

Caractérisation et quantification du processus de dénitrification riparienne à l'échelle d'un bassin versant : Cas du Grand Morin

Mathieu Sebilo^{1,2}, Gilles Billen¹, Micheline Grably², Nicolas Bleuse¹, Gérard Bardoux², André Mariotti².

¹ (UMR Sisyphe, Paris)

² (UMR 7618 , Paris)

Les bilans d'azote réalisés à l'échelle de grands réseaux hydrographiques révèlent qu'une part significative des nitrates exportés des sols agricoles est éliminée par dénitrification, dans les zones humides ripariennes des cours d'eau, avant même d'atteindre ceux-ci.

L'étude de la composition isotopique naturelle des nitrates offre un moyen de confirmer ces bilans, puisque le processus de dénitrification riparienne s'accompagne d'un enrichissement isotopique parfaitement détectable de l'azote des nitrates résiduels. L'outil isotopique est en fait assez bien adapté à l'étude de grands bassins hydrographiques pour lesquels il peut fournir une estimation minimale de la rétention riparienne intégrée sur l'ensemble du linéaire de cours d'eau en amont de la station échantillonnée. Après un rappel de la méthodologie qui sous-tend cette approche, nous en présentons l'application au cas du bassin du Grand Morin.

1. Composition isotopique naturelle des nitrates comme marqueur du processus de dénitrification.

1.1. Dénitrification riparienne et composition isotopique associée

Au cours du processus de dénitrification en milieu fermé, la diminution des teneurs en nitrate s'accompagne d'une augmentation de la composition isotopique des nitrates résiduels, $\delta^{15}\text{N-NO}_3^-$ ‰. Il existe dans ce cas une relation logarithmique entre la concentration en nitrates et leur composition isotopique (Mariotti , 1983)

De nombreuses études sur des sites locaux ont montré que le passage d'un écoulement d'eau souterraine riche en nitrates à travers une zone humide riparienne active en ce qui concerne la dénitrification, s'accompagne de la diminution progressive des nitrates sur le transect bassin versant-rivière, et d'une augmentation concomitante de la composition isotopique de l'azote des nitrates résiduels. (voir p.ex. Hill et al., 2000) (figure 1).

Nous avons montré par ailleurs par des expériences en laboratoire que la dénitrification benthique, dont le processus limitant est la migration par diffusion des nitrates à travers l'interface sédiment- eau, ne s'accompagne pas d'un enrichissement isotopique des nitrates résiduels dans la colonne d'eau (Sebilo et al., 2000 ; Sebilo et al, soumis).

Ainsi, les enrichissements isotopiques qu'on peut observer en un point d'une rivière par rapport à la composition attendue du mélange des sources de nitrates en ce point ne sont attribuables qu'au processus de dénitrification riparienne.

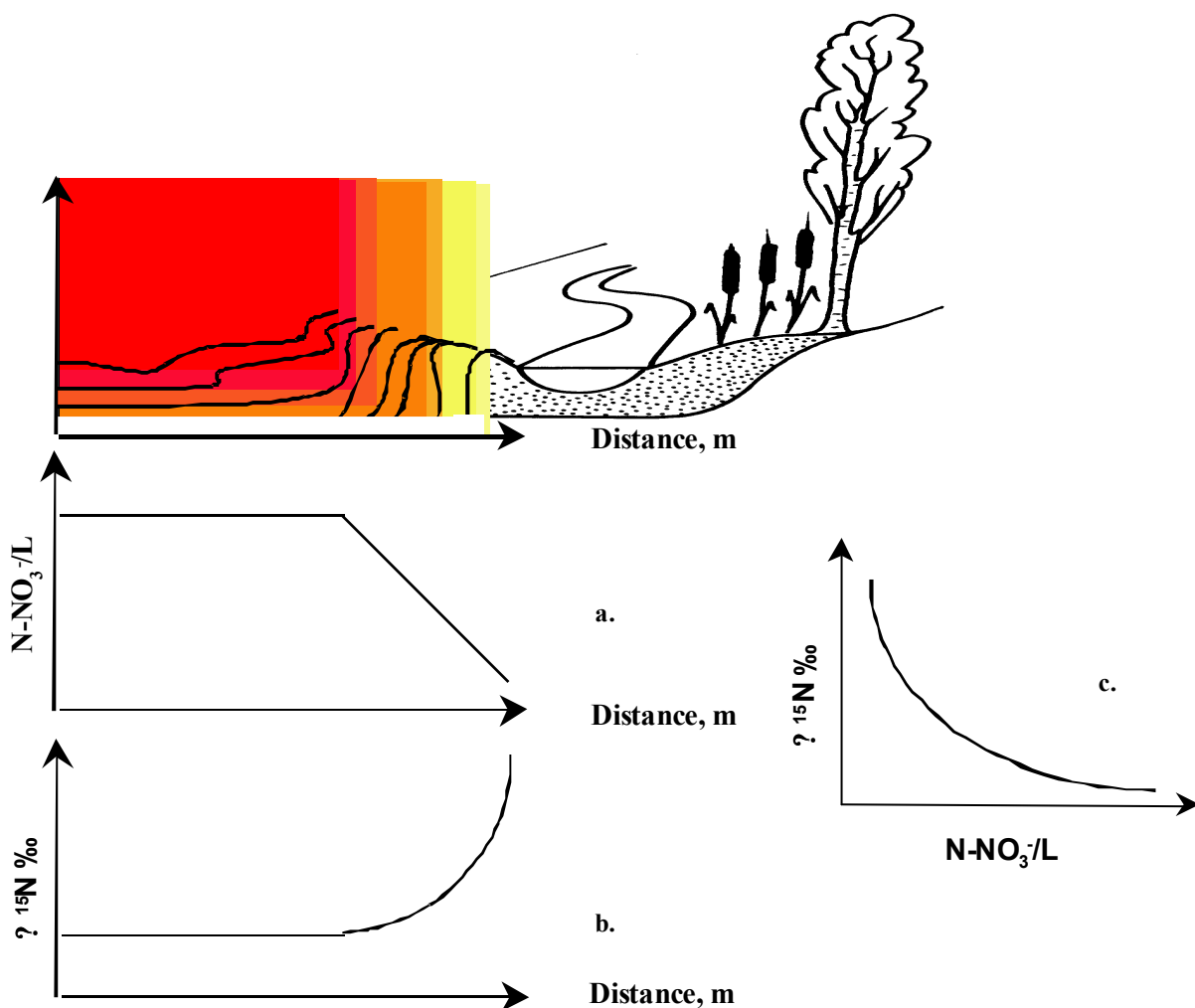


Figure 1 : a. Evolution théorique des concentrations en nitrates le long d'un transect sols du bassin versant-cours d'eau. b. Compositions isotopiques associées aux concentrations en nitrates, le long du transect c. Relation entre les concentrations en nitrates et les compositions isotopiques qui leur sont associées.

2. Composition isotopique des nitrates dans le réseau hydrographique de la Seine

2.1. Campagne estivale d'échantillonnage

Pour avoir une image de la distribution isotopique de l'azote des nitrates à l'échelle du bassin, nous avons effectué et analysé depuis 2 ans une centaine d'échantillons sur l'ensemble du réseau hydrographique de la Seine, couvrant les principales formations géologiques du bassin de la Seine : les terrains anciens, le jurassique, la craie et le tertiaire (figure 2).

Leur localisation sur la base SIG du Piren-Seine a permis de définir pour chaque point de l'échantillonnage la nature lithologique, l'usage du sol et la densité de population du bassin versant amont.

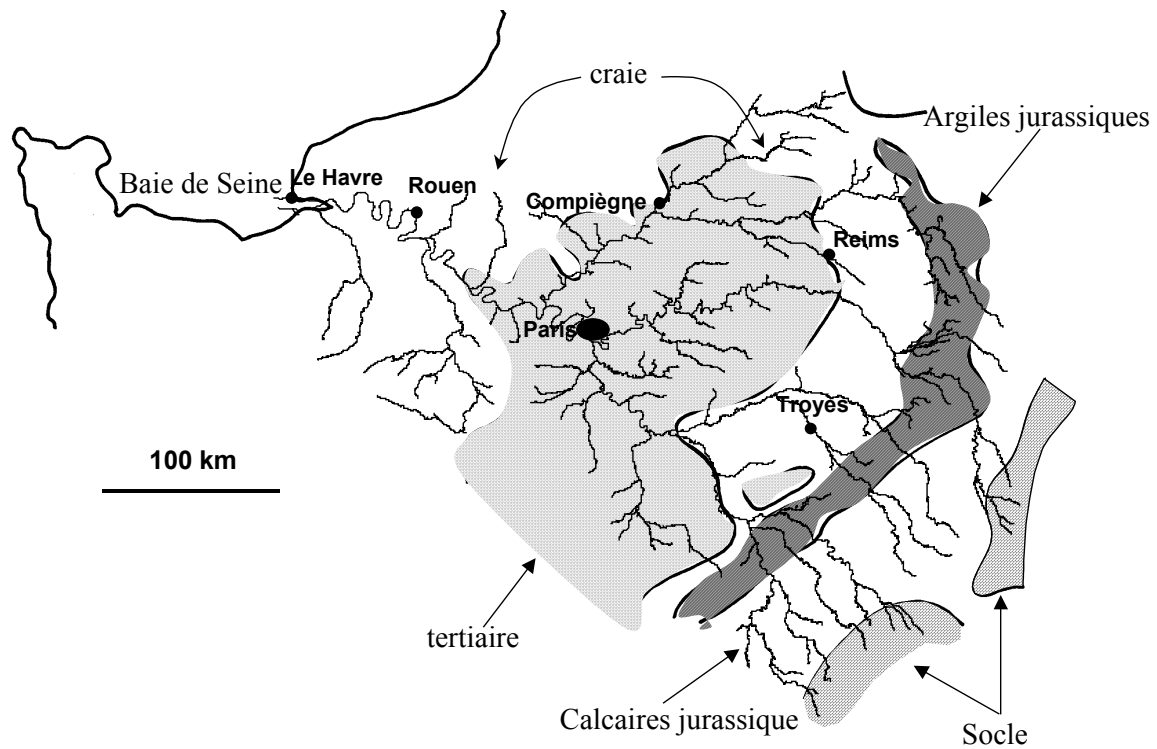


Figure 2 : Carte simplifiée du bassin de la Seine, représentant les grandes régions lithologiques. Le tertiaire est au dessus d'un ensemble de couches convexes. Suivent après les formations tertiaires, celles de la craie, du jurassique et le socle du Morvan.

2.2. Analyse des résultats relatifs aux cours d'eau d'ordre inférieur à 5.

Pour nous affranchir des pollutions d'origine domestique, dont les charges nitriques sont caractérisées par des compositions isotopiques élevées, nous n'avons conservé que les points correspondant aux petits ordres, avec des densités de population dans le bassin versant inférieures à 20 hab./ km² (Figure 3).

Les petits cours d'eau sont le plus souvent caractérisés par une composition lithologique homogène de leur bassin. La lithologie semble être l'un des facteurs déterminants de la composition isotopique des nitrates (Sebilo et al., 2000).

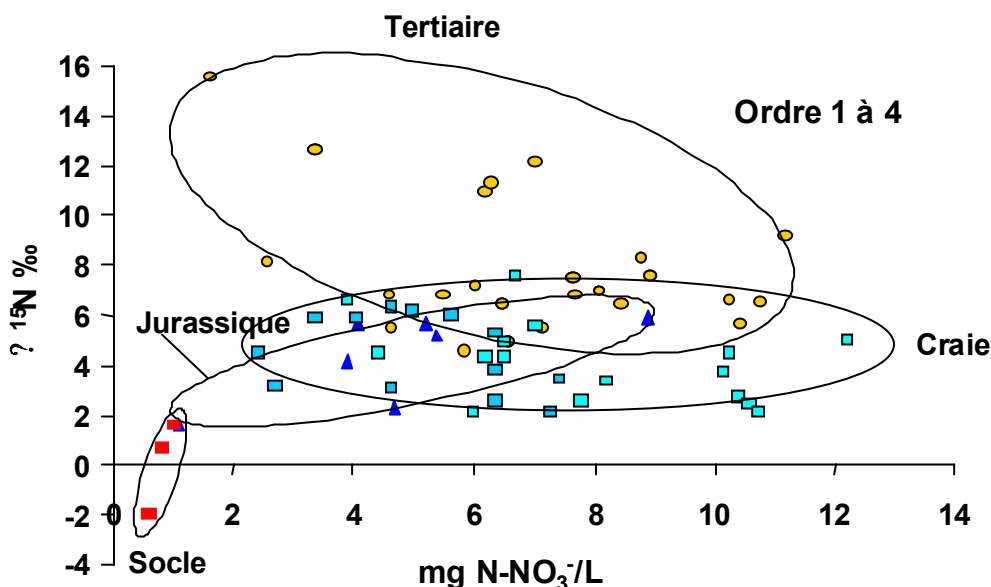


Figure 3 : Concentration et composition isotopique de l'azote des nitrates des cours d'eau d'ordre 1 à 4 du bassin de la Seine en période estivale pour les campagnes d'échantillonnage 1999 et 2000. Distribution par grandes régions lithologiques

Pour un point donné de la campagne d'échantillonnage, situé dans les petits ordres, sa concentration en nitrate et sa composition isotopique associée dépendent du mélange des eaux superficielles et des eaux souterraines de l'ensemble du bassin versant amont. Le signal d'un processus de dénitrification riparienne apparaîtra donc comme une anomalie par rapport à la composition attendue du mélange des diverses sources d'azote aux eaux de surface.

Dans l'exemple des petits ruisseaux des régions de la craie, les valeurs mesurées ne diffèrent pas significativement des données relatives aux nitrates des captages. Aucun signal de dénitrification n'y est donc détectable en moyenne (figure 4).

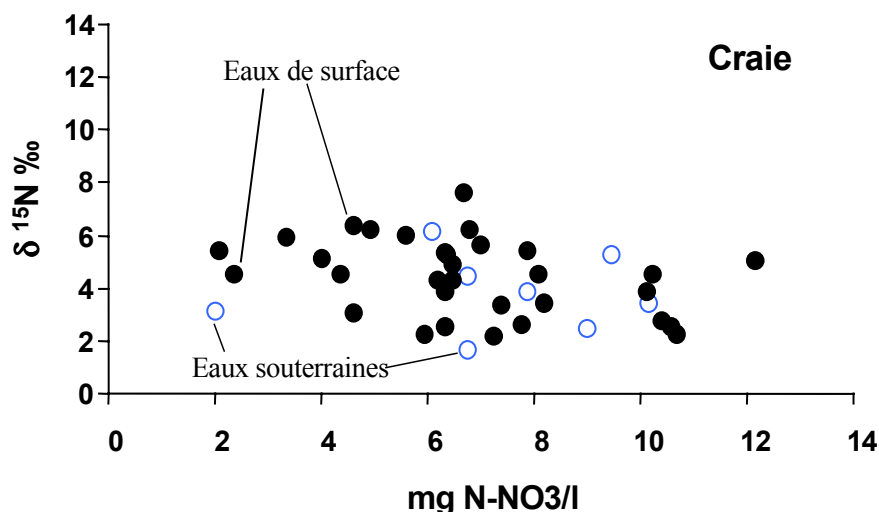


Figure 4 : Comparaison des concentrations en nitrates et de leur composition isotopique entre les eaux de surface et souterraines des régions lithologiques crayeuses du bassin de la Seine.

Dans le tertiaire, la comparaison des valeurs mesurées sur les eaux de surface avec celles relatives aux eaux souterraines et aux eaux sous-racinaires montre plus clairement une anomalie

attribuable à un processus de dénitrification, c'est à dire, moins de nitrates et une composition isotopique plus élevée que ce qu'on attend du simple mélange des eaux (figure 5).

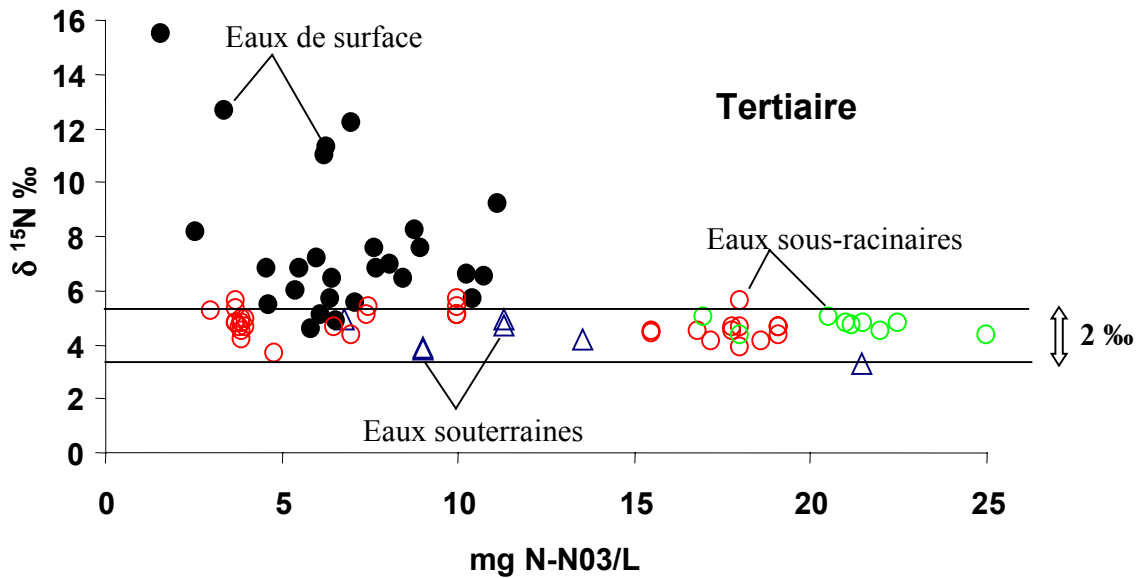


Figure 5. Comparaison des concentrations et compositions isotopique de l'azote des nitrates des cours d'eau d'ordre 1 à 4 des régions tertiaires du bassin de la Seine avec les données de drainage et de captage pour les campagnes d'échantillonnage en étiage 1999 et 2000.

3. Interprétation du signal isotopique en terme de dénitrification riparienne globale à l'échelle de la rivière

3.1. Estimation de la rétention riparienne globale

Si nous considérons une situation théorique où le filtre riparien est réparti de façon homogène, retenant toujours la même fraction du flux de nitrates, qui le traverse avant d'atteindre le cours d'eau, on peut attendre une relation, dérivant de la formule de Rayleigh, permettant de relier l'anomalie isotopique au pourcentage de rétention riparienne globale (Sebilo *et al.*, in rev). Dans ce cas idéal, la rétention riparienne globale se déduit directement de l'anomalie isotopique (relation $G=1$ dans la figure 7).

Mais cette hypothèse d'une distribution uniforme de l'activité des zones ripariennes est irréaliste. En réalité, la dénitrification riparienne se produit au niveau de « points chauds localisés » caractérisés par la présence de matière organique en abondance, dans les dépôts alluviaux (Hill et al., 2000). Dans le cas extrême où la dénitrification est complète au niveau de ces points chauds et qu'aucune dénitrification ne se produit ailleurs, aucun enrichissement isotopique n'est observée.

Il faut alors considérer une distribution hétérogène du filtre riparien, tant au niveau stationnel, qu'au niveau du bassin. On peut alors considérer une situation théorique où il existe une fraction (G) du flux de nitrates provenant des eaux sous-racinaires et des eaux souterraines traversant une zone riparienne active, et la fraction complémentaire ($1-G$) correspondant à la part de nitrates directement transférée dans le chevelu, c'est à dire court-circuitant la zone humide riparienne (Figure 6).

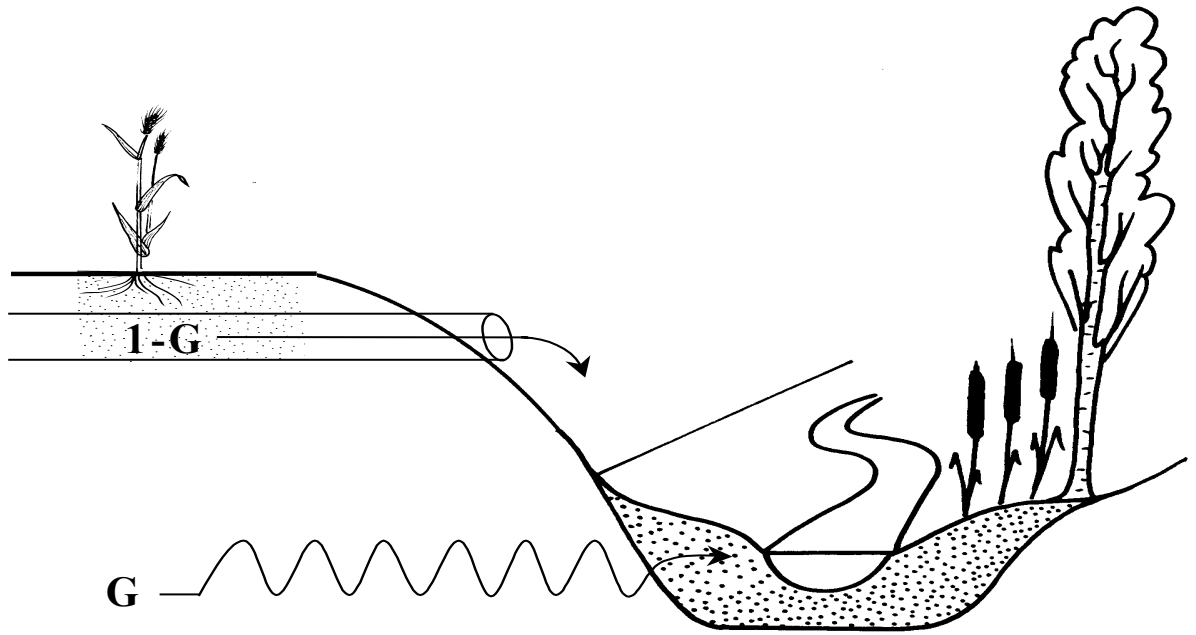


Figure 6 Schéma théorique de la répartition des différentes fractions arrivant à la rivière, traversant ou court-circuitant les zones humides ripariennes.

Dans ce cas le calcul de la composition isotopique des nitrates résiduels dépend à la fois de la rétention riparienne globale (celle qui peut être évaluée par un bilan d'azote par exemple) et de la fraction du flux d'eau transitant par les zones ripariennes actives. Ce qui est important est que l'anomalie attendue dans ce cas est toujours plus faible que celle qui résulterait du cas idéal d'une dénitrification riparienne uniforme (figure 7).

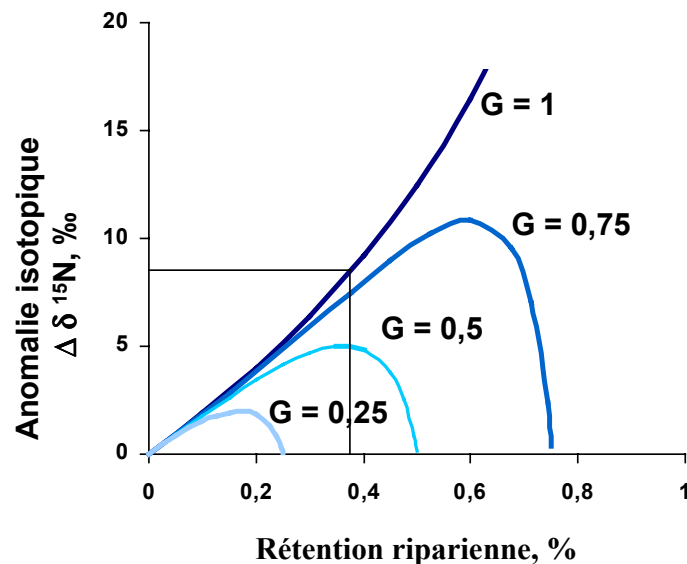


Figure 7 : Anomalie isotopique attendue en fonction de la rétention riparienne globale pour différentes valeurs de la fraction du flux d'eau transitant par des zones ripariennes actives.

Par conséquent, l'anomalie isotopique observée à une station donnée ne fournit jamais qu'un minimum de la rétention sur l'ensemble du bassin amont. L'hétérogénéité atténue donc l'anomalie isotopique. En fait, l'anomalie isotopique renseigne sur une rétention riparienne globale minimale, mais l'absence d'anomalie isotopique ne permet pas de conclure à l'absence de rétention riparienne.

3.2.Exemple de bassin versant du Grand Morin

Nous avons testé cette approche sur le cas du bassin versant du Grand Morin, d'une superficie de 1200 km².

La composition isotopique des nitrates mesurées sur les échantillons d'eau superficielle estivale, et leur différence par rapport à celle des eaux de captage et de drainage mesurées sur le même bassin, permet d'estimer une rétention riparienne minimale en amont des points de prélèvement (figure 8). La rétention globale minimale estimée est comprise entre 10 et 30%.

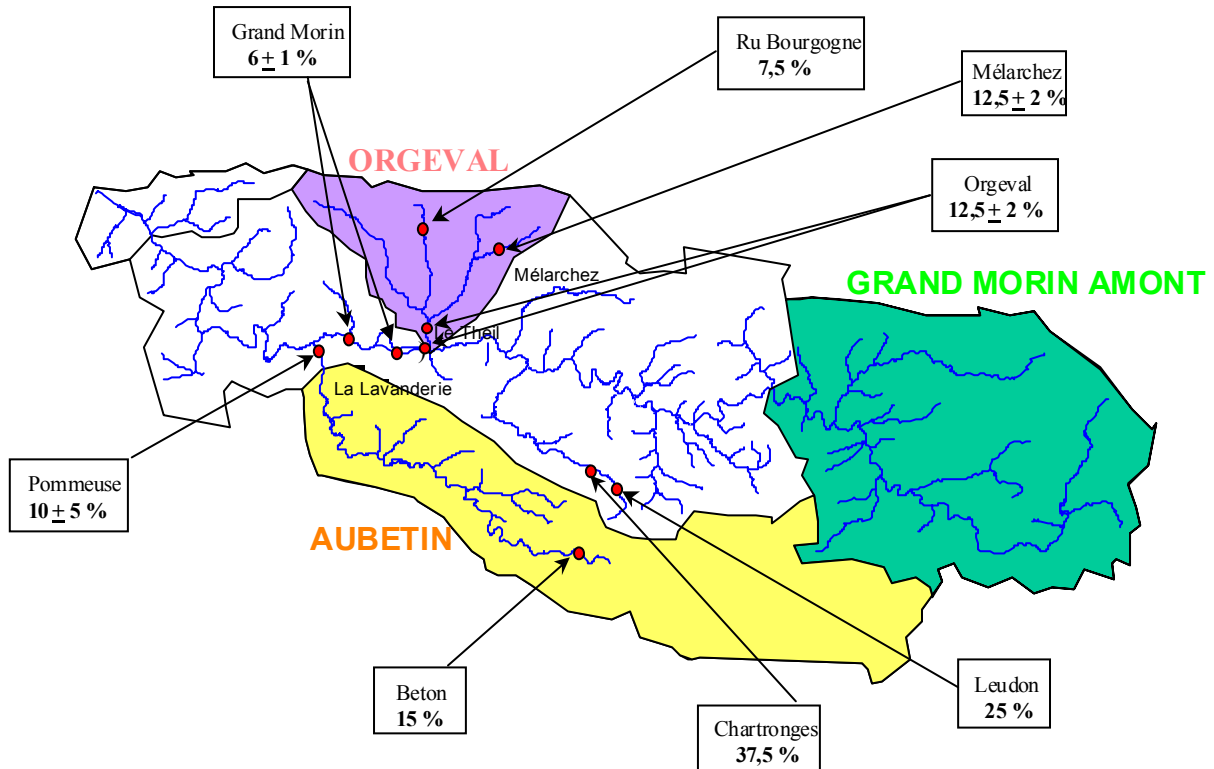


Figure 8 : Estimation du pourcentage de rétention riparienne globale sur l'ensemble du bassin versant du Grand Morin, à l'aide de l'outil isotopique.

4. Validation des conclusions fournies par l'outil isotopique avec les bilans d'azote obtenus par le modèle SENEQUE

4.1.Principe

Pour tester la pertinence du résultat isotopique, nous l'avons comparé à celui obtenu à partir d'un bilan d'azote à l'échelle du Grand Morin, pour l'année 1995, à l'aide du modèle SENEQUE (Billen *et al.*, 1999)(figure 9).

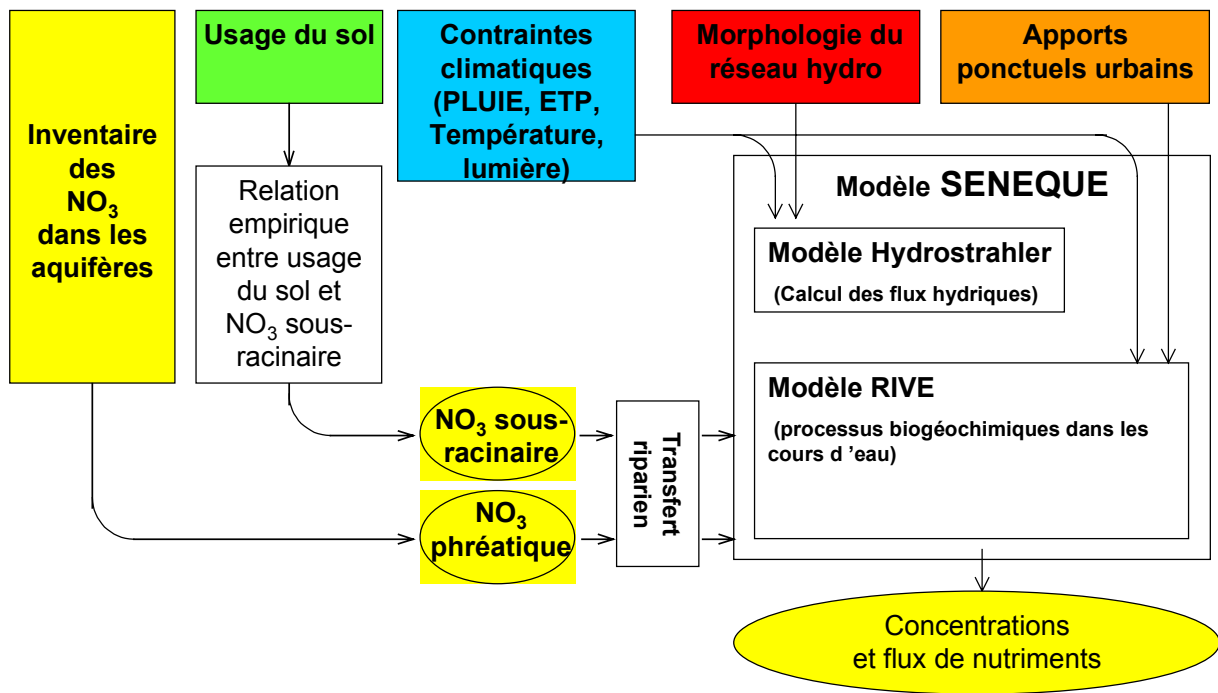


Figure 9 : Modélisation du transfert des nitrates à l'aide de SENEQUE.

Ce modèle calcule les concentrations et les flux de nutriments à partir :

- . de la concentration des nitrates sous-racinaires.
- . de la concentration des nitrates phréatiques.

Le transfert riparien est estimé par ajustement des résultats des calculs sur les données observées dans les eaux superficielles.

4.2. Calcul des concentrations des nitrates sous-racinaires

Concernant les nitrates des eaux sous-racinaires, leurs concentrations ont été calculées à partir de plusieurs méthodes, pour l'année 1995 (figure 10).

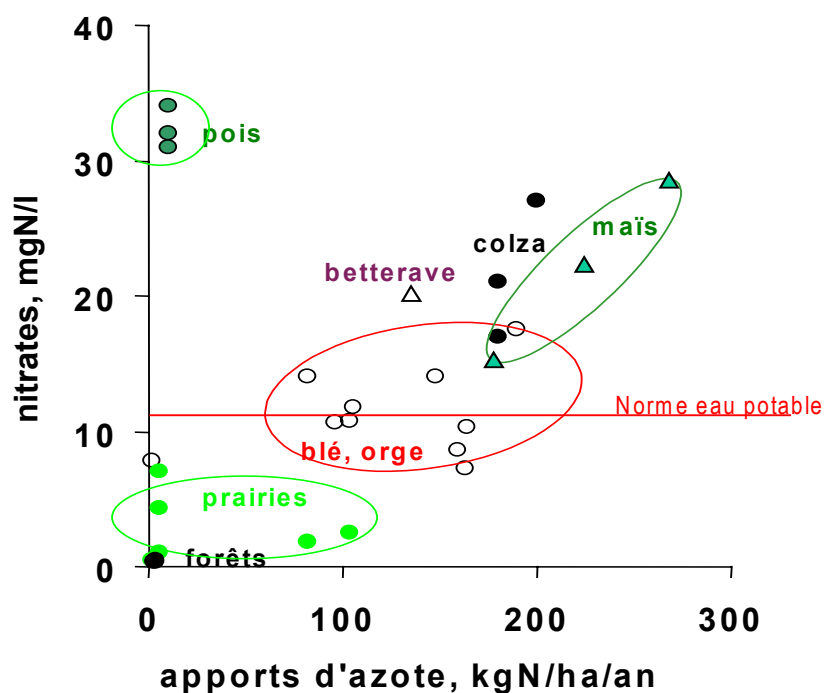


Figure 10 : Estimation de la composition moyenne des nitrates des eaux sous-racinaires sur le bassin du Grand Morin, pour l'année 1995.

Dans une 1^{ère} méthode, les concentrations en nitrates sous-racinaires sont estimées à partir des pratiques culturales, sur base d'une relation empirique obtenue à partir de mesures en cases lysimétriques et en bougies poreuses (figure 10). Compte tenu de l'usage du sol dans le bassin du Grand Morin, on arrive à une composition des eaux sous racinaire comprise entre 12 et 16 mgN/l.

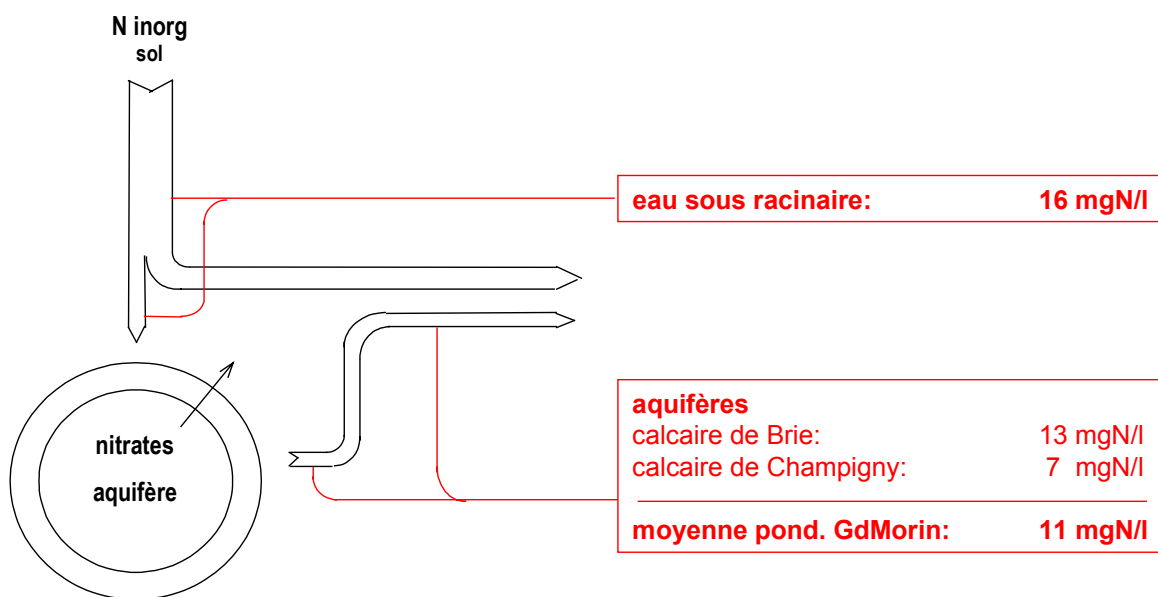
. Une 2^{ème} méthode utilise les résultats des CORPEN, c'est à dire des bilans d'azote établis dans le cadre de l'action Ferti-Mieux 'des Morin à la Marne' pour un échantillonnage représentant 40 % des entreprises agricoles du bassin versant. En diluant ce solde par la lame d'eau drainante annuelle, on arrive à une estimation de la teneur en nitrates des eaux drainées de 16 mgN/l.

. La 3^{ème} méthode se base sur le dosage de reliquats d'azote à l'entrée de l'hiver, mesurés également dans le cadre de l'action Ferti-Mieux. En extrapolant à l'échelle du bassin sur base d'une relation entre ces reliquats et le type de rotation culturale pratiquée, et en diluant le stock entrée hiver dans la lame d'eau drainante, on estime la teneur moyenne en nitrates des eaux sous racinaires à 16-17 mgN/l.

Ces trois méthodes nous fournissent donc des valeurs remarquablement concordantes. On retiendra donc une concentration pour les nitrates des eaux sous-racinaires de l'ordre de 16 mg N-NO₃/L.

4.3. Calcul des concentrations en nitrates des eaux souterraines

Pour les eaux phréatiques, nous disposons de données de concentration en nitrates dans des captages, des puits et des forages fournies par la CGE. En moyenne, les teneurs sont de 133 mgN/l dans la nappe de Brie, et de 7 mgN/l dans la nappe du calcaire de Champigny. En considérant la surface relative du bassin intéressé par un écoulement superficiel de chacun de ces aquifères, la moyenne pondérée est de l'ordre de 11 mg N-NO₃/L (figure 11).



(CGE, Fauchon)

Figure 11 : Calcul de la composition moyenne des nitrates des eaux souterraines pour le bassin du Grand Morin, pour l'année 1995.

4.4. Estimation de la rétention riparienne sur base des calculs du modèle

En tenant compte des compositions des eaux sous-racinaires (16 mg N-NO₃⁻/L) et des eaux souterraines (11 mg N-NO₃⁻/L), le modèle SENEQUE surestime largement les teneurs en nitrates des eaux superficielles. (figure 12).

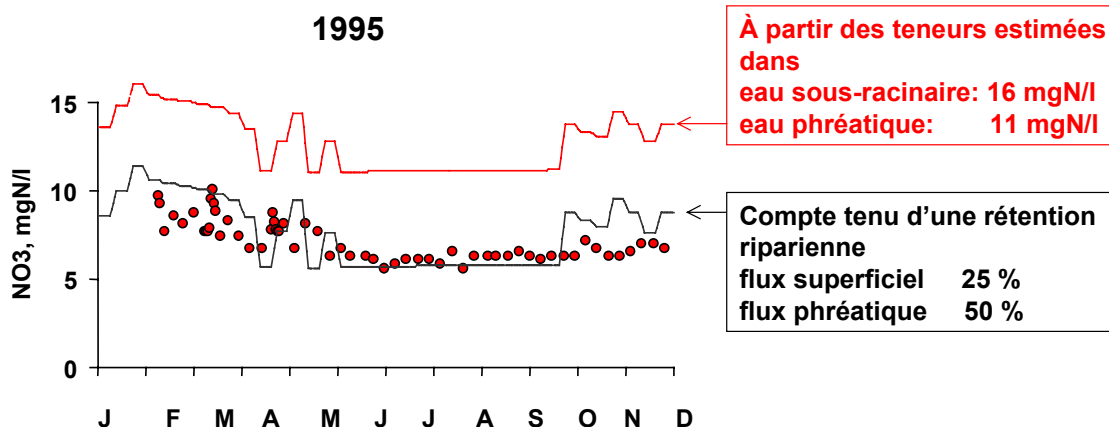


Figure 12 : Simulation des variations saisonnières de la concentrations en nitrates à l'exutoire du Grand Morin, pour l'année 1995.

Par ajustement du coefficient de rétention riparienne, on peut obtenir une bonne simulation, ce qui permet d'estimer que sur l'ensemble du bassin 30 % des apports diffus de nitrates sont éliminés par le processus de dénitrification au niveau des zones humides ripariennes. Ce pourcentage de rétention est égal à 50 % en période d'été.

Ces résultats sont tout à fait en accord avec ceux apportés par l'outil isotopique.

4.5. Bilan du transfert d'azote

Le bilan de transfert d'azote dans le bassin du Grand Morin en 1995, résultant de ces calculs, montre l'importance des apports azotés en provenance des sols agricoles (figure 13).

Bilan d'azote dans le Grand Morin tonnes N par an

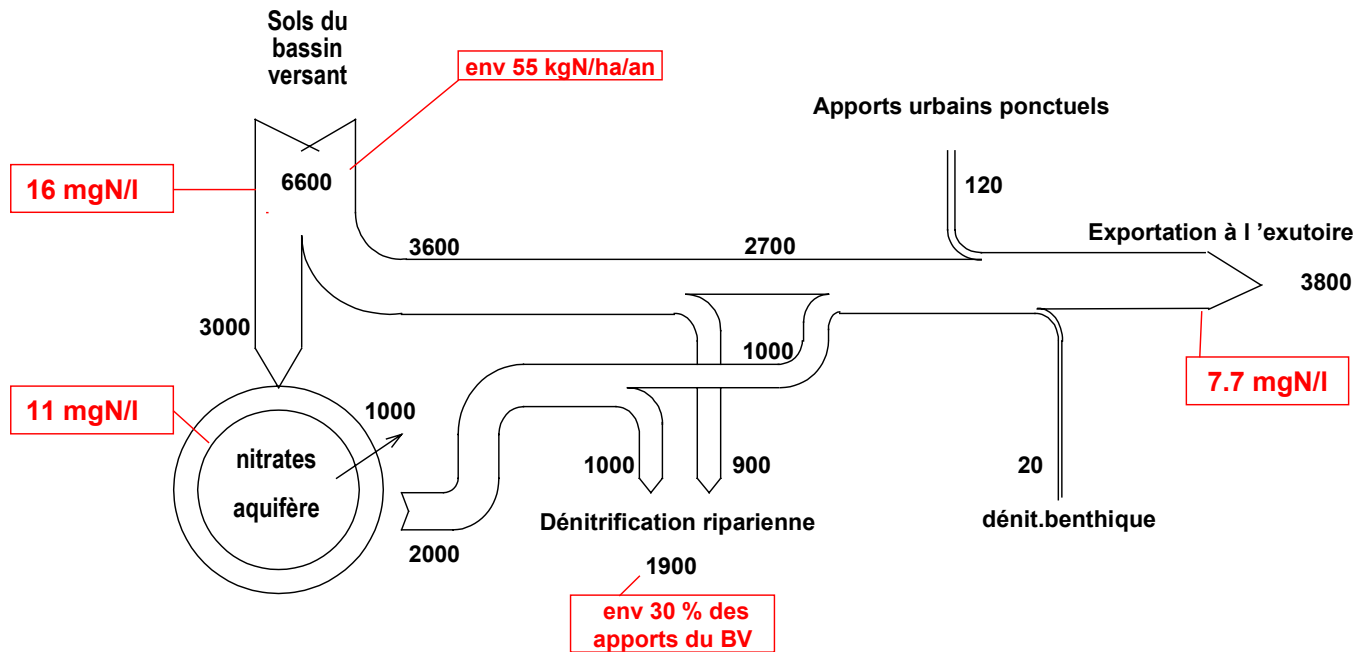


Figure 13 : Bilan des transferts d'azote dans le bassin versant du Grand Morin, pour l'année 1995, à l'aide du modèle SENEQUE.

Ce bilan montre également que les aquifères sont alimentés par des eaux dont les teneurs en nitrates leur sont bien supérieures. Un stockage temporaire de nitrates a donc lieu dans les eaux souterraines. Par ailleurs, comme on vient de le voir, la moitié des apports de nitrates sortant des aquifères sont dénitrifiés, et ceci malgré la réduction considérable de l'extension des zones riveraines qui a eu lieu dans le bassin du Grand Morin largement drainé.

L'approche de bilan-modélisation développée sur la base du modèle SENEQUE permet donc de proposer une image quantitative des principaux flux d'azote responsables de la contamination nitrique des eaux superficielles et souterraines du bassin du Grand Morin pour l'année 1995.

4.6. Relation morphologie des cours d'eau – rétention riparienne

Pour essayer de renforcer les données apportées par SENEQUE, nous avons tenté d'établir la relation existant entre la morphologie des corridors fluviaux et la rétention riparienne globale estimée (figure 14).

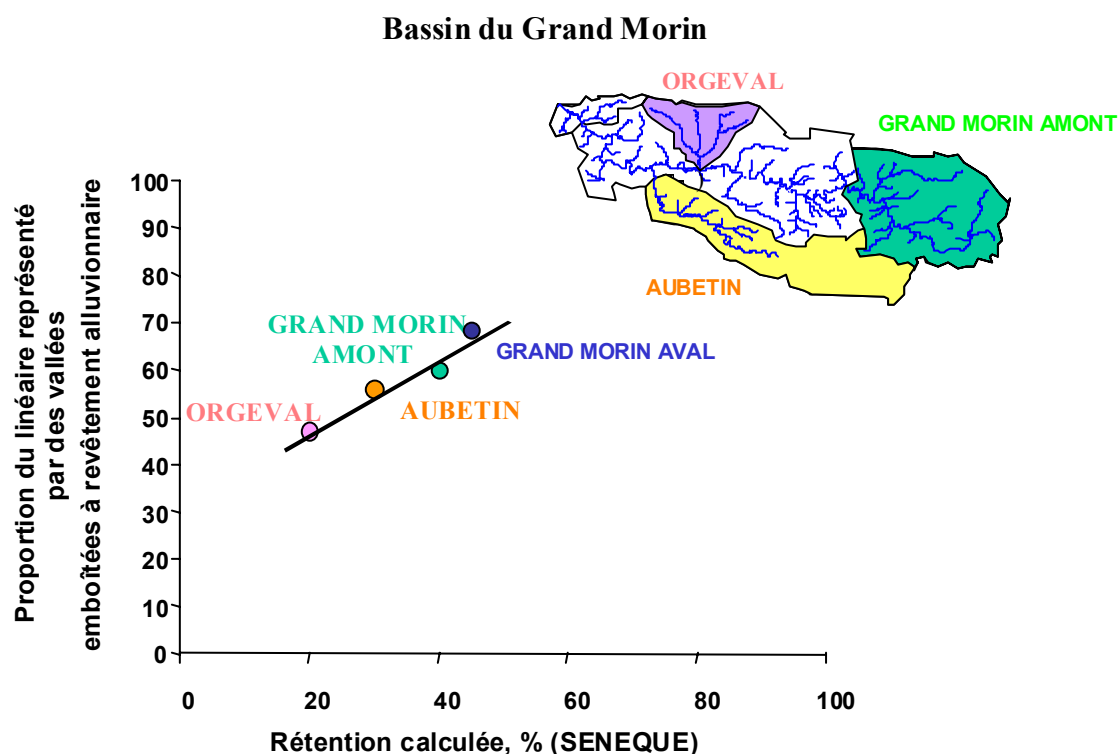


Figure 14 : Liens entre morphologie des cours d'eau et rétention riparienne globale. Test sur le bassin du Grand Morin.

Nous avons essayé de discerner les liens qui peuvent exister entre la rétention estimée et la proportion du linéaire représenté par des vallées à revêtement alluvionnaire, par opposition aux vallées inscrites dans la roche en place.

Nous avons testé, en plus du bassin du Grand Morin dans son entièreté, trois sous-bassins (Orgeval, Grand Morin amont, Aubetin) pour lesquels nous disposions des informations permettant de réaliser le même bilan d'azote, et d'estimer un rétention riparienne globale.

Les résultats (figure 14) montrent une relation entre cette rétention estimée par bilan et la proportion de linéaire de vallée à revêtement alluvionnaire, ce qui tend à montrer la pertinence de la typologie géo-morphologique pour estimer a priori un potentiel de dénitrification riparienne.

5. Conclusions et Perspectives

L'ensemble de ces résultats démontre que la mesure de la composition isotopique naturelle de l'azote nitrique en rivière, en complément d'une démarche de bilan-modélisation, constitue une approche intéressante pour valider les estimations qui peuvent être faites de la rétention riparienne.

Dans l'avenir, notre objectif sera de mieux distinguer les variations de composition isotopique induites par la dénitrification riparienne de celle résultant du simple mélange des diverses sources de nitrates. Pour réaliser cet objectif, un suivi plus intensif, et couvrant plusieurs situations hydrologiques, devra être effectué.

L'étude de sites pilotes, bien documentés en ce qui concerne les flux hydriques, et situés dans différentes régions lithologiques du bassin de la Seine, nous permettra de mieux interpréter la résultante des interactions qui déterminent la composition isotopique des eaux de surface.

La mesure en parallèle de la composition isotopique de l'oxygène des nitrates nous permettra une meilleure discrimination, notamment en ce qui concerne les nitrates d'origine domestique (Battaglin *et al.*, 1997).

Enfin, pour interpréter quantitativement les mesures de composition isotopiques à l'échelle d'un grand bassin hydrographique, le recours à la modélisation est indispensable.

6. Références

Andersen J.M. (1977). Rates of denitrification of undisturbed sediment from six lakes as a function of nitrate concentration, oxygen and temperature. *Arch. Hydrbiol.* 80 : 147-159.

Battaglin, W.A., Kendall, C, Goolsby, D.A., Boyer, L.L. (1997). Plan of study to Determine if the Isotope ratios $\delta^{15}\text{N}$ and $\delta^{18}\text{O}$ can reveal the sources of nitrate discharged by the Mississippi river into the Gulf of Mexico. US Geological Survey open-file report 97-230.

Billen G. and Garnier J. (1999). Nitrogen transfers through the Seine drainage network : a budget based on the application of the 'RIVERSTRAHLER' model. *Hydrobiologia.* 410 : 139-150.

Christensen P.B., Nielsen L.P., Revsbech N.P. & Sorensen J. (1989). Microzonation of denitrification activity in stream sediments as studied with a combined oxygen and nitrous oxide microsensor. *Appl. Environ. Microbiol.* 55 : 1234-1241.

Mariotti A. (1983). Utilisation des variations naturelles d'abondance isotopique en ^{15}N comme traceur de l'origine des pollutions des aquifères par les nitrates. *Compte rendu du colloque international sur l'hydrologie isotopique et la mise en valeur des ressources en eau.*

Mariotti A. (1982). Apports de la géochimie isotopique à la connaissance du cycle de l'azote. *Mem. Sci. Terre, Univ. Curie, Paris*, n° 82-13.

Sebilo M., Billen G., Grably M. & Mariotti A. (in rev). Isotopic composition of nitrate-nitrogen as a marker of riparian and benthic denitrification at the scale of the whole Seine River system.

Sebilo M., Billen G., Grably M. & Mariotti A. (2000). Evaluation et modélisation de la rétention d'azote à l'échelle du bassin versant : l'apport de la biogéochimie isotopique. *Rapport d'activité 1999 du programme Piren-Seine.*

Seitzinger S.P., Nixon S.W., Pilson M.E.Q. & Burke S. (1980). Denitrification and N_2O production in near-shore marine sediments. *Geochim. Cosmochim. Acta.* 44 : 1853-1860.