pesticides dans la zone saturée d'un aquifère. Houzim et al. (1986) évoquent que l'adsorption des pesticides sur les particules colloïdales du sol est affectée par les facteurs suivants: la composition chimique, la taille et la configuration des molécules du pesticide, leur acidité ou basicité (pK_a et pK_b), leur solubilité dans l'eau et la polarité des molécules. Plusieurs auteurs rapportent que l'adsorption des pesticides hydrophobes augmente avec la teneur en carbone organique du sol (matière organique) et en minéraux argileux (dans ce dernier cas, pour les pesticides chargés). D'autres études montrent que les substances humiques dissoutes affectent, par des réactions de complexation, la mobilité des substances hydrophobes en faibles concentrations dans le sol (Chiou et al. 1986, Lafrance et al. 1988, 1989). L'adsorption peut être également affectée par le pH et la

température.

Dans la zone saturée, l'influence de l'adsorption n'est pas aussi importante que dans la zone non-saturée, du faite d'une teneur en matière organique dans l'aquifère plus faible. Quand elle se produit, l'adsorption retarde le transport des pesticides avec un facteur retard (Freeze et Cherry, 1979):

$$R = \left(1 + \frac{\rho_b k_d}{n}\right) \quad (\text{A6})$$

où

ρ_b est la densité volumique du sol (ML^{-3});

k_d est le coefficient de partition du pesticide (L^3M^{-1});

n est la porosité efficace.

Le flux engendré par ce processus Φ_a est décrit, à l'équilibre, par le modèle non linéaire d'adsorption de Freundlich (Rao et Davidson, 1979):

$$\Phi_a = k_d C^n \quad (\text{A7})$$

D'après ces auteurs, la mobilité de certains pesticides est significativement plus grande en concentrations élevées, et leur isotherme d'adsorption est non linéaire. Toutefois, dans la plupart des cas, lorsque la concentration est faible, on admet que $n=1$ et l'on obtient un isotherme d'adsorption linéaire (Davidson et al. 1968, Davidson et Chang, 1972) décrit par la relation:

- A8 -

$$\Phi_a = k_d C \quad (A8)$$

avec

$$k_d = k_{oc} f_{oc} \quad (A9)$$

où

f_{oc} fraction du carbone organique du sol;

k_{oc} est le coefficient de partition du carbone organique (L^3M^{-1}).

A.2.2 L'hydrolyse.

La vitesse à laquelle les pesticides subissent des transformations dépend des propriétés chimiques du composé. Pour divers composés, l'hydrolyse peut être la voie principale de transformation dans l'environnement (Armstrong et Konorad, 1974; Wolfe et al., 1989). Naturellement, les réactions d'hydrolyse peuvent être déclenchées par voie biotique ou abiotique (Wolfe et al., 1989). Dans les réactions d'hydrolyse par voie microbiologique, le taux d'hydrolyse est proportionnel à la concentration de la biomasse microbienne et/ou à celle des enzymes spécifiques présentes dans le milieu. Dans les réactions d'hydrolyse chimique sans interaction microbiologique, le taux d'hydrolyse peut être influencé par des paramètres chimiques tels que l'ion H^+ (pH) et la température (Harkin et al., 1986, Jones, 1986; Wolfe et al., 1989), ainsi que par la matière organique ou inorganique (ions métalliques) dissoute. Dans ce contexte, Jones et al. (1987) et Priddle et al. (1987, 1988) rapportent que l'hydrolyse de l'aldicarbe en produits

non toxiques peut être inhibée à faible température et en milieu légèrement acide (pH = 5 à 6). Il en découle que les eaux souterraines dans le nord de l'Amérique du Nord sont plus vulnérables à cause de la nature acide du sol et des températures faibles. Ces auteurs ajoutent également que le type de sol, le carbone organique et le contenu en eau sont d'autres facteurs qui peuvent influencer l'hydrolyse. Certains auteurs ont montré que la texture du sol (sable, limon et argile) joue un rôle significatif dans l'hydrolyse des composés organiques. Ainsi, par exemple, une proportion d'argile plus grande entraîne un taux d'hydrolyse plus grand.

L'hydrolyse constitue le processus majeur par lequel les pesticides se dégradent dans la zone saturée selon une cinétique de premier ordre. Le flux de concentration engendré par l'hydrolyse Φ_h peut être décrit mathématiquement par une relation du type:

$$\Phi_h = -\lambda_h C \quad (\text{A10})$$

où λ_h est le coefficient de dégradation par hydrolyse (T^{-1}).

A.3 Processus biologiques.

Les composés organiques peuvent être transformés par le biais d'une série de mécanismes biologiques et chimiques complexes. Dans la zone saturée, les effets et les interactions entre ces processus ne sont pas encore bien maîtrisés (Mackay *et al.*, 1986). D'après ces auteurs, une biotransformation de certains composés organiques en grande concentration peut exister à l'intérieur de l'aquifère. En ce qui concerne les pesticides, de fortes concentrations ne sont pas encore observées dans les eaux souterraines et la transformation biologique de ces composés n'est pas tout à fait évidente. Des résidus de pesticides parents sont fréquemment

observés dans des puits (Jones, 1986; Moye et Miles, 1988).

A ce stade des connaissances, il n'est pas encore possible de déterminer plus précisément les parts respectives des transformations chimiques et microbiologiques dans la disparition des pesticides. On admet généralement que, bien qu'il puisse exister une certaine population microbienne dans les aquifères (en présence limitée), la biodégradation y est faible. En effet, d'après Oudot et al. (1989), la biodégradation est limitée aux premiers trente centimètres du sol où le transfert naturel d'oxygène se fait d'une façon suffisante pour le développement d'une activité métabolique. Enfin, des études récentes de MacQuarrie et al. (1990) et MacQuarrie et Sudicky (1990), montrent que la biodégradation des composés organiques et leur migration dans les aquifères sont largement contrôlées par la disponibilité de l'oxygène dissous. Ces auteurs mentionnent également que l'adsorption affecte la biodégradation puisque les composés adsorbés ne sont pas disponibles pour le métabolisme d'une population microbienne. Le flux de dégradation microbologique Φ_m peut être représenté par la relation suivante:

$$\Phi_m = \lambda_m C \quad (\text{A11})$$

où λ_m est le coefficient de biodégradation (T^{-1})

Le taux total de dégradation devient en combinant l'équation A10 et A11:

$$\Phi_G = \Phi_h + \Phi_m = \lambda C \quad (\text{A12})$$

A.4 Bibliographie

- ARMSTRONG, D.E. et J.G. KONORAD (1974). Nonbiological Degradation of Pesticides. In. Pesticides in Soil and Water, Guenzi, w.d. et al. [Eds.], Soil Science Society of America, Inc. Publisher, Madison, Wisconsin, pp. 123-131.
- BEAR, J. (1972). Dynamics of Fluids in Porous Media. American Elsevier Publ. Co., Envir. Sci. Series, New York, 764 p.
- BEAR, J. et A. VERRUIJT (1987). Modeling Groundwater Flow and Pollution. Theory and Applications of Transport in Porous Media. Reidel Publishing Company, Dordrecht, Holland. 407 p.
- BRISSAUD, F. (1983). Transport de polluants et effets d'échelle. Relation of Groundwater Quantity and Quality, Proceeding of the Hamburg Symposium, IAHS. no 146, pp. 131-143.
- CHIOU, C.T., R.L. MALCOLM, T.I. BRINTON et D.E. KILE (1986). Water Solubility Enhancement of some Organic Pollutants and Pesticides by Dissolved Humic and Fulvic Acids. Environmental Science and Technology, Vol. 20, pp.502-508.
- DAGAN, G. (1983). Stochastic Modelling of Solute Transport by Groundwater Flow: State of the Art. Relation of Groundwater Quantity and Quality, Proceeding of the Hamburg Symposium, IAHS. no 146, pp. 91-101.
- DAVIDSON, J.M, C.E. RIECK et P.W. SANTELMANN (1968). Influence of Water Flux and Porous Material on the Movement of Selected Herbicides. Soil Sci. Soc. Am. Proc., Vol 32, No. 5, pp. 629-633.
- DAVIDSON, J.M. et R.K. CHANG (1972). Transport of Picloram in Relation to Soil Physical Conditions and Pore-Water Velocity. Soil Sci. Soc. Am. Proc., Vol 36, pp. 257-261.
- DAVIS, A.D. (1986). Deterministic Modeling of Dispersion in Heterogeneous Permeable Media. Ground Water, Vol. 24, No. 5, pp. 609-615.
- De MARSILY, G. (1986). Quantitative Hydrology. Chapter 10, Academic Press.
- De MARSILY, G. (1981). Hydrogéologie quantitative. Collection sciences de la terre,

Masson, Paris, 215p.

- DIEULIN, A., G. MATHERON et G. de MARSILY (1981). Growth of the Dispersion Coefficient with the Mean Travelled Distance in Porous Media. Quality of Groundwater, International Symposium, Noordwijkerhout, the Netherlands. van Duijvenbooden, W., P. Glasbergen et H. van Lelyveld [Eds.], Vol. 17, pp. 887-896.
- DIEULIN, A. (1980). Propagation de pollution dans un aquifère alluvial. L'effet de parcours. Thèse de doctorat, École des Mines de Paris-Université Paris VI, Paris.
- FREEZE, A.R. et J.A. CHERRY (1979). Groundwater. Prentice-Hall, Inc., Englewood Cliffs, 604 p.
- FREYBERG, D.L. (1986). A Natural Gradient Experiment on Solute Transport in a Sand Aquifer, 2. Spatial Moments and the Advection and Dispersion of Nonreactive Tracers. Water Res. Res., Vol. 22, no. 13, pp. 2031-2046.
- GAILLARD, B., D. ROUSSELOT et J.P. SAUTY (1977). Application d'une méthode économique de détermination sur le terrain des paramètres de dispersion , traçage en écoulement radial convergent expérimentation et interprétation. Proc. of the Symposium on Hydrodynamic Diffusion and dispersion in Porous Media, IAHR, pp. 337-363.
- GELHAR, L.W., A.L. GUTJAHR and R.L. NAFF (1979). Stochastic Analysis of Macrodispersion in Stratified Aquifer, Water Res. Res., Vol. 15, No. 6, pp. 1387-1397.
- GILLHAM, R.W. et J.A. CHERRY (1982). Contaminant Migration in Saturated Unconsolidated Geologic Deposits. Recent Trends in Hydrogeology. Ed. T.N. Narasimhan. Geological Society of America. Special Paper 189, pp. 31-62.
- GOBLET, P. (1981). Modélisation des transferts de masse et d'énergie en aquifère. Thèse de doctorat, École Nationale Supérieure des Mines de Paris, Université Pierre et Marie Curie, Paris, 202 p.
- GOBLET, P., E. LEDOUX et G. de MARSILY (1978). Etude des modalités de transfert des produits radioactifs dans l'environnement. Centre d'informatique

- géologique, École nationale supérieure des mines de Paris, 83 p.
- HARKIN, J.M., F.A. JONES, R.N. FATHULLA, E.K. DZANTOR et D.G. KROLL (1986). Fate of Aldicarb in Winsconsin Ground Water. In: Evaluation of Pesticides in Ground Water, ACS Symposium Series 315, Garner, W.Y., R.C. Honeycutt et H.N. Nigg, 1986 [Eds.], pp. 219-255.
- HOUZIM, V., J. VAVRA, J. FUKSA, V. PEKNY, J. VRBA et J. STIBRAIL (1986). Impact of Fertilizers and Pesticides on Groundwater Quality. Dans: Impact of Agricultural Activities on Groundwater. UNESCO, International Association of Hydrogeologists, IUGS, Castany, G., E. Groba et E. Romijn [Eds.], Vol. 5, 173 p.
- JONES, R.L. (1986). Field, Laboratory, and Modeling Studies on the Degradation and Transport of Aldicarb Residues in Soil and Ground Water. In: Evaluation of Pesticides in Ground Water, ACS Symposium Series 315, Garner, W.Y., R.C. Honeycutt et H.N. Nigg, [Eds.] (1986); pp. 195-218
- JONES, R.L., A.G. HORNSBY, P.S.C. RAO et M.P. ANDERSON (1987). Movement and degradation of aldicarb residues in the saturated zone under citrus groves on Florida Ridge. Contaminant Hydrology, Vol. 1, pp. 265-285.
- KINZELBACH, W. et G. UFFINK (1989). The Random Walk Method and Extensions in Groundwater Modelling. Dans: NATO, Advanced Study Institute on Transport Processes in Porous Media, Washington State University, Pullman, Washington, USA, 24 p.
- KLOTZ, D., K.-P. SEILER, H. MOSER et F. NEUMAIER (1980). Dispersivity and Velocity Relationship from Laboratory and Field Experiments. Hydrology, Vol. 45, pp. 169-184.
- LAFRANCE, P., L. AIT-SSI, O. BANTON, P.G.C CAMPBELL et J.-P. VILLENEUVE (1988). Sorption of the Pesticide Aldicarb by Soil: Its Mobility through a Saturated Medium in the Presence of Dissolved Organic Matter. Water Poll. Res. Journal of Canada, Vol. 23, No. 2, PP. 253-269.
- LAFRANCE, P., O. BANTON, P.G.C. CAMPBELL et J.P. VILLENEUVE (1989). Modeling Solute Transport in Soils in the Presence of Dissolved Humic

- Substances. *Science of Total Environment*, Vol. 86, pp. 207-221.
- LELAND, D.F. and D. HILLEL (1982). A Field Study of Solute Dispersion in a Shallow, Unconfined Aquifer. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, Vol. 46, No. 5, pp. 905-912.
- MACKAY, D.M., D.L. FREYBERG, P.V. ROBERTS et J.A. CHERRY (1986). A Natural Gradient Experiment on Solute Transport in a Sand Aquifer, 1. Approach and Overview of Plume Movement. *Water Res. Res.*, Vol. 22, No. 13, pp. 2017-2029.
- MACQUARRIE, K.T.B., E.A. SUDICKY et E.O. FRIND (1990). Simulation of Biodegradable Organic Contaminants in Groundwater. 1. Numerical Formulation in Principal Directions. *Water Res. Res.*, Vol. 26, No. 2, pp. 207-22.
- MACQUARRIE, K.T.B. et E.A. SUDICKY (1990). Simulation of Biodegradable Organic Contaminants in Groundwater. 2. Plume Behavior in Uniform and Random Flow Fields. *Water Res. Res.*, Vol. 26, No. 2, pp. 223-239.
- MATHERON, G. et G. DE MARSILY (1980). Is Transport in Porous Media Always Diffusive. A Counterexample. *Water Res. Res.*, Vol. 16, No. 5, pp. 901-917.
- MOLINARI, J, P. PEAUDECERF, B. GAILLARD et M. LAUNAY (1977). Essais conjoints en laboratoire et sur le terrain en vue d'une approche simplifiée de la prévision des propagations de substances miscibles dans les aquifères réels. *Proc. of the Symposium on Hydrodynamic Diffusion and dispersion in Porous Media*, IAHR, Pavia. Italy pp. 89-102.
- MOLTYANER, G.L. (1986). Stochastic versus Deterministic: A Case Study. *Hydrogéologie*, no. 2, pp. 183-196.
- MOYE, H.A. et C.J. MILES (1988). Aldicarb Contamination of Groundwater. *Reviews of Environmental Contamination and Toxicology*, Vol. 105, pp. 99-146.
- NEUMAN, S.P., C.L. WINTER et C.M. NEWMAN (1987). Stochastic Theory of Field-scale Fickian Dispersion in Anisotropic Porous Media. *Water Res. Res.*, Vol. 23, No. 3, pp. 453-466.
- OUDOT, J., A. AMBLES, S. BOURGEOIS, C. GATELLIER et N. SEBYERA (1989). Hydrocarbon Infiltration and Biodegradation in a Landfarming Experiment. *Environmental Pollution*, Vol. 59, pp. 17-40.

- PRIDDLE, N.W., R.E. JACKSON, K.S. NOVAKOWSKI, S. DENHOED, B.G. GRAHAM, R.J. PATTERSON, D. CHAPUT et D. JARDINE (1987). Migration and Fate of Aldicarb in the Sandstone Aquifer of Prince Edward Island. *Water Poll. Res. J. Canada*, Vol. 22, No. 1, pp. 173-185.
- PRIDDLE, N.W., R.E. JACKSON, A.S. CROWE et J.P. MUTCH (1988). Aldicarb and Nitrogen Residues in Sandstone Aquifer. Manuscript prepared for the National Water Well Association, Agricultural Impacts on Groundwater, Des Moines, Iowa.
- RAO, P.S.C. et J.M. DAVIDSON (1979). Adsorption and Movement of Selected Pesticides at High Concentrations in Soils. *Water Research*, Vol. 13, pp. 375-380.
- RENAULT, D., P. MUNTZER et L. ZILLIOX (1975). Propagation d'un front de pollution dans un aquifère: Contribution expérimentale à l'étude de la dispersion en milieu poreux stratifié. *L'Eau*, Vol. 70, No. 4, pp. 153-157.
- ROBERTS, P.V., M. REINHARD, G.D. HOPKINS and R.S. SUMMERS (1985). Advection-Dispersion-Sorption Models for Simulating the Transport of Organic Contaminants. C.H. Ward; W. Gigerd P.L. Mc Carty [Eds.], Wiley, pp. 425-445.
- SCHWARTZ, F.W. (1977). Macroscopic Dispersion in Porous Media: The Controlling Factors. *Water Res. Res.*, Vol. 13, No. 4, pp. 743-752.
- SCHWARTZ, F.W. et A. CROWE (1980). A Deterministic-Probabilistic Model for Contaminant Transport: User Manual. Report no. B6693, NUREG/CR-1609 CGSÉNR85U060 GF, U.S. Department of Commerce, National Technical Information Service. 158 p.
- SIMMONS, C.S. (1982a). A Stochastic-Convective Ensemble Method for Representing Dispersive Transport in Groundwater. Report no. CS-2558. Electric Power Research Institute, Palo Alto, CA.
- SIMMONS, C.S. (1982b). A Stochastic-Convective Transport. Representation of Dispersion in One-Dimensional Porous Media Systems. *Water Res. Res.*, Vol. 18, No. 4, pp. 1193-1214.
- SMITH, L. et F.W. SCHWARTZ (1980). Mass Transport, 1. A Stochastic Analysis of

- Macroscopic Dispersion. *Water Res. Res.*, Vol. 16, No. 2, pp. 303-313.
- SUDICKY, E.A., J.A. CHERRY et E.O. FRIND (1983). Migration of Contaminants in Groundwater at a Landfill: A Case Study. A Natural-Gradient Dispersion Test. *Hydrology*, Vol. 63, pp. 81-108.
- UFFINK, G.J.M. (1983). A Random Walk Method for the Simulation of Macrodispersion in Stratified Aquifer. Relation of Groundwater Quantity and Quality, Proceeding of the Hamburg Symposium, IAHS. no 146, pp. 103-114.
- VAN ROOY, D. (1986). Stochastic Modelling of a Contaminated Aquifer. The Unconditional Approach. *Nordic hydrology*, Vol. 17, pp. 315-324.
- WOLFE, N.L., M. EL-SAYED METWALLY et A.E. MOFTAH (1989). Hydrolytic Transformations of Organic Chemicals in the Environment. In: *Reactions and Movement of Organic Chemicals in Soils*, SSSA Special Publication Number 22. Sawhney, B.L. et K. Brown [Eds.], 1989 , pp. 229-242.

ANNEXE B: FONCTIONS DES SOUS-PROGRAMMES DU MODELE
STOPEST

Le modèle de transport STOPEST est constitué par deux programmes: un programme de calcul du champ d'écoulement et un programme de calcul du transfert de masse.

B.1 Cas de l'écoulement

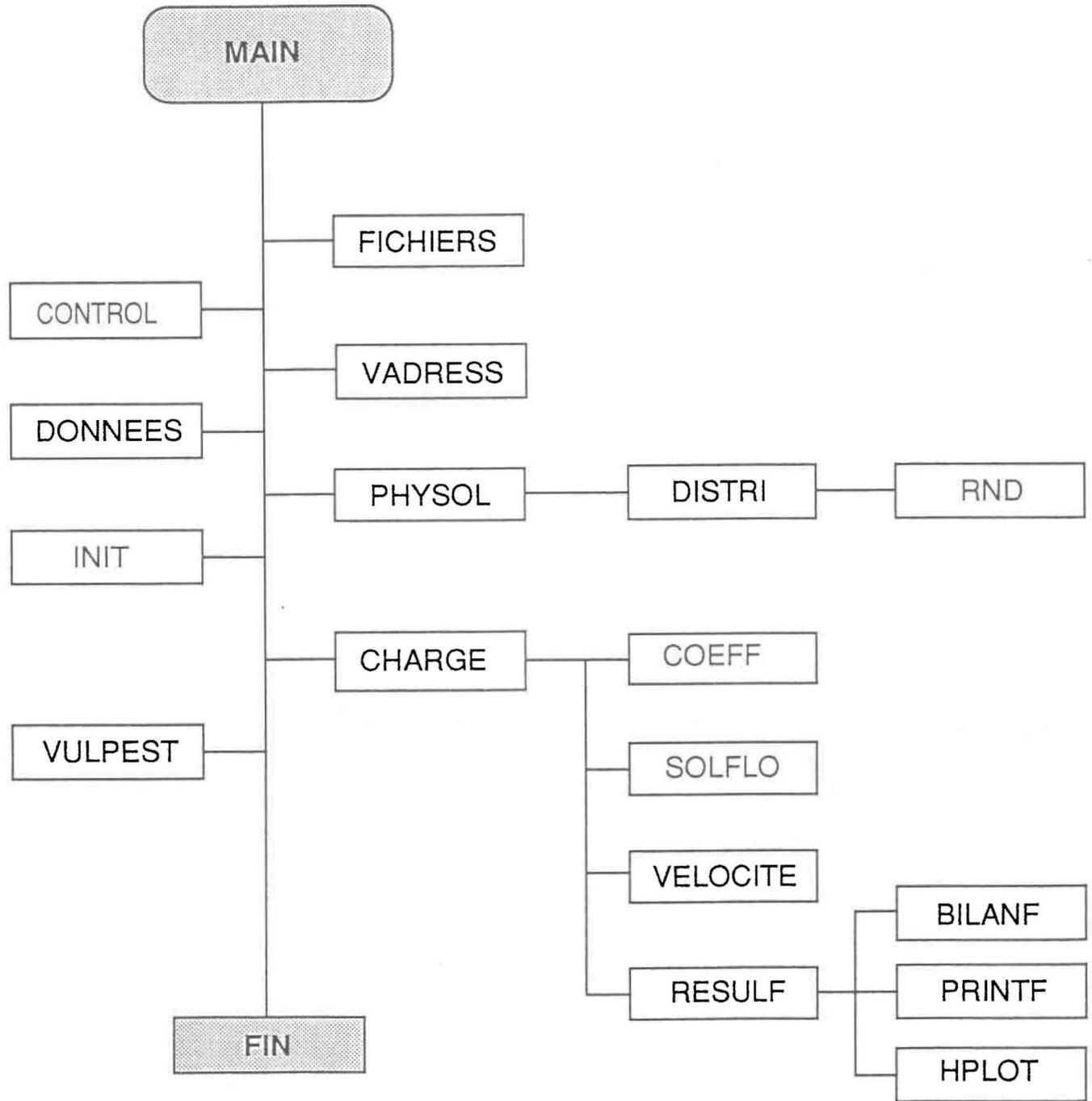
Le modèle d'écoulement est constitué par un programme principal STOPEST1 qui gère un ensemble de sous-programmes selon l'organigramme indiqué à la figure B1. Il comprend l'ensemble des blocs COMMON utilisés dans le modèle. Il réserve un espace mémoire de stockage des variables dans un vecteur W. Il appelle une série de sous-programmes. Le dimensionnement et l'adressage des variables sont calculés dans le sous programme VADRESS. Ceux-ci, ainsi que les paramètres du problème sont transférés aux différents sous-programmes via les arguments ou via les blocs COMMON.

Les fonctions de chacun des sous-programmes indiqués dans la Figure B1 sont les suivantes:

1-Sous-programme FICHER: On y déclare les unités d'entrée-sortie du programme. Celles-ci sont transférées par un bloc COMMON.

2- Sous-programme CONTROL: Il charge et imprime l'ensemble des cartes et paramètres de contrôle utilisés dans le calcul de l'écoulement et du transport à partir d'un fichier appelé CONTROL.DAT.

Figure B1. Organigramme du modèle d'écoulement (régime permanent)



3- Sous-programme VADRESS: Il calcule la position des pointeurs des différentes variables dans le vecteur W. Si dans un problème, le vecteur W nécessite un espace mémoire plus grand l'exécution du programme s'arrête et un message indiquant le manque d'espace et la dimension atteinte apparaît sur l'écran ou dans le fichier de sortie des résultats. Toutes les variables sont dimensionnées et stockées d'une façon séquentielle dans le vecteur W.

4- Sous-programme DONNEES: permet la lecture et l'impression des données du problème. Les données d'entrée sont lues à partir d'un fichier .DAT indiqué dans le fichier CONTROL.DAT et leur impression est obtenue dans le fichier CHARGE.OUT.

5- Sous-programme PHYSOL: Il permet de calculer les propriétés physiques et hydrauliques du milieu. Ainsi, chaque maille est définie par certains paramètres tels que la densité apparente, la porosité, la teneur en matière organique, le coefficient de distribution, le coefficient de dégradation, la conductivité hydraulique, l'épaisseur de la nappe, la pente et la base (par rapport à un référentiel). A chacun de ces paramètres est attribué une moyenne et un écart type issus d'une distribution statistique choisie par l'utilisateur. Les distributions statistiques utilisées sont celles fournies par le sous-programme DISTRI du programme VULPEST (distributions uniformes, normales, log-normales et asymétriques (loi bêta) ou valeurs discrètes).

6- Sous-programme INIT: Il introduit les conditions initiales et aux limites des charges hydrauliques aux noeuds correspondants, puis imprime la matrice des charges initiales globales.

7- Sous-programme INFILTRA: Il charge le vecteur de flux d'eau alimentant la nappe et qui est fourni par VULPEST.

8- Sous-programme CHARGE: Il appelle les différents modules de calcul du champ d'écoulement (voir Figure B1) et sauvegarde les résultats des principales variables hydrauliques (ex. conductivité hydraulique, transmissivité, vitesses aux noeuds et aux frontières des mailles) dans un fichier non formaté pour fin d'utilisation par le modèle de transport.

9- Sous-programme COEFF: Il détermine les coefficients de transmissivité aux noeuds et aux faces des mailles de la grille d'écoulement en utilisant la moyenne harmonique. Lorsqu'un noeud est sec un message apparaît sur l'écran. Pour l'utilisation des solutions numériques de résolution des équations différentielles d'écoulement, le milieu poreux doit être subdivisé en mailles centrées de forme carré ou rectangulaire. Chacune de ces mailles est caractérisée par ses propriétés physiques et hydrauliques. Ces propriétés sont caractérisées par des valeurs discrètes pour chaque maille et affectées aux noeuds. $T_{i+1,j}$, $T_{i-1,j}$, $T_{i,j+1}$ et $T_{i,j-1}$ désignent les transmissivités respectivement à l'est, à l'ouest, au nord et au sud d'une maille de transmissivité $T_{i,j}$. La transmissivité T_E à l'interface Est peut être calculée par la moyenne harmonique (Trescott, 1975; Appel, 1976; Resnauer, 1982):

$$T_E = \frac{T_j T_{j+1} (dx_j + dx_{j+1})}{dx_j T_{i+1} + dx_{i+1} T_i} \quad (B1)$$

Pour une nappe phréatique ayant une épaisseur variable en fonction de la charge hydraulique, ces transmissivités sont calculées (ou ajustées) dans le programme après chaque itération de calcul de la charge hydraulique. Notons aussi que cette formulation tient compte des contrastes des hétérogénéités et de la variation des pas de discrétisation spatiale.

10- Sous-programme ITERAT: Il détermine une séquence de valeurs du paramètre d'itération comprises entre 0 et 1, et utilisées pour accélérer la convergence lors de la résolution des équations algébriques d'écoulement par le sous-programme SOLFLO. D'après Stone (1968), le choix de la valeur minimale 0 du paramètre d'itération n'est pas critique et celui de la valeur maximale est donnée par (Trescott et Larson, 1977):

$$1 - W_{\max} = \pi^2 \min \left[\frac{1}{2J^2(1+\epsilon_1)}, \frac{1}{2I^2(1+\epsilon_2)}, \frac{1}{2K^2(1+\epsilon_3)} \right] \quad (\text{B2})$$

D'après Trescott et Larson (1977), 4 à 10 valeurs par cycle sont nécessaires. Ces valeurs sont comprises entre 0 et W_{\max} selon l'équation suivante:

$$W_{l+1} = 1 - (1 - W_{\max})^{\frac{l}{L-1}} \quad l=0,1,\dots,L-1 \quad (\text{B3})$$

avec L est le nombre de valeurs du paramètre d'itération dans un cycle.

11- Sous-programme SOLFLO: Il résout, en chaque noeud, le système d'équations algébriques issu de l'équation de l'écoulement:

$$Bh_{i-1} + Dh_{j-1} + Eh + Fh_{j+1} + Hh_{i+1} = Q \quad (\text{B4})$$

où

$$B = \frac{T_O}{dx DX_O} \quad (B5)$$

$$D = \frac{T_N}{dy DY_N}$$

$$F = \frac{T_S}{dy DY_S}$$

$$H = \frac{T_E}{dx DX_E}$$

$$E = -(B + D + F + H + \frac{S^*}{dt})$$

$$DX_O = \frac{dX_{j-1} + dX_j}{2} \quad et \quad DY_N = \frac{dY_{i-1} + dY_i}{2}$$

$$DX_E = \frac{dX_j + dX_{j+1}}{2} \quad et \quad DY_S = \frac{dY_i + dY_{i+1}}{2}$$

$$Q = -S^* \frac{h^*}{dt} + bW$$

avec W le terme source englobant les échanges du système aquifère avec le milieu extérieur (pompage, recharge par précipitation ou injection d'eau et flux d'eau imposés aux frontières)

Cette équation peut être mise sous la forme matricielle suivante:

$$[A] \{h\} = \{Q\} \quad (B6)$$

ou encore sous forme itérative:

$$[A+B] \{h\}^n = \{Q\} + [B] \{h\}^{n-1} \quad (B7)$$

Par soustraction du terme $[A] \{h\}^{n-1}$ de part et d'autre de l'équation précédente, on aura une équation sous forme résiduelle

$$[A+B] \{\chi\} = \{R\}^{n-1} \quad (B8)$$

dans laquelle

$$\{\chi\}^n = \{h\}^n - \{h\}^{n-1} \quad (B9)$$

$$\{R\}^{n-1} = \{Q\} - [A] \{h\}^{n-1}$$

La solution est obtenue en décomposant la matrice globale [A+B] en matrices inférieure [L] et supérieure [U] reliées par la relation suivante:

$$[A+B] = [L] [U] \quad (B10)$$

par la méthode itérative SIP (Strongly Implicit Procedure). L'algorithme utilisé est décrit plus en détail par Stone (1968) et Trescott et Larson (1977).

12- Sous-programme VELOCITE: Il calcule les vitesses au centre et aux interfaces des mailles à partir des charges hydrauliques et des transmissivités.

13- Sous-programme BILANF: Il calcule le bilan de masse global sur le système. Un inventaire des flux massiques entrant et sortant est imprimé ainsi que l'erreur sur le bilan.

14- Sous-programme PRINTF: Imprime les résultats des charges hydrauliques, vitesses, conductivités hydrauliques et transmissivités

15- Sous-programme HPLOT: crée un fichier ASCII .GRD avec les données de charges hydrauliques pour fin d'utilisation par le logiciel graphique Surfer.

N.B. Ceci est valable uniquement si la grille est régulière; c'est-à-dire dans le cas où il n'y a pas de variation des pas d'espace en X ou en Y. Dans le cas contraire il crée un fichier .DAT.

16- Sous-programme HYDRO: stocke les principaux résultats de l'écoulement dans un fichier non formaté pour fin d'utilisation par le programme de transport.

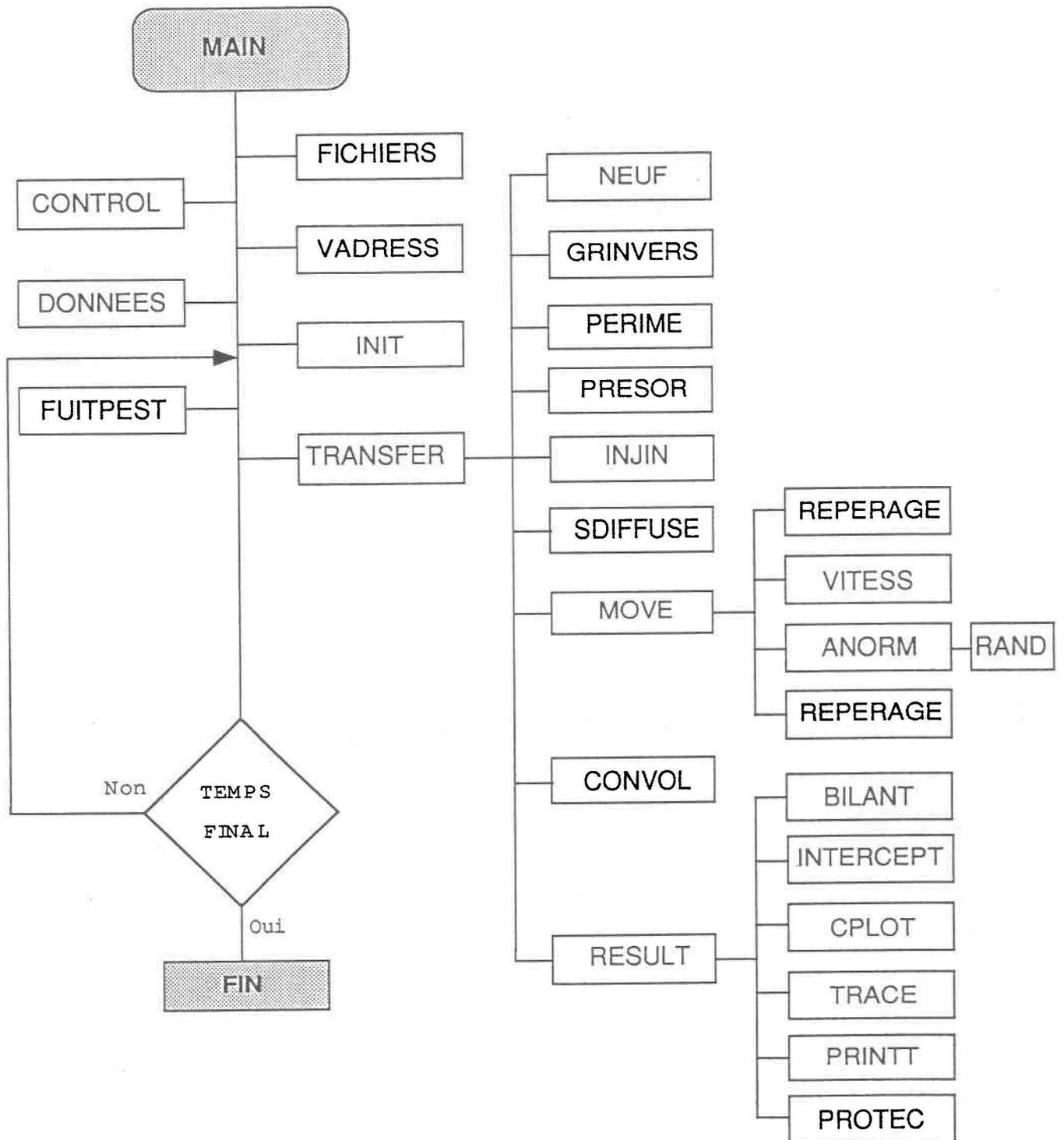
17- Sous-programme VULPEST: Le Modèle VULPEST est appelé par le modèle STOPEST1 pour construire la courbe de fuite stochastique d'arrivée à la nappe du pesticide.

B.2 Cas de transfert de masse

Les différents sous-programmes qui constituent le modèle de transport et leur disposition dans le calcul sont indiqués à la Figure B2. Les principales fonctions de ces sous-programmes sont les suivantes:

Programme principal STOPEST2: Il gère l'ensemble des sous-programmes. Comme pour le programme d'écoulement, ce programme principal appelle le sous-programme CONTROL pour la lecture des paramètres de contrôle du problème et détermine l'ensemble des blocs COMMON qui vont transférer l'information aux différents sous-programmes. Un espace mémoire de stockage des variables est réservé dans un vecteur W. Les dimensions et les adresses des variables dans le vecteur W sont déterminées dans le sous-programme VADRESS lesquelles vont être transférées aux différents sous-programmes via les arguments.

Figure B2. Organigramme du modèle de transfert de pesticides en zone saturée



N.B. Les sous-programmes FICHIERS, CONTROL, VADRESS et DONNEES sont les mêmes que ceux définis précédemment et utilisés par le programme d'écoulement STOPEST1.

1- Sous-programme INIT: Il génère les coefficients de distribution et de dégradation, et calcule le coefficient de retard. Il introduit les données des propriétés hydrauliques et de pesticides dans le programme de transport, fournies respectivement par les modèles STOPEST1 et VULPEST. Il initialise certaines variables, complète la dimension du vecteur W. Le compteur du nombre de particules est initialisé et les noeuds de Dirichlet sont identifiés dans la matrice MAT par la valeur 1. Ce sous-programme calcule en dernier lieu les coordonnées nodales en X et Y du domaine. Si un problème nécessite un espace mémoire plus grand l'exécution du programme s'arrête à ce niveau et un message indiquant le manque d'espace et la dimension actuelle du vecteur W apparaît sur l'écran et dans le fichier de sortie des résultats.

2- Sous-programme FUITPEST: Il charge les vecteurs correspondant aux flux d'eau et de pesticide arrivant à la nappe.

3- Sous-programme NEUF: Il réinitialise quelques variables après chaque pas de temps du calcul de transport.

4- Sous-programme GRDINVERS: Il inverse le gradient hydraulique en changeant le signe des charges hydrauliques, des vitesses et des flux d'injection ou de pompage. Ce sous programme est utilisé dans le calcul du périmètre de protection des puits.

5- Sous-programme PERIME: Il calcule les coordonnées des particules injectées dans un puits de rayon fixe pour la détermination du périmètre de protection de

ce puits.

6- Sous-programme PRESOR: Il calcule la masse et les coordonnées de chaque particule introduite par injection continue ou instantanée dans l'eau souterraine. Les coordonnées sont situées sur l'axe des X passant par le centre de la maille. Ainsi, chaque particule est identifiée et recensée et sa masse est notée. Dans le cas d'une injection à charge constante, les coordonnées des particules calculées au niveau du puits sont fixes afin d'y maintenir une concentration constante. Ceci est déterminé avec ou sans considération de la convolution.

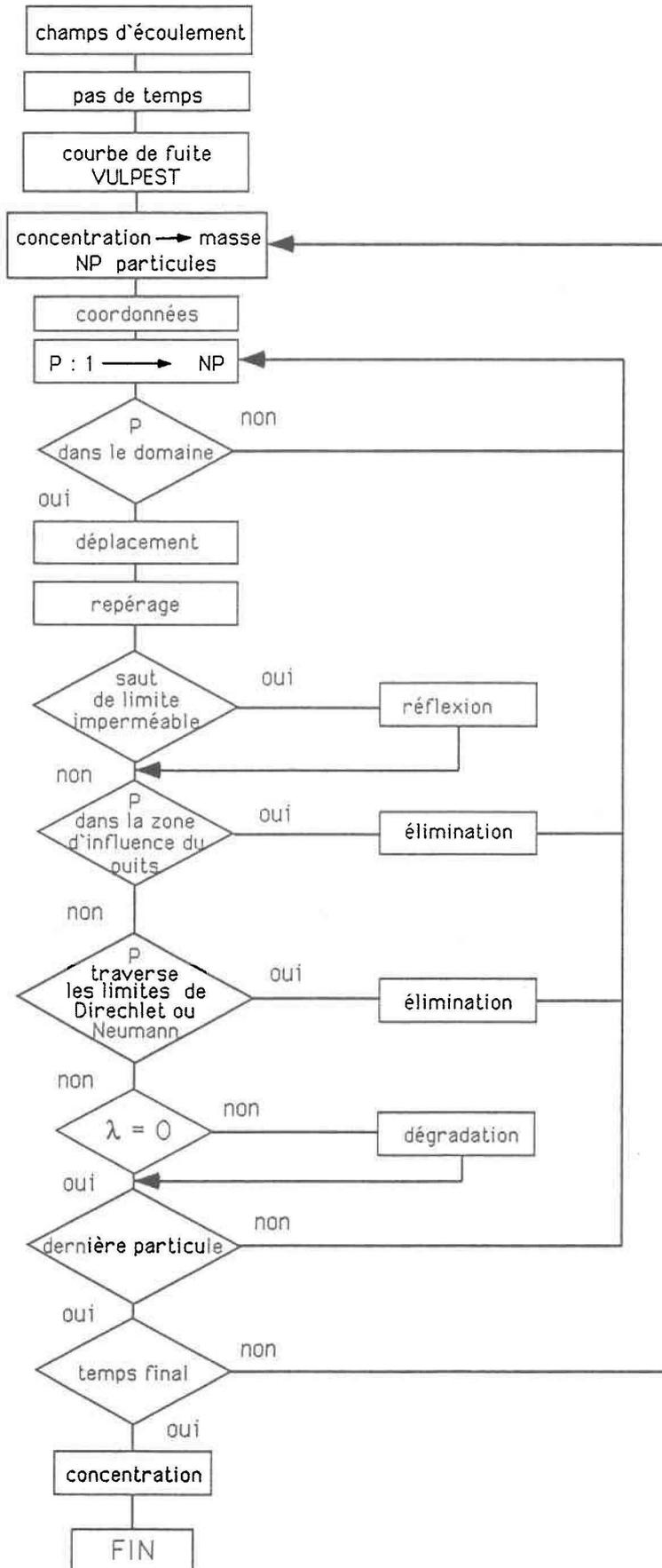
7- Sous-programme INJIN: Il calcule le nombre de particules qui quittent un puits, leur masse et leurs coordonnées dans le cas d'injection avec ou sans convolution.

8- Sous-programme SDIFFUSE: Il introduit d'une façon aléatoire les particules, issues des apports d'une source diffuse infiltrée dans l'eau souterraine, dans une maille et calcule leurs coordonnées et leurs masses. Ces données sont préparées pour un transport avec ou sans considération de la convolution.

9- Sous-programme MOVE: Il déplace les particules par marche au hasard avec ou sans convolution. La démarche suivie lors du déplacement aléatoire des particules est décrite dans l'organigramme de la Figure B3.

10- Sous-programme CONVOL: Il utilise le principe du produit de convolution dans le déplacement des particules. Ceci consiste à déplacer uniquement un ensemble de particules introduites au départ et à superposer leurs masses au cours du temps. Il identifie les particules qui sortent du domaine et tient compte de cette information au cours des pas de temps suivants en notant et accumulant leurs masses. Pour les particules qui restent dans le domaine, le sous-programme détermine dans quelle maille elles se trouvent, ajuste leurs masses après dégradation s'il y a lieu, accumule la masse au niveau de chaque maille, et

Figure B3. Ogranigramme d'une simulation de transfert de pesticides en régime d'écoulement permanent (méthode de déplacement aléatoire des particules)



finaleme nt note la quantité de masse dégradée.

11- Sous-programme VITESSE: Il calcule les vitesses des particules là où elles se trouvent par interpolation linéaire (Good, 1990) ou bilinéaire (Konikow et Bredehoeft, 1978).

12- Sous-programme ANORM: Il génère une distribution normale centrée et réduite entre les bornes -6 et +6 en utilisant la fonction RAND.

13- Fonction RAND: Elle génère un nombre aléatoire compris entre 0 et 1.

14- Sous-programme REPERAGE: Il détermine la maille dans laquelle se trouve chaque particule après son déplacement par un balayage du domaine et la vérification des coordonnées:

15- Sous-programme RESULT: Il calcule les concentrations aux puits et dans le domaine, appelle les sous-programmes d'impression des résultats et de bilan de masse.

16- Sous-programme TRACE: Il imprime le nombre de particules introduites dans une maille, la masse d'une particule, le nombre de particules totales dans le domaine, le nombre de particules totales sortant du domaine, le temps de simulation écoulé, le rayon d'influence du puits et la distribution des particules dans le domaine c'est-à-dire le nombre de particules se trouvant dans chaque maille au temps désiré.

17- Sous-programme INTERCEPT: Il imprime le nombre de particules interceptées par pompage du puits ou sortant au niveau des mailles sur une frontière, ainsi que les coordonnées de ces mailles.

18- Sous-programme BILANT: Il calcule le bilan de masse sur les concentrations dans l'ensemble du domaine

19- Sous-programme PRINTT: Il imprime l'essentiel des résultats de l'étude de transport.

20- Sous-programme CPLOT: Il prépare Un fichier ASCII de sortie des données de concentration (.DAT ou .GRD) pour fin d'utilisation par des logiciels graphiques (Lotus 123, Surfer, etc.)

N.B. Le fichier .GRD est obtenu uniquement si la grille est régulière; c'est-à-dire dans le cas où il n'y a pas de variation des pas d'espace en X ou en Y

21- Sous-programme PROTEC: Il prépare le fichier de sortie des nuage de particules servant à la détermination du périmètre de protection d'un puits en zone agricole.

B.3 Bibliographie

APPEL, C.A. (1976). A Note on Computing Finite Difference Interblock Transmissivities. Water Res. Res., Vol. 12, No. 3, pp. 561-563.

GOODE, D.J. (1990). Particle Velocity Interpolation in Block-Centred Finite Difference Groundwater Flow Models. Water Res. Res., Vol. 26, No. 5, pp. 925-940.

KONIKOW, L.F. et J.D. BREDEHOEFT (1978). Computer Model of Two-Dimensional Solute Transport and Dispersion in Groundwater, U.S.G.S. Techniques of Water Resources Investigations, Chapter C2, Book 7, 90 p.

REISENAUER, E., K.T. KEY, T.N. NARASIMHAN et R.W. NELSON (1982). A Computer Program for Variably Saturated Flow in Multidimensional, Deformable Media. NUREG/CR-2360 PNL-3975 RU.

STONE, H.L. (1968). Iterative Solution of Implicit Approximations of

Multidimensional Partial Differential Equations. SIAMJ. Numer. Anal., Vol. 5, No. 3, pp. 530-559.

TRESCOTT, P.C. (1975). Documentation of Finite-Difference Model for Simulation of Three-Dimensional Groundwater Flow: U.S. Geol. Survey. Open-File Report. 75-438, 32 p.

TRESCOTT, P.C. et S.P. LARSON (1977). Solution of Three-Dimensional Groundwater Flow Equations using the Strongly Implicit Procedure. Journal of Hydrology, Vol. 35, pp. 49-60.

ANNEXE C: LE MODELE VULPEST

Le modèle VULPEST est un programme modulaire qui existe sous deux versions: l'une sur PC et l'autre sur VAX. Il est écrit en FORTRAN 77 et présente l'architecture indiquée par l'organigramme de la figure C1. Au module de simulation constituant l'essentiel du programme VULPEST, on a fait subir quelques modifications et ce, pour l'intégrer au modèle STOPEST. Le modèle VULPEST a besoin de quatre types de fichiers contenant les variables regroupées par unités logiques telles que les caractéristiques générales du sol, celles du pesticide, celles de la culture et celles du climat. Les paramètres constituant chaque fichier sont les suivants (Banton et al. 1989):

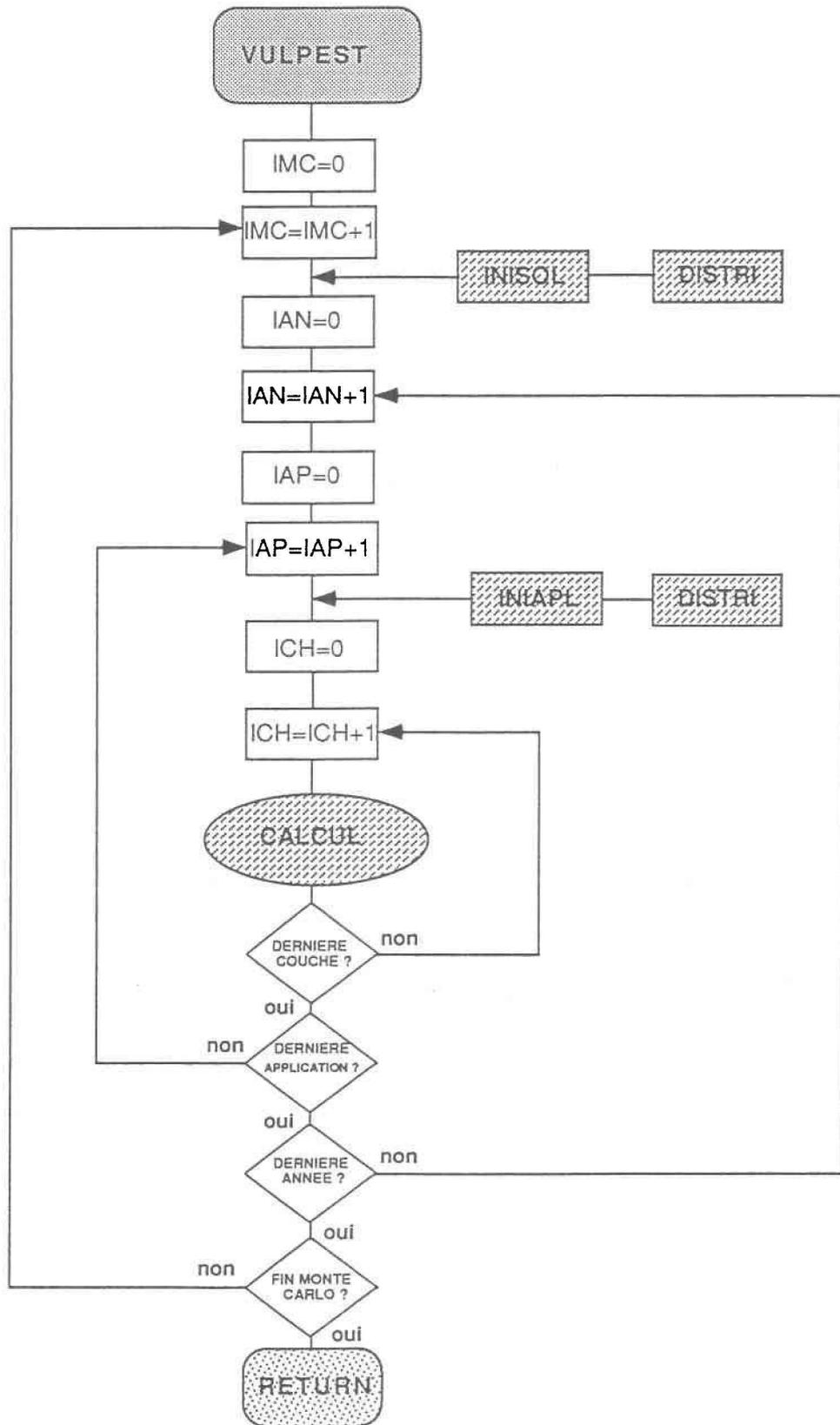
1. Caractéristiques du sol

- Profondeur de la nappe (m);
- Épaisseur du sol pédologique (m);
- Nombre d'horizons;
- Épaisseur des horizons (m);
- Conductivité hydraulique (ms^{-1});
- Pourcentage du sable des horizons (%);
- Pourcentage de limons des horizons (%);
- Pourcentage d'argile des horizons (%);
- Pourcentage de carbone organique (%);
- Porosité des horizons;
- Densité apparente sèche des horizons (g/cm^3);
- Pente du terrain (%).

2. Caractéristiques du pesticide

- Nombre d'application par an;
- Taux d'application (kg m.a./ha);
- Profondeur de l'application (m);

Figure C1. Organigramme du modèle VULPEST



- Jour d'application (1-365);
- Solubilité du pesticide dans l'eau (mg/L);
- Coefficient de Partition du carbone organique (K_{oc});
- Coefficient de dégradation des résidus totaux (j^{-1}).

3- Caractéristiques de la culture

- Nombre de différent type de culture;
- Date d'émergence de la culture (1-265);
- Date de maturation de la culture (1-365);
- Potentiel maximum d'évapotranspiration;
- Nombre d'ordre annuel de culture.

4- Caractéristique du climat

- Précipitations en pluie mensuelles moyennes (mm);
- Précipitations en neige mensuelles moyennes (mm);
- Évapotranspiration mensuelles moyennes (mm);
- Température mensuelles moyennes °C.