

Impact des terrils houillers sur la qualité des eaux souterraines (bassin minier Nord-Pas-de-Calais, France) : approche géochimique et isotopique

Impact of coal mine tips on ground-water quality ("Nord-Pas-de-Calais" coal mine district, France): inorganic and isotope-geochemistry approaches

S. Denimal, N. Tribovillard, F. Barbecot, S. Aglave and L. Dever

Volume 15, Special Issue, 2002

URI: <https://id.erudit.org/iderudit/705487ar>

DOI: <https://doi.org/10.7202/705487ar>

[See table of contents](#)

Publisher(s)

Université du Québec - INRS-Eau, Terre et Environnement (INRS-ETE)

ISSN

0992-7158 (print)

1718-8598 (digital)

[Explore this journal](#)

Cite this article

Denimal, S., Tribovillard, N., Barbecot, F., Aglave, S. & Dever, L. (2002). Impact des terrils houillers sur la qualité des eaux souterraines (bassin minier Nord-Pas-de-Calais, France) : approche géochimique et isotopique. *Revue des sciences de l'eau / Journal of Water Science*, 15, 67-93. <https://doi.org/10.7202/705487ar>

Article abstract

In the Nord-Pas-de-Calais region (France), coal mining activity has induced a build-up of many mine tips. The tip materials are dominantly composed of siltstones, locally rich in iron sulfide. Weathering of pyrite might be expected to release sulfate ions and associated metals within the run-off waters down to the underlying aquifer, which is composed of a thick Cretaceous chalk formation. The objectives of this study were twofold: (1) to determine the possible role of the mine tips in the sulfate mineralization of the chalk aquifer and; (2) to assess the amount of waste material that can be leached and may supply sulfate ions to the water table.

Two sites were selected for this study. Site 1 rests directly on the Senonian-Turonian chalk, whereas site 2 lies on sandy-clayey Cenozoic formations overlying the chalk formations (Figs. 1-2). Water samples were collected within the chalk aquifer (Fig. 3), which represents a free water table except for where the almost impermeable Cenozoic formations confine this table (site 2). Rock samples were collected at the surface and at a depth of <12 m at both sites. Various analyses were performed on these samples including mineralogical analyses carried out on both the bulk fraction and the clayey fraction, as well as elementary analyses of total carbon, total sulfur and CaCO₃ contents. Elemental analyses were carried out by Inductively Coupled Plasma-Atomic Emission Spectroscopy (ICP-AES: major and minor elements) or Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry (ICP-MS: trace elements). Chemical and isotopic (C, S) analyses were performed on water sampled from upstream and downstream of the mine tips. In situ measurements were also carried out during sampling. Finally, to assess the degree of rainwater seeping through the coal mine tips, two radio-magnetotelluric surveys were carried out in September and November, 1999 following rainy periods. Permeability measurements and grain-size analyses of subsurface samples were also performed at site 2.

The carbon and sulfur contents showed superficial leaching on the mine tips (Fig. 4). The use of sulfur isotopes as tracers of the sulfate origin allowed identification of two sources for the two sites: a "mine tip" source with a slightly negative $\delta^{34}\text{S}$ (-2.8‰ to -3.9‰), which corresponds to the oxidation of sulfides contained by the Carboniferous shales, and another source ($\delta^{34}\text{S}$ = -20‰) corresponding to the gypsum of the Cenozoic formations, which was only present at site 2 (Figs. 5 & 6).

This study outlined different behavior for the tips of the two sites. At site 1, where there is a free water-table zone, the mine tip leachates carry sulfate ions directly to the water table, whereas in the case of a confined aquifer zone such as the one present at site 2, a proportion of the sulfate was reduced once exported to the water table (the redox potential showed negative values; Table 1). This suggestion of bacterially-mediated reduction is supported by the $\delta^{34}\text{S}$ of the sulfate content in the water table. The bacterial activity was fueled by the organic carbon release that accompanies the sulfur leaching on the mine tips. This carbon contribution was confirmed by the ^{14}C activity that characterized the chalk aquifer waters at the upstream region of the mine tip and noticeably decreased downstream. The decrease is a result of the supply of "dead carbon" from the mine tips (Fig. 7).

The oxidation of pyrite also results in H^+ production. However, the pH decrease observed downstream from the sites was very slight. Waters derived from leaching of the mine tip seeped through the buffered environment of the chalk aquifer. The distribution of metal content showed no surface to depth gradient for samples taken from both sites. The only evidence of "neutral acid mining drainage" (NAMD) was the sulfate amounts exported, and the increase in Mg, Ca, HCO₃⁻ and Sr contents observed downstream from the sites (Table 2a-b).

The decrease in the apparent resistivity of radio-magnetotelluric profiles demonstrated that rain waters could deeply penetrate in some parts of the tip at site 2 (Fig. 9). Considering the constant nature of the waste material (grain size and porosity), a decrease in resistivity accompanied by an increase in conductivity between the two surveys indicated water seepage. Permeability measurements showed the occurrence of deep permeability barriers (Fig. 10), limiting not only rainwater seepage, but also the amount of mobilizable sulfide and consequently the amount of sulfates exported to the chalk aquifer. Grain size is not the only reason for the permeable or impermeable nature of waste material - the grain ordering and the compaction of levels at depth also have a role.

Impact des terrils houillers sur la qualité des eaux souterraines (bassin minier Nord-Pas-de-Calais, France) : approche géochimique et isotopique

Impact of coal mine tips on ground-water quality ("Nord-Pas-de-Calais" coal mine district, France): inorganic and isotope-geochemistry approaches

S. DENIMAL ¹*, N. TRIBOVILLARD ¹, F. BARBECOT ², S. AGLAVE ¹, L. DEVER ²

SUMMARY

In the Nord-Pas-de-Calais region (France), coal mining activity has induced a build-up of many mine tips. The tip materials are dominantly composed of siltstones, locally rich in iron sulfide. Weathering of pyrite might be expected to release sulfate ions and associated metals within the run-off waters down to the underlying aquifer, which is composed of a thick Cretaceous chalk formation. The objectives of this study were twofold:

- to determine the possible role of the mine tips in the sulfate mineralization of the chalk aquifer;
- to assess the amount of waste material that can be leached and may supply sulfate ions to the water table.

Two sites were selected for this study. Site 1 rests directly on the Senonian-Turonian chalk, whereas site 2 lies on sandy-clayey Cenozoic formations overlying the chalk formations (*figures 1 and 2*). Water samples were collected within the chalk aquifer (*figure 3*), which represents a free water table except for where the almost impermeable Cenozoic formations confine this table (site 2). Rock samples were collected at the surface and at a depth of < 12 m at both sites. Various analyses were performed on these samples including mineralogical analyses carried out on both the bulk fraction and the clayey fraction, as well as elementary analyses of total carbon, total sulfur and CaCO₃ contents. Elemental analyses were carried out by Inductively Coupled Plasma-Atomic Emission Spectroscopy (ICP-AES: major and minor elements) or Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry (ICP-MS:

1. Université de Lille, Laboratoire de sédimentologie et géodynamique, FRE CNRS 2255, 59655 Villeneuve d'Ascq, France.

2. Université Paris XI, Laboratoire d'hydrologie et de géochimie isotopique, UMR CNRS Orsayterre, 91405 Orsay, France.

* Correspondance. E-mail : Sophie.Denimal@univ-lille1.fr

** Les commentaires seront reçus jusqu'au 30 avril 2003.

trace elements). Chemical and isotopic (C, S) analyses were performed on water sampled from upstream and downstream of the mine tips. *In situ* measurements were also carried out during sampling. Finally, to assess the degree of rainwater seeping through the coal mine tips, two radio-magneto-telluric surveys were carried out in September and November 1999 following rainy periods. Permeability measurements and grain-size analyses of subsurface samples were also performed at site 2.

The carbon and sulfur contents showed superficial leaching on the mine tips (figure 4). The use of sulfur isotopes as tracers of the sulfate origin allowed identification of two sources for the two sites: a “mine tip” source with a slightly negative $\delta^{34}\text{S}$ (-2.8‰ to -3.9‰), which corresponds to the oxidation of sulfides contained by the Carboniferous shales, and another source ($\delta^{34}\text{S} = -20\text{‰}$) corresponding to the gypsum of the Cenozoic formations, which was only present at site 2 (figures 5 and 6).

This study outlined different behavior for the tips of the two sites. At site 1, where there is a free water-table zone, the mine tip leachates carry sulfate ions directly to the water table, whereas in the case of a confined aquifer zone such as the one present at site 2, a proportion of the sulfate was reduced once exported to the water table (the redox potential showed negative values; table 1). This suggestion of bacterially-mediated reduction is supported by the $\delta^{34}\text{S}$ of the sulfate content in the water table. The bacterial activity was fueled by the organic carbon release that accompanies the sulfur leaching on the mine tips. This carbon contribution was confirmed by the ^{14}C activity that characterized the chalk aquifer waters at the upstream region of the mine tip and noticeably decreased downstream. The decrease is a result of the supply of “dead carbon” from the mine tips (figure 7).

The oxidation of pyrite also results in H^+ production. However, the pH decrease observed downstream from the sites was very slight. Waters derived from leaching of the mine tip seeped through the buffered environment of the chalk aquifer. The distribution of metal content showed no surface to depth gradient for samples taken from both sites. The only evidence of “neutral acid mining drainage” (NAMD) was the sulfate amounts exported, and the increase in Mg, Ca, HCO_3^- and Sr contents observed downstream from the sites (table 2a, b).

The decrease in the apparent resistivity of radio-magneto-telluric profiles demonstrated that rain waters could deeply penetrate in some parts of the tip at site 2 (figure 9). Considering the constant nature of the waste material (grain size and porosity), a decrease in resistivity accompanied by an increase in conductivity between the two surveys indicated water seepage. Permeability measurements showed the occurrence of deep permeability barriers (figure 10), limiting not only rainwater seepage, but also the amount of mobilizable sulfide and consequently the amount of sulfates exported to the chalk aquifer. Grain size is not the only reason for the permeable or impermeable nature of waste material — the grain ordering and the compaction of levels at depth also have a role.

Key-words: coal mine tips, pyrite, sulfates, metals, $\delta^{34}\text{S}$, ^{14}C activity, bacterial activity, radiomagnetotelluric method, permeability.

RÉSUMÉ

L'exploitation du charbon dans le Nord-Pas-de-Calais (France) a engendré le dépôt d'importantes quantités de résidus miniers sous forme de terrils, essentiellement constitués de schistes houillers. Le lessivage de ces stériles par les eaux météoriques et l'oxydation des sulfures de fer contenus sont susceptibles de contribuer à l'enrichissement en sulfates et métaux associés de l'aquifère de la craie, principale ressource en eau de la région. Des analyses chimiques

et isotopiques (S & C) ont été effectuées sur des prélèvements d'eau en amont et en aval hydraulique des sites d'étude ainsi que sur la fraction minérale des terrils. Afin de déterminer les modalités d'infiltration des eaux météoriques au sein des terrils, des prospections radiomagnétotelluriques, couplées à des mesures de perméabilité et de granularité ont été effectuées. Les analyses ont permis de mettre en évidence que le lessivage des terrils entraîne un flux d'ions sulfate et de carbone vers l'aquifère de la craie. L'approche géophysique a permis de mettre en évidence un phénomène d'infiltration des eaux météoriques. Elle a montré en outre l'existence de barrières de perméabilité en profondeur. Il apparaît donc que les eaux météoriques, lorsqu'elles s'infiltrent dans le terril, ne peuvent pénétrer à plus de quelques mètres de profondeur. L'existence de zones imperméables, en limitant l'infiltration des eaux en profondeur, limite également la quantité de sulfure potentiellement oxydable et donc la quantité de sulfates entraînée vers l'aquifère de la craie.

Mots clés : terrils houillers, yrite, sulfates, métaux, $\delta^{34}\text{S}$, activité ^{14}C , activité bactérienne, méthode radiomagnétotellurique, perméabilité.

1 – INTRODUCTION

L'extraction de houille dans le bassin minier du Nord-Pas-de-Calais (Nord de la France) a engendré de nombreux résidus solides entreposés à l'air libre sous forme de terrils. Ces terrils sont exposés aux intempéries et les matériaux qui les composent sont altérés par l'action des facteurs météorologiques. Les matériaux (ou « stériles ») entreposés, sont essentiellement composés de schistes houillers et contiennent des sulfures métalliques (pyrite très majoritairement), qui peuvent être oxydés au cours de l'infiltration et la percolation des eaux de pluies. Les sulfates et les métaux ainsi libérés sont susceptibles de migrer et de gagner le substratum des terrils. Dans le bassin minier, les terrils reposent sur des formations de craie d'âge crétacé supérieur, qui contiennent un aquifère constituant la principale ressource en eau de la région. Le contact peut être soit direct, soit par l'intermédiaire de formations argilosableuses cénozoïques de faible puissance : les argiles de Louvil et les sables d'Ostricourt. La météorisation des terrils est donc susceptible d'influencer la qualité chimique des eaux de l'aquifère de la craie, notamment en ce qui concerne la teneur en sulfates et en métaux.

Toutefois, les terrils ne sont pas la seule source de sulfate possible dans l'origine de la minéralisation de l'aquifère de la craie (BERNARD, 1979 ; DROZ, 1985). Il faut aussi prendre en compte :

1. La dissolution des minéraux évaporitiques présents dans la formation des Calcaires carbonifères qui est à l'origine d'eaux fortement minéralisées pouvant localement contaminer l'aquifère de la craie par drainance *per ascensum* ;
2. L'infiltration d'eaux sulfatées issues de la mise en solution du gypse contenu dans la couverture cénozoïque (argiles de Louvil et sables d'Ostricourt) par drainance *per descensum* ;
3. Les ions sulfate d'origine anthropique provenant des rejets et traitement d'eaux usées et/ou des pratiques agricoles.

Le but de cette étude est d'identifier et d'évaluer la part éventuellement prise par les terrils dans la minéralisation sulfatée et métallique de l'aquifère de la craie. Ceci implique d'identifier la signature chimique propre des terrils dans l'aquifère, et d'estimer la quantité de matériaux de terrils lessivables et susceptibles d'alimenter l'aquifère en sulfate et en métaux. L'identification de l'apport de sulfate dissous issu des terrils repose sur une étude de la composition isotopique du soufre et du carbone des fluides. La présence éventuelle de métaux libérés en même temps que les sulfates, a été étudiée par des analyses élémentaires des stériles et des fluides. La détermination de l'épaisseur du matériau concerné par l'infiltration des eaux de pluie a été menée avec des méthodes physiques : détermination des perméabilités et radiomagnétotellurie.

Deux terrils ont été étudiés ; ils sont représentatifs des deux situations rencontrées à l'échelle du bassin minier :

- celle de terrils reposant directement sur la craie ;
- celle de terrils reposant sur les formations cénozoïques très peu perméables, rendant à leur droit l'aquifère de la craie semi-captif (figure 1).

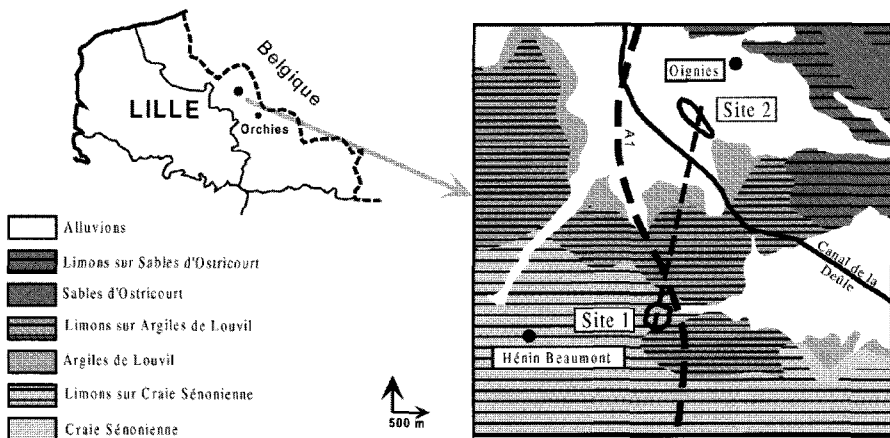


Figure 1 Carte géologique de la zone d'étude montrant la localisation de la coupe illustrée en figure 2.

Geological map of the studied area showing the location of the profile (figure 2).

2 - CONTEXTE GÉOLOGIQUE ET HYDROGÉOLOGIQUE

2.1 Géologie

Le substratum des terrils. La succession lithologique comporte un sous-bassement paléozoïque formé à la base par la formation des Calcaires carbonifères (Dinantien), surmontée par les terrains houillers (Namuro-Westphalien ; PAPROTH *et al.*, 1983a, b). La couverture sédimentaire crétacée repose en discordance sur ce sous-bassement paléozoïque. Le Crétacé, d'une puissance d'environ 150 m, est constitué de marnes et craies (Turonien à Sénonien). Il est

surmonté par quelques mètres à quelques dizaines de mètres d'argiles et de sables (Paléocène à Éocène).

Le site 1 (commune de Hénin-Beaumont), correspond à un terril conique qui repose sur la succession lithostratigraphique suivante (figure 2) :

- à la base, les marnes crayeuses du Turonien moyen et inférieur recouvertes par 70 m de craie blanche séno-turonienne ; la partie sommitale de cette craie est constituée d'un horizon de fragments crayeux emballés dans une matrice silto-crayeuse (5 m d'épaisseur) ;
- au sommet, le terril repose directement sur des silts bruns avec des filets noirâtres argiloschisteux (lehm) reposant sur des limons argilosableux à granules de craie (loess). L'ensemble limoneux peut atteindre 3 à 5 m d'épaisseur.

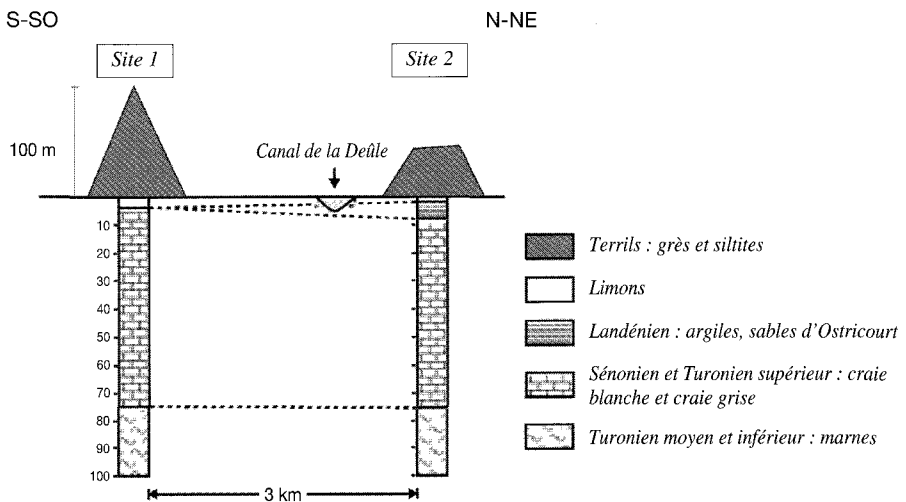


Figure 2 Coupe géologique schématisée des terrains situés au droit des sites d'étude.

La disparition latérale du Landénien n'est pas localisée précisément à l'échelle de la zone d'étude.

Schematic geological section of underlying formations.

The very location of the Landenian pinching out is not known at the scale of the studied area.

Le site 2 (commune d'Oignies) correspond à un terril pseudotabulaire. Le substratum possède une assise crayeuse identique à celle du site 1. Sur cette assise se trouvent les terrains d'âge landénien (Paléocène terminal) représentés à leur base par les argiles de Louvil qui correspondent à une argile plastique à nodules phosphatés et lignite (5-6 m d'épaisseur) et dans leur partie supérieure par les sables d'Ostricourt. Ces sables de faible épaisseur présentent des limites cartographiques imprécises à proximité du terril et sont riches en gypse issu de l'altération de pyrite. Le terril repose directement sur les alluvions récentes de la rivière Deûle, aujourd'hui canalisée. Ces alluvions sont silto-argileuses à sablonneuses avec localement des intercalations de tourbe et de graviers (1 à 2 m d'épaisseur).

Les terrils. Les deux terrils étudiés sont constitués de grès et siltites qui représentent les formations stériles entre lesquelles étaient intercalées les veines de charbon. Ils contiennent également des débris charbonneux : il s'agit de terrils récents, issus de procédés efficaces de séparation des matériaux exploités.

2.2 Hydrogéologie

Dans le bassin minier, l'aquifère de la craie constitue la principale ressource en eau potable de la population. Cette craie est une formation très homogène dont la porosité totale (micro et macroporosité) est de l'ordre de 41-42 %. Entièrement interconnectée, la microporosité est de 40 %, avec une répartition unimodale et centrée sur 0,375 μm du rayon équivalent des pores. La macroporosité (1 à 2 %) est surtout de fissure avec une ouverture de l'ordre du millimètre (VACHIER *et al.*, 1979). L'eau circulant en zone saturée, c'est-à-dire celle disponible au pompage, est localisée dans les réseaux de fissures. Sous les couvertures tertiaires importantes et/ou dans la partie inférieure des formations crayeuses, la pression lithostatique opérant une fermeture du réseau de fissures, l'aquifère de la craie devient moins productif, voire improductif. Ainsi, bien que la craie soit un aquifère puissant, la zone de circulation des eaux est limitée à sa partie supérieure (20 à 40 m).

L'aquifère de la craie renferme une nappe libre ayant pour mur les marnes du Turonien inférieur. Dans la partie nord de la zone d'étude, l'aquifère de la craie devient semi-captif sous les recouvrements des formations cénozoïques argilosableuses peu perméables. La nappe libre de la craie est surmontée d'une zone non saturée plus ou moins importante (de 1 à 2 m dans les vallées jusqu'à 10 m sur les plateaux). Dans cette zone globalement non saturée, la microporosité est à saturation, seule la porosité de fissure est non saturée. Cette dernière peut assurer un rôle de transit des solutés lors de phénomènes pluviométriques importants et par là même, permettre la recharge directe de la nappe (*by-pass*). Hormis ces conditions particulières, l'alimentation de l'aquifère de la craie se fait par la percolation de l'impluvium au travers de la microporosité de la craie avec une vitesse d'infiltration de l'ordre de 0,5 à 0,7 m par an (VACHIER *et al.*, 1987).

L'écoulement général des eaux de l'aquifère de la craie est schématiquement du SO vers le NE. Dans la zone d'étude, la remontée de la surface piézométrique, liée à la diminution des pompages industriels, tend à établir une continuité hydraulique entre la nappe et le réseau hydrographique de surface (canalisé ou naturel). Le canal de la Deûle, situé entre le site 1 et le site 2, pourrait alors jouer le rôle de barrière hydraulique pour les écoulements de la partie supérieure de la nappe (*figure 2*).

3 – MATÉRIEL ET MÉTHODES

3.1 Caractérisation, chimie et hydrochimie

3.1.1 Phase solide

Des échantillons de stériles ont été prélevés en surface des deux terrils et en profondeur. Sur le site 1, 14 échantillons ont été régulièrement espacés jusqu'à 2,5 m, et, sur le site 2, 13 échantillons ont été prélevés tous les mètres environ jusqu'à une profondeur de 12,5 m ; de plus, un échantillonnage à haute résolution (un échantillon tous les 5 cm) a également été mené sur le premier mètre sur les deux sites. Ces échantillons ont fait l'objet de différentes analyses : analyses minéralogiques sur roche totale et sur la fraction argileuse selon la méthode décrite par HOLTZAPFFEL (1985) et MOORE et REYNOLDS (1989), mesures des teneurs en carbone total et soufre total réalisées à l'aide d'un analyseur Carbone-Soufre CS 125 LECO (C : $\pm 0,02$ % ; S : $\pm 0,05$ %), analyse des teneurs en CaCO_3 à l'aide d'un calcimètre Bernard. Les analyses chimiques ont été réalisées par ICP-AES (éléments majeurs) ou ICP-MS (éléments-traces : As, Cd, Co, Cr, Cu, Mo, Ni, Pb, Th, U, V, Zn) au Service de chimie analytique du Centre de recherches en pétrologie-géochimie (CRPG-CNRS, Vandœuvre-les-Nancy). La précision analytique pour les éléments majeurs et mineurs est inférieure à 1 % ; elle est de 5 % pour As, Co, Mo, Ni and U, 10 % pour Cu et 15 % pour Cd.

3.1.2 Phase liquide

Des échantillons d'eaux de surface ont été prélevés dans les mares temporaires du site 2, formées par le ruissellement de l'eau de pluie sur les terrils.

Deux campagnes d'échantillonnage des eaux souterraines ont été réalisées en janvier et février 1999 sur 12 forages et piézomètres atteignant l'aquifère de la craie et situés aux abords immédiats des terrils des deux sites (*figure 3*). Le piézomètre SHS3 n'atteint pas l'aquifère directement mais il se trouve au niveau d'un bassin à cendres baigné par les eaux de la craie. L'identification des caractéristiques hydrogéochimiques de l'aquifère de la craie lorsqu'il est soustrait aux influences des terrils a demandé d'autres prélèvements, distribués le long des lignes de flux naturels (*figure 3*).

Les puits et forages existants, ainsi que les piézomètres ont été, pour la plupart, échantillonnés à l'aide d'une pompe immergée à débit variable. Ainsi, les mesures physicochimiques *in situ* (pH, température, conductivité électrique — CE —, potentiel d'oxydoréduction — Eh —) ont été réalisées en dynamique au sein d'une cellule de mesure isolée de l'atmosphère, assurant des mesures d'Eh représentatives. Toutefois, pour certains piézomètres, l'introduction de la pompe étant impossible, l'échantillonnage s'est fait à l'aide d'une bouteille à prélèvement (en Téflon inerte). Dans ce cas, il n'est pas exclu que les échanges avec l'atmosphère aient modifié les paramètres physicochimiques tels que l'Eh.

Les niveaux piézométriques ont été systématiquement relevés au niveau des sites d'échantillonnage et exprimés en cotes NGF (nivellement généralisé français : altitude par rapport au zéro marin) afin d'identifier localement les lignes d'écoulement des eaux souterraines.

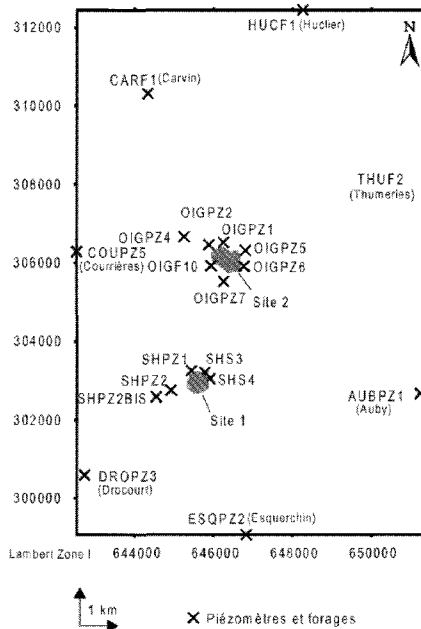


Figure 3 Localisation des sites d'étude et des points de prélèvement d'eau.
Location of studied sites and spots of water sampling.

Comme pour les solides, les compositions élémentaires des eaux de surface et des eaux souterraines ont été analysées. Des analyses isotopiques ($\delta^2\text{H}$ et $\delta^{18}\text{O}$ de l'eau, A^{14}C et $\delta^{13}\text{C}$ du Carbone inorganique total dissous — CITD —, $\delta^{18}\text{O}$ et $\delta^{34}\text{S}$ des sulfates dissous) ont été menées sur les eaux souterraines au Laboratoire d'hydrologie et de géochimie isotopique de l'université Paris XI-Orsay. Seules les données concernant les 2 paramètres A^{14}C et $\delta^{34}\text{S}$ sont reportées ici. Les protocoles analytiques observés sont ceux décrits par EPSTEIN et MAYEDA (1953), COLEMAN *et al.* (1982), MCCREA (1950), THODE *et al.* (1961) et SHAKUR (1982). Les résultats sont reportés selon la notation « δ » conventionnelle, déviation en part pour mille (‰) par rapport au standard VPDB pour le carbone, et au standard CDT pour le soufre. Les incertitudes sur les valeurs de $\delta^{34}\text{S}_{\text{sulfate}}$ sont de $\pm 0,3$ ‰. Les activités ^{14}C ont été mesurées par scintillation liquide (université Paris XI-Orsay) ou par AMS (*Acceleration Mass Spectrometry*; sources graphites, université Paris XI-Orsay, et mesures au Tandétron, Gif-sur-Yvette) et sont exprimées en pour-cent de carbone moderne (pCm).

3.2 Détermination de zones d'infiltration préférentielle et barrières de perméabilité

3.2.1 Méthode radiomagnétellurique (RMT)

Il s'agit d'une méthode électromagnétique de prospection géophysique qui permet la mesure en continu de la résistivité apparente du sous-sol (DUPIS *et al.*, 1995; TEZKAN *et al.*, 1996). La résistivité apparente enregistrée dépend de la nature et de l'état hydrique des couches de terrain étudiées. La méthode est

fondée sur la mesure de l'influence du sous-sol sur les champs électromagnétiques produits par les émetteurs de radiodiffusion. Le choix de la fréquence de radiodiffusion mesurée permet de choisir la profondeur d'investigation. Les profondeurs obtenues sur les profils de RMT ne sont pas des profondeurs vraies : les résistivités apparentes mesurées doivent être étalonnées grâce à des sondages classiques.

Deux prospections RMT ont été réalisées sur le site 2 : la première en septembre 1999 et la seconde en novembre 1999 après une période de pluie importante. Huit profils de résistivité, localisés précisément à l'aide d'un GPS ont été effectués en septembre et 5 de ces profils ont pu être à nouveau étudiés en novembre. La comparaison des profils RMT avant et après une période de pluie significative doit permettre de mettre en évidence des zones d'infiltration préférentielle de l'eau météorique : en effet à nature constante du matériau étudié (granulométrie et porosité), une diminution de la résistivité et donc une augmentation de la conductivité entre les deux passages témoignent d'une infiltration d'eau.

3.2.2 Essais « *Permeafor* »

Ces essais mis au point par le Centre d'études techniques du ministère de l'Équipement, correspondent à l'enfoncement dans le sol, d'une ogive à travers laquelle de l'eau est injectée. Il est ainsi possible, d'une part de mesurer la résistance à l'enfoncement des terrains traversés et, d'autre part de déterminer les variations de perméabilité du sous-sol par la mesure de la quantité d'eau injectée par unité de temps. Parallèlement à la deuxième prospection RMT, 5 essais *Permeafor* ont été réalisés sur le site 2 dans le but de déterminer l'éventuelle existence de zones imperméables en profondeur. Ces essais ont été implantés sur les profils RMT.

3.2.3 Analyse granulométrique

La réalisation de sondages de 3 m effectués à la pelle mécanique a permis un échantillonnage des solides en subsurface à l'endroit précis des essais *Permeafor* (site 2). À chaque point de prélèvement, des échantillons ont été pris environ tous les 30 cm répartis sur une profondeur de 3 m. Chaque fois, 1 à 2 kg de matériau ont été prélevés afin d'obtenir des analyses granulométriques les plus représentatives possible. Les échantillons présentés ici ont subi un tamisage sous eau : colonne de tamis pour la fraction de taille supérieure à 63 μm et granulomètre laser pour la fraction de taille inférieure à 63 μm (instrument Malvern Mastersizer).

4 – CONTRIBUTION DES TERRILS À LA MINÉRALISATION DE L'AQUIFÈRE DE LA CRAIE

4.1 Résultats

4.1.1 Terrils

L'assemblage minéralogique des échantillons, prélevés en surface et en profondeur, est caractérisé par la présence constante de quartz (dominant), de minéraux argileux, et celle occasionnelle de feldspaths. Le cortège argileux est constitué d'illite dominante (50-75 %), de chlorite (15-25 %) et de kaolinite (10-20 %). La répartition de ces espèces minérales est homogène dans l'ensemble des échantillons. Les teneurs en CaCO_3 des échantillons analysés sont inférieures à l'incertitude sur la mesure (1 %). Ainsi, en l'absence de carbonates, les teneurs en carbone total mesurées (LECO) sont assimilées à la teneur en carbone organique des échantillons (figure 4).

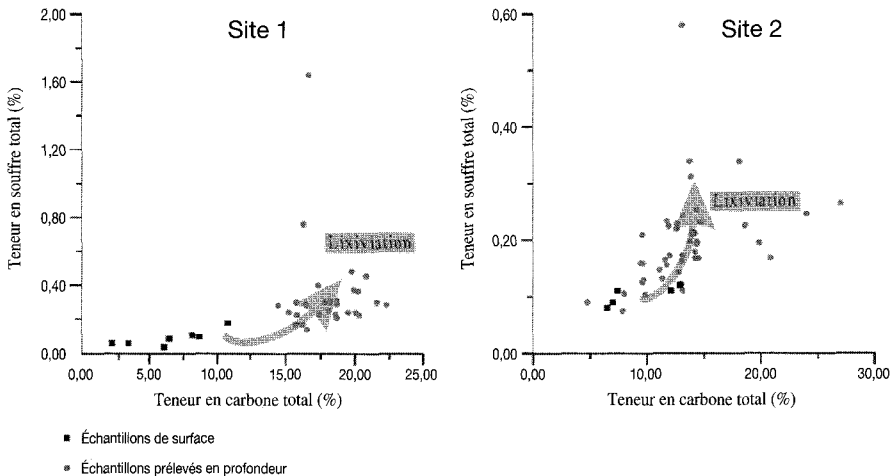


Figure 4 Teneur en soufre total versus teneur en carbone total des échantillons solides prélevés sur les sites 1 et 2.

Total sulfur content versus total carbon content of solids samples (Site 1 and 2).

Pour les 2 sites, on observe une diminution nette des teneurs en carbone et en soufre pour les échantillons de surface (profondeur de prélèvement inférieure à 10 cm). Au-delà de 10 cm de profondeur, aucune tendance n'est décelable (figure 4). La distribution en profondeur des teneurs en métaux ne montre pas de gradient surface-profondeur (Pb et Zn mis à part ; tableau 3, figure 8) avec des valeurs proches de la « moyenne des shales » (WEDEPOHL, 1991). Le site 1 présente un enrichissement important en plomb et zinc en surface (dans les 20 premiers centimètres). Sur le site 2, ce phénomène est moins marqué. Cet enrichissement, qui n'est visible pour aucun autre élément chalcophile que le plomb et le zinc, est à rattacher à l'apport éolien de particules provenant d'usines sidérurgiques situées à proximité de la zone d'étude.

4.1.2 Eaux de ruissellement et celles de l'aquifère de la craie

Les eaux prélevées dans les mares temporaires du site 2 présentent des teneurs en sulfate de $1\,400\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$. Cette teneur est à mettre en regard des efflorescences blanches observées autour de ces mares après évaporation (AGLAVE, 2000). Ces teneurs sont expliquées par l'enrichissement en sulfate des eaux de ruissellement.

À l'échelle de l'aquifère de la craie, les concentrations en sulfate sont de 210 et $310\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ à l'amont hydraulique du site 1 ; elles atteignent des valeurs de 670 à $1\,500\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ à l'aval. Pour le site 2, l'augmentation de concentration en sulfate à l'aval est moindre, mais les teneurs atteintes à l'aval hydraulique (de l'ordre de $200\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$) sont supérieures à celles de l'aquifère de la craie en écoulement naturel, en dehors des influences du bassin minier (figure 5). La mesure du potentiel d'oxydoréduction (tableau 1) met en évidence qu'à l'aval du site 1, les conditions sont oxydantes, alors qu'elles sont réductrices à l'aval du site 2, où la nappe est semi-captive.

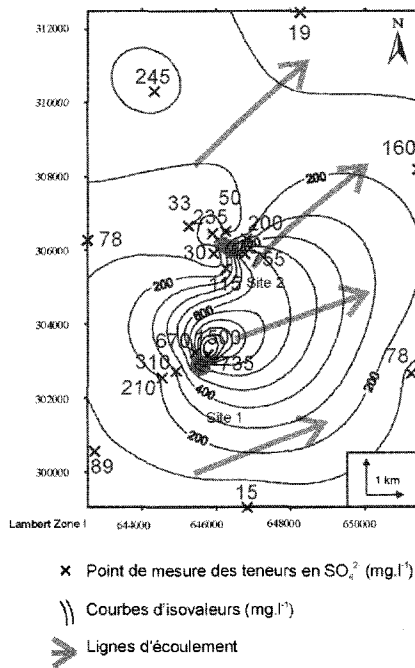


Figure 5 Carte d'isovaleurs de sulfates (en $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$).
Isovalue map of sulphates ($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$).

Pour ce qui est de la composition isotopique des eaux de l'aquifère de la craie, les piézomètres implantés là où les terrils reposent directement sur la craie donnent des valeurs de $\delta^{34}\text{S}$ comprises entre -6 ‰ à -2 ‰ (figure 6). Ce sont des valeurs typiques des sulfures des schistes houillers du bassin (BERNARD, 1979 ; TRIBOVILLARD *et al.*, rapport inédit). En revanche, là où les terrils reposent sur les assises cénozoïques, on constate en plus des valeurs de $\delta^{34}\text{S}$ caractéristiques des sulfates issus de la lixiviation des schistes houillers, une

Tableau 1 Mesures *in situ* des paramètres hydrochimiques.**Table 1** In situ measurements of hydrochemical parameters.

Location	Échantillon	Prof (en m)	pH	T° (°C)	Eh (mV)	Conductivité ($\mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$)
Amont-site 1	SHPZ2BIS (P)	13,56	7,02	12,5	428	1 250
	SHPZ2 (P)	12,41	6,76	12,2	336	1 540
Aval-site 1	SHPZ1 (P)	9,85	6,93	11,6	365	2 070
	SHS3 (B)	11,00	7,11	12,0	–	3 220
	SHS4 (B)	15,87	8,01	13,4	–	2 730
Amont-site 2	OIGPZ7 (P)	10,41	7,06	12,6	250	915
	OIGF10 (P)	9,06	7,41	12,3	– 43	454
Lateral-site 2	OIGPZ4 (P)	8,85	7,29	11,7	– 96	665
	OIGPZ6 (P)	9,23	6,85	11,7	9	2 350
Aval-site 2	OIGPZ2 (B)	2,65	7,12	10,7	480	1 603
	OIGPZ5 (P)	12,35	6,94	11,7	– 61	1 380
	OIGPZ1 (P)	7,05	6,91	12,3	– 13	881
Piézomètres extérieurs	AUBPZ1 (P)	6,52	7,5	11,6	350	513
	CARF1 (P)	5,9	7,24	12,1	379	1 406
	COUPZ5 (P)	6,62	6,65	11,8	212	975
	DROPZ3 (P)	13,3	6,66	13,4	– 100	1 411
	ESQPZ2 (P)	18,79	7,02	10,8	522	713
	HUCF1 (P)	18,02	8,21	11,8	506	541
	THUF2 (P)	–	7,43	14,6	495	1 145

P : Prélèvement effectué à l'aide de la pompe ; B : Échantillonnage réalisé à l'aide d'une bouteille à prélèvement.

P: Sampling made with the pump; B: Sampling made with a sampling bottle.

valeur de – 20 ‰, caractéristique du soufre contenu dans les sables d'Ostricourt (BERNARD, 1979).

L'activité ^{14}C des eaux prélevées est sensiblement plus faible en aval des 2 sites qu'en amont (*figure 7*). Cette diminution est expliquée par un apport de carbone ancien, issu des terrils et isotopiquement « mort », c'est-à-dire dépourvu de tout ^{14}C , qui viendrait se mélanger aux eaux de l'aquifère de la craie. Enfin, l'analyse des eaux de l'aquifère de la craie montre un enrichissement en Ca, Mg et Sr, et HCO_3^- à l'aval des terrils (*tableaux 2a, b*). En revanche, les autres métaux ne montrent aucune tendance interprétable entre l'amont et l'aval des terrils, valable à la fois pour les deux sites d'étude.

4.2 Interprétations

La diminution des teneurs en soufre et carbone des phases solides, reconvenue en surface des terrils est interprétée comme un départ en solution d'ions SO_4^{2-} (provenant de l'oxydation des sulfures) et de carbone. La stabilité des teneurs en soufre et carbone sur le profil vertical à partir de 10 cm de profondeur suggère que la lixiviation et le départ du soufre et du carbone sont limités

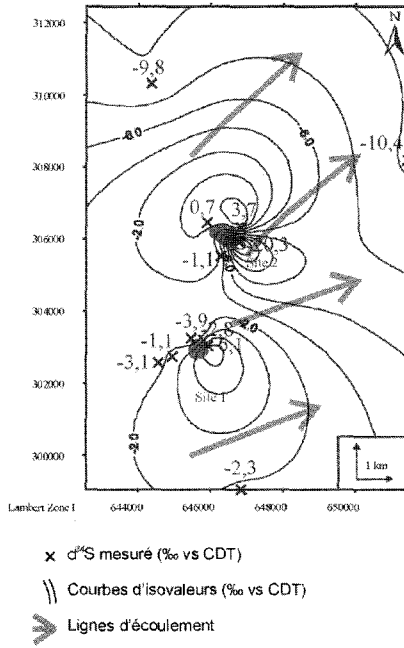


Figure 6 Carte d'isovaleurs de $\delta^{34}\text{S}$.
Isovalue map of $\delta^{34}\text{S}$.

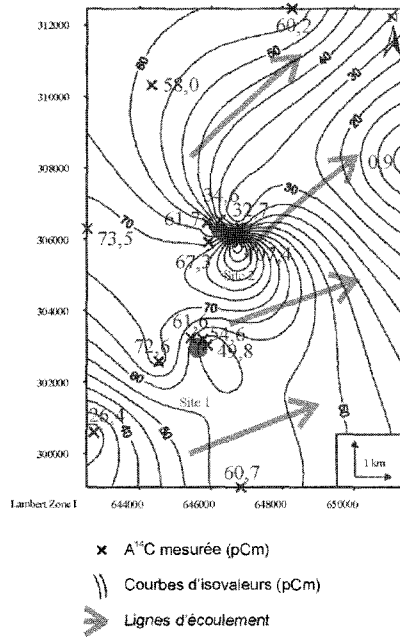


Figure 7 Carte d'isovaleurs d'activité ^{14}C .
Isovalues map of ^{14}C activity.

Tableau 2a Teneurs en éléments majeurs des eaux échantillonnées dans l'aquifère de la craie.**Table 2a** Major-element contents of chalk-aquifer water samples.

Location	Référence	Mg ²⁺ mg/L	Ca ²⁺ mg/L	Na ⁺ mg/L	K ⁺ mg/L	Cl ⁻ mg/L	SO ₄ ²⁻ mg/L	NO ₃ ⁻ mg/L	HCO ₃ ⁻ mg/L	Si mg/L	Al mg/L	Fe mg/L	Mn mg/L
Amont - Site 1	SHPZ2bis	13,04	154,92	95,96	9,06	62,20	210,00	59,31	365,79	7,50	0,29	0,12	traces
	SHPZ2	13,28	233,02	98,06	6,08	74,30	310,00	48,69	-	7,92	0,32	0,24	0,05
Aval - Site 1	SHPZ1	39,18	204,41	227,75	9,74	78,40	670,00	42,05	438,40	8,00	0,29	0,26	traces
	SHS3	135,80	578,62	65,80	52,43	35,80	1500,00	1,77	777,79	6,54	0,98	0,23	0,02
	SHS4	113,20	51,37	435,06	20,30	39,60	735,00	16,37	950,88	3,38	0,07	0,42	0,21
Amont - Site 2	OIGPZ7	9,86	116,89	51,05	8,32	54,70	115,00	16,82	322,48	7,25	0,25	1,08	0,10
	OIGF10	6,73	37,72	44,27	8,93	29,40	30,00	0,44	187,57	2,81	1,49	0,00	0,03
Lateral - Site 2	OIGPZ4	10,01	90,68	56,54	8,00	51,60	33,00	41,16	484,38	8,71	0,26	2,08	0,08
	OIGPZ6	94,31	317,47	135,21	5,90	134,40	755,00	0,44	622,61	13,15	traces	0,35	0,08
Aval - Site 2	OIGPZ2	51,71	192,31	88,39	3,21	134,80	235,00	0,44	526,05	7,46	0,12	0,00	traces
	OIGPZ5	32,12	156,75	99,98	8,61	80,90	200,00	0,88	661,56	13,31	0,03	0,00	traces
	OIGPZ1	19,63	120,34	34,32	6,04	40,00	50,00	0,44	-	12,63	0,13	0,18	traces
Piézomètres extérieurs	AUBPZ1	7,23	95,64	44,52	17,89	44,50	78,00	0,88	267,31	8,68	0,08	0,28	0,02
	CARF1	22,08	172,98	90,74	24,02	97,10	245,00	0,88	423,51	7,10	0,10	0,67	0,20
	COUPZ5	11,27	125,81	64,72	6,88	60,10	78,00	26,56	379,36	4,32	0,30	0,14	0,06
	DROPZ3	13,34	164,21	156,36	4,96	60,70	89,00	0,44	762,37	16,50	0,30	0,21	0,03
	ESQPZ2	10,07	111,08	18,78	5,27	34,90	15,00	44,71	323,12	7,87	traces	0,00	traces
	HUCF1	21,88	54,32	13,85	17,41	15,80	19,00	1,32	274,54	9,30	0,02	0,00	0,08
	THUF2	21,58	44,56	153,16	17,61	74,50	160,00	2,21	388,47	8,78	0,44	0,23	traces

Tableau 2b Teneurs en éléments-trace des eaux échantillonnées dans l'aquifère de la craie.
Table 2b Trace-element contents of chalk-aquifer water samples.

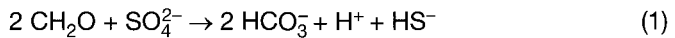
Location	Référence	As ppb	Cd ppb	Co ppb	Cr ppb	Cu ppb	Mo ppb	Ni ppb	Pb ppb	Sr ppb	U ppb	V ppb	Zn ppb
Amont - Site 1	SHPZ2bis	0,42	0,03	0,42	9,98	1,91	0,53	9,42	0,34	503,05	1,32	0,31	15,22
	SHPZ2	0,51	0,00	9,41	1,07	2,82	0,70	28,40	1,78	642,47	1,43	0,76	16,82
Aval - Site 1	SHPZ1	0,72	0,00	0,80	1,31	2,53	0,44	19,95	0,26	538,62	2,33	0,38	19,31
	SHS3	0,42	0,84	0,45	2,40	1,86	10,53	76,86	0,00	3 130,98	25,83	0,45	167,26
	SHS4	1,15	0,06	0,48	5,74	3,67	0,95	9,03	0,62	629,77	0,39	1,43	10,58
Amont - Site 2	OIGPZ7	1,16	0,00	0,77	0,79	0,29	0,61	8,38	0,42	417,75	0,70	0,19	7,34
	OIGF10	0,04	0,03	0,19	0,36	0,42	1,49	4,64	0,22	260,33	0,01	0,16	29,10
Lateral - Site 2	OIGPZ4	1,22	0,00	0,31	0,77	0,24	0,47	6,27	0,46	405,20	0,00	0,36	10,15
	OIGPZ6	0,83	0,00	0,93	1,74	1,25	0,29	10,02	0,00	5 542,49	2,45	0,64	4,00
Aval - Site 2	OIGPZ2	0,23	0,00	0,24	1,83	1,43	0,46	4,18	0,23	1 573,49	8,48	0,73	6,59
	OIGPZ5	0,18	0,00	0,32	1,20	0,38	0,22	6,50	0,02	2 698,68	0,42	0,22	5,64
	OIGPZ1	0,37	0,00	0,16	0,58	0,27	0,21	5,14	0,06	2 267,26	0,00	0,08	5,08
Piézomètres extérieurs	AUBPZ1	3,31	0,06	15,70	0,45	1,26	3,24	47,56	0,75	541,82	1,79	2,11	11,44
	CARF1	0,51	0,06	33,12	1,52	2,73	1,56	25,04	0,30	1 511,89	2,38	0,31	8,32
	COUPZ5	0,47	0,00	3,51	0,94	1,23	0,29	11,25	0,23	327,19	1,57	0,35	10,85
	DROPZ3	2,71	0,03	1,04	2,59	0,58	0,70	8,37	0,00	587,68	0,00	0,21	16,97
	ESQPZ2	0,14	0,03	0,99	1,14	0,88	0,39	8,02	0,16	343,38	1,09	0,56	12,06
	HUCF1	0,60	0,03	1,59	0,60	0,49	1,08	6,03	0,10	1 544,15	0,10	0,32	2,84
	THUF2	0,23	0,00	0,01	0,61	2,43	0,03	0,38	0,47	2 883,62	0,00	0,25	4,30

à la surface et la proche subsurface du terril (< 10 cm ; *figure 4*). Ce départ de C et S à partir de la phase solide est confirmé par l'analyse des eaux des mares temporaires alimentées par les eaux de ruissellement : celles-ci présentent un net enrichissement en ions sulfate. Ce phénomène trouve un écho à l'échelle de l'aquifère de la craie : un « panache » peu étendu traduisant un enrichissement en ions sulfates, est visible à l'aval hydraulique des deux terrils (*figure 5*).

L'utilisation des isotopes du soufre comme marqueurs des différentes sources de sulfate permet d'identifier deux sources d'apport au niveau des sites d'étude (*figure 6*) : une source « terril » avec un $\delta^{34}\text{S}$ faiblement négatif, correspondant à une oxydation des sulfures contenus dans les schistes houillers (BERNARD, 1979) et une autre source avec un $\delta^{34}\text{S}$ fortement négatif, correspondant au lessivage du gypse contenu dans les sables d'Ostricourt (DROZ, 1985). Cette seconde source est reconnue uniquement au niveau du site 2 où les formations cénozoïques sont présentes.

La mesure du potentiel d'oxydoréduction (*tableau 1*) met en évidence qu'à l'aval du site 1, les conditions sont oxydantes (Eh positif), les sulfates issus de la lixiviation du terril ne peuvent donc pas être réduits postérieurement à leur transfert dans la nappe. En revanche, les conditions sont réductrices à l'aval du site 2 (Eh négatif) où la nappe est semi-captive. Ceci provoque une réduction partielle des sulfates dissous : l'augmentation du $\delta^{34}\text{S}$ des sulfates en solution à l'aval du site 2 traduit un fractionnement et un « alourdissement » isotopique du réservoir. Ces observations sont à mettre en relation avec une activité bactérienne (qui provoque le fractionnement observé en métabolisant préférentiellement les isotopes légers du soufre).

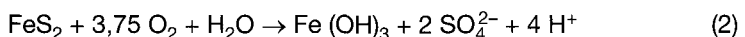
La réduction bactérienne des sulfates est vraisemblablement favorisée par un important apport de carbone organique en relation avec la lixiviation des terrils (*figure 7*). Cet apport de carbone a été visualisé par l'analyse de l'activité ^{14}C des eaux prélevées, sensiblement plus faible en aval des sites qu'en amont. Cet apport de carbone reflète sans doute un transfert de matière organique dissoute des terrils vers l'aquifère de la craie. La présence de cette matière organique peut stimuler l'activité des bactéries sulfatoréductrices, selon l'équation :



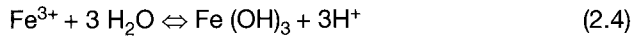
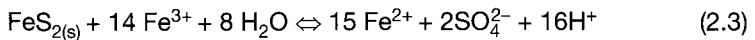
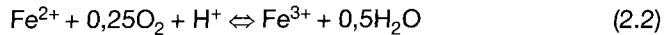
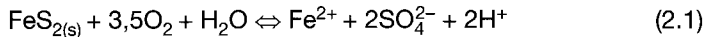
Enfin, l'augmentation des teneurs en ions HCO_3^- et en Ca^{2+} , Mg^{2+} et Sr^{2+} à l'aval des terrils est mise en regard de la légère diminution de pH observée. Elle est interprétée comme le résultat de la dissolution de la craie qui constitue l'aquifère.

4.2.1 Métaux et drainage acide minier neutralisé

Le drainage acide minier (*Acid mine drainage* ou AMD) résulte de l'oxydation des sulfures et est un phénomène commun et bien documenté de la géologie minière (ROSE et CRAVOTTA, 1998 ; GAMMAER, 1998 ; BULLOCK *et al.*, 1997 ; YU, 1996 ; SCHÜRING *et al.*, 1997 ; WEBB et SASOWSKY, 1994 ; BERGER *et al.*, 2000). L'oxydation de la pyrite est une réaction exothermique que l'on peut écrire de la façon suivante :



Les réactions suivantes correspondent à différents stades de la réaction complète (ROSE et CRAVOTTA, 1998) :



Les réactions (2.2) et (2.3) peuvent être catalysées par différentes espèces de bactéries (e.g. *Thiobacillus*). L'AMD peut donc être provoquée par l'oxydation de la pyrite contenue dans les schistes et les veines de charbon.

La diminution de pH associée au départ de sulfates à partir des terrils confirme l'existence d'un drainage acide minier sur les sites étudiés. Cependant, la diminution de pH observée (*tableau 1*) est très faible car les eaux issues de la lixiviation des terrils s'infiltrent dans un milieu tamponné : l'aquifère de la craie. Les seuls témoins de ce « drainage acide minier neutralisé » sont d'une part la quantité de sulfate exportée et d'autre part l'augmentation des teneurs en calcium, magnésium, bicarbonate et strontium, observés à l'aval des terrils et issus de la solubilisation des carbonates (*tableaux 2a, b*).

L'étude hydrochimique présentée ci-dessus a permis de mettre en évidence un départ de sulfate à partir des terrils vers l'aquifère de la craie. Cette constatation a amené à s'interroger sur la quantité de sulfate potentiellement mobilisable : quelles sont les modalités d'infiltration des eaux météoriques dans ces édifices ? Quelle épaisseur de stérile peut être lessivée ? Afin de tenter de répondre à ces questions et, à terme, d'estimer la quantité de sulfate potentiellement libérable sur les sites d'étude, différentes approches ont été menées et notamment la détermination de zones d'infiltration préférentielle par la méthode RMT et la mesure de la perméabilité dans le but de déterminer l'existence ou l'absence de barrières de perméabilité en profondeur.

5 – ESTIMATION DE L'IMPORTANCE DE L'INFILTRATION DANS LES TERRILS

5.1 Résultats

5.1.1 Zones d'infiltration préférentielle

On observe globalement une diminution de la résistivité apparente mesurée le long des profils de RMT entre le mois de septembre et le mois de novembre 1999. Ceci témoigne d'une infiltration des eaux météoriques sur presque toute la longueur des profils. Un exemple des profils RMT comparés est illustré en *figure 9*. La méthode RMT donne accès à la mesure de la résistivité apparente, mais on ne peut pas, en toute rigueur, considérer qu'il s'agisse de véritables sondages analogues aux sondages électriques classiques, car cette méthode ne permet pas de déterminer de façon fiable la profondeur d'investigation (DUPIS *et al.*, 1995).

Tableau 3a Teneurs en éléments-traces mesurées sur les échantillons prélevés en profondeur.**Table 3a** Table of trace-element contents with depth (solid samples).

Échantillon Site 1 prof	Profondeur m	As ppm	Cd ppm	Co ppm	Cr ppm	Cu ppm	Mo ppm	Ni ppm	Pb ppm	Th ppm	U ppm	V ppm	Zn ppm
SH280199D	-0,10	9,5	1,5	17,8	121,5	49,0	1,3	56,3	86,3	16,7	3,9	158,2	254,0
SH280199E	-0,30	9,1	0,2	16,8	130,4	47,7	1,1	55,8	32,3	18,9	4,1	167,5	78,5
SH280199F	-0,50	8,7	0,2	16,2	138,5	40,7	0,9	58,1	35,5	18,4	4,1	168,1	85,1
SH280199G	-0,72	5,1	0,2	15,3	125,1	39,1	0,9	52,0	29,0	18,6	3,8	156,8	67,3
SH280199H	-0,90	7,0	0,2	13,3	129,5	40,1	1,1	52,1	30,5	18,3	3,7	159,5	71,2
SH280199I	-1,07	7,4	0,2	14,6	130,3	40,6	1,3	52,1	27,7	16,4	3,7	162,8	75,4
SH280199J	-1,26	7,2	0,2	16,1	132,3	44,5	1,2	53,8	30,1	16,5	3,5	165,9	74,5
SH280199K	-1,42	9,1	0,1	22,5	132,5	37,7	1,1	63,3	29,2	16,2	3,7	158,5	81,8
SH280199L	-1,88	20,4	0,1	16,5	134,3	40,9	1,0	55,7	28,5	15,4	3,3	167,3	74,5
SH280199M	-2,00	14,6	0,2	17,8	134,2	39,5	0,9	56,1	28,0	15,1	3,3	165,1	74,0
SH280199N	-2,09	8,6	0,1	15,8	135,2	40,8	0,9	57,6	29,2	17,7	3,6	164,3	77,0
SH280199O	-2,19	9,1	0,3	17,7	136,3	44,9	1,0	60,8	35,2	17,9	3,8	173,2	87,0
SH280199P	-2,30	13,5	0,2	19,4	134,7	39,7	1,2	59,7	31,9	17,5	3,8	163,1	76,2
SH280199Q	-2,45	7,5	0,1	14,3	132,1	43,3	1,0	50,0	29,4	17,7	3,7	163,4	68,8

Tableau 3a Teneurs en éléments-traces mesurées sur les échantillons prélevés en profondeur.

Table 3a Table of trace-element contents with depth (solid samples).

Échantillon Site 2 prof	Profondeur m	As ppm	Cd ppm	Co ppm	Cr ppm	Cu ppm	Mo ppm	Ni ppm	Pb ppm	Th ppm	U ppm	V ppm	Zn ppm
29040IG5	- 0,2	7,0	0,6	15,0	130,2	44,6	0,9	51,6	66,6	18,1	3,8	166,3	124,9
29040IG6	- 1	4,5	0,1	17,8	136,8	47,3	0,7	57,4	34,8	19,8	3,9	169,5	72,5
29040IG8	- 2	3,7	0,1	14,4	142,6	41,7	0,8	50,7	34,2	20,5	4,1	184,8	71,6
29040IG10	- 3	3,8	0,2	17,1	114,7	36,5	0,8	47,1	29,7	16,9	3,8	148,9	72,0
29040IG12	- 4	4,4	0,2	13,5	134,1	38,7	0,5	50,8	40,5	19,8	4,0	176,9	120,8
29040IG14	- 5	22,0	0,1	15,6	118,0	35,3	1,5	48,9	27,5	16,7	3,5	148,8	76,8
29040IG16	- 6	8,6	0,2	14,8	131,9	47,9	0,8	51,7	35,4	18,9	3,9	163,2	82,0
29040IG18	- 7	5,7	0,2	15,2	143,7	47,2	1,2	57,4	35,3	18,2	3,7	181,4	76,2
29040IG20	- 8	4,2	0,2	15,7	145,3	48,5	0,7	55,4	42,8	18,8	3,8	179,2	90,7
29040IG22	- 9	3,6	0,2	15,3	140,4	41,1	0,6	56,7	29,8	17,4	3,4	175,5	81,3
29040IG24	- 10	4,8	0,1	19,8	121,6	37,2	0,9	59,8	28,7	14,3	3,1	149,8	85,6
29040IG26	- 11	3,4	0,2	14,2	142,4	49,8	0,6	54,5	30,0	17,9	3,5	177,7	80,2
29040IG28	- 12	3,7	0,2	14,4	140,8	49,5	0,6	55,8	33,8	17,0	3,5	181,9	70,0

Tableau 3b Teneurs en éléments-traces mesurées sur les échantillons prélevés à haute résolution.**Table 3b** Table of trace-element contents at high resolution (solid samples).

Échantillon	Profondeur cm	As ppm	Cd ppm	Co ppm	Cr ppm	Cu ppm	Mo ppm	Ni ppm	Pb ppm	Th ppm	U ppm	V ppm	Zn ppm
SH 3/11/99 A	- 5	11,5	5,5	15,7	133,0	38,9	2,2	51,7	384,9	13,6	3,4	174,8	327,1
SH 3/11/99 B	- 10	9,9	1,5	17,3	137,4	34,1	2,4	49,8	119,6	13,5	3,8	182,8	224,0
SH 3/11/99 C	- 15	9,6	1,1	22,6	150,5	37,3	1,9	62,5	74,6	16,9	4,6	189,6	197,1
SH 3/11/99 D	- 20	9,3	0,3	16,7	129,3	25,1	1,7	40,4	40,9	15,7	4,1	161,1	91,0
SH 3/11/99 E	- 25	9,9	0,0	17,2	138,8	27,2	1,3	49,3	35,3	16,6	4,0	183,3	87,8
SH 3/11/99 F	- 30	106,6	0,0	12,3	130,6	24,2	1,5	36,9	35,2	16,3	4,1	162,3	62,9
SH 3/11/99 G	- 35	8,5	0,0	16,4	134,8	29,4	1,4	49,6	32,6	16,2	4,2	168,9	85,1
SH 3/11/99 H	- 40	6,7	0,0	17,7	126,4	24,4	1,6	45,8	31,3	15,8	3,9	156,1	92,8
SH 3/11/99 I	- 45	9,9	0,0	15,3	127,4	25,7	1,3	42,0	31,6	17,1	4,6	160,2	81,7
SH 3/11/99 J	- 50	7,9	0,0	14,9	133,7	23,9	1,1	41,3	33,6	15,8	3,9	167,1	71,9
SH 3/11/99 K	- 55	8,0	0,3	15,8	145,2	33,3	1,4	46,6	33,1	16,0	3,8	189,1	81,8
SH 3/11/99 L	- 60	9,9	0,0	17,0	127,8	36,1	1,4	50,2	33,7	14,3	3,8	164,7	80,5
SH 3/11/99 M	- 65	84,7	0,4	15,7	120,3	29,7	1,7	44,4	31,8	15,3	4,2	152,7	69,0
SH 3/11/99 N	- 70	23,5	0,3	18,0	111,9	26,6	1,5	44,1	35,1	14,7	3,8	143,8	73,8
SH 3/11/99 O	- 75	11,6	0,6	18,5	137,3	27,5	1,5	46,0	40,6	14,7	3,7	166,8	91,0
SH 3/11/99 P	- 80	7,4	0,4	17,3	123,9	28,3	1,2	43,1	33,7	14,9	3,6	154,6	86,6
SH 3/11/99 Q	- 85	9,9	0,6	16,8	122,0	28,9	2,0	41,4	36,4	14,2	3,7	149,7	76,5
SH 3/11/99 R	- 90	12,2	0,4	15,9	119,4	28,1	1,4	39,1	36,3	14,2	3,8	148,4	76,2
SH 3/11/99 S	- 95	12,5	1,2	17,9	136,2	32,1	1,1	49,0	64,0	16,1	4,0	166,0	83,7
SH 3/11/99 T	- 100	10,9	0,4	17,8	131,7	32,8	1,6	47,1	40,9	15,8	3,9	161,1	88,1

Tableau 3b Teneurs en éléments-traces mesurées sur les échantillons prélevés à haute résolution.**Table 3b** Table of trace-element contents at high resolution (solid samples).

Échantillon	Profondeur cm	As ppm	Cd ppm	Co ppm	Cr ppm	Cu ppm	Mo ppm	Ni ppm	Pb ppm	Th ppm	U ppm	V ppm	Zn ppm
OIG 3/11/99 Z	0	6,0	0,3	15,7	129,6	35,0	1,1	49,3	54,3	15,4	3,7	157,4	92,7
OIG 3/11/99 A	- 5	6,5	0,3	18,7	136,3	42,9	1,0	60,5	41,1	15,7	3,9	159,8	111,3
OIG 3/11/99 B	- 10	5,4	0,3	16,6	140,2	39,2	1,0	50,8	43,2	16,1	3,9	170,3	101,7
OIG 3/11/99 C	- 15	5,9	0,4	16,6	137,9	31,9	1,0	49,5	45,8	16,8	3,9	168,1	99,8
OIG 3/11/99 D	- 20	5,5	0,4	16,4	141,6	34,9	1,1	47,9	45,2	15,3	3,6	180,9	104,0
OIG 3/11/99 E	- 25	11,9	0,0	26,4	147,9	35,2	1,4	74,5	46,6	14,8	3,7	166,6	122,0
OIG 3/11/99 F	- 30	5,1	0,0	16,2	138,0	187,2	1,1	48,0	47,2	14,1	3,5	174,8	94,2
OIG 3/11/99 G	- 35	4,5	0,0	16,3	144,4	37,2	1,1	46,7	42,8	15,0	3,6	185,2	98,8
OIG 3/11/99 H	- 40	5,7	0,3	16,9	146,5	31,4	1,0	46,6	45,7	16,6	3,9	186,6	89,2
OIG 3/11/99 I	- 45	5,8	0,5	14,1	149,3	28,6	0,9	49,3	70,0	16,0	4,0	185,3	112,4
OIG 3/11/99 J	- 50	5,8	1,1	16,1	145,4	30,8	1,0	52,3	79,3	16,5	4,1	177,4	145,6
OIG 3/11/99 K	- 55	10,2	0,8	16,0	138,7	27,6	0,9	45,6	69,2	15,9	4,0	171,0	106,0
OIG 3/11/99 L	- 60	4,1	0,3	18,2	129,6	26,6	0,7	52,3	30,5	14,6	3,5	152,2	94,9
OIG 3/11/99 M	- 65	4,0	0,4	13,8	108,3	27,4	1,3	38,6	38,4	13,3	3,4	134,8	79,5
OIG 3/11/99 N	- 70	6,2	0,0	15,2	124,2	28,2	1,0	40,2	36,5	15,7	3,6	157,0	79,4
OIG 3/11/99 O	- 75	12,6	0,0	16,4	138,0	89,8	0,9	45,2	35,6	16,7	4,0	180,0	78,7
OIG 3/11/99 P	- 80	4,8	0,0	15,2	125,2	29,9	0,9	46,8	30,6	13,9	3,4	156,0	83,1
OIG 3/11/99 Q	- 85	5,2	0,0	21,6	147,2	79,2	0,9	57,4	32,1	16,2	3,6	183,6	93,6
OIG 3/11/99 R	- 90	5,3	0,0	17,3	146,4	34,8	1,2	54,1	31,7	15,3	3,6	183,2	81,8
OIG 3/11/99 S	- 95	4,7	0,0	16,6	139,3	28,1	1,0	44,6	30,6	14,7	3,6	168,4	82,4
OIG 3/11/99 T	- 100	9,5	0,0	17,3	144,6	33,1	1,0	50,1	27,7	15,1	3,6	180,6	83,1

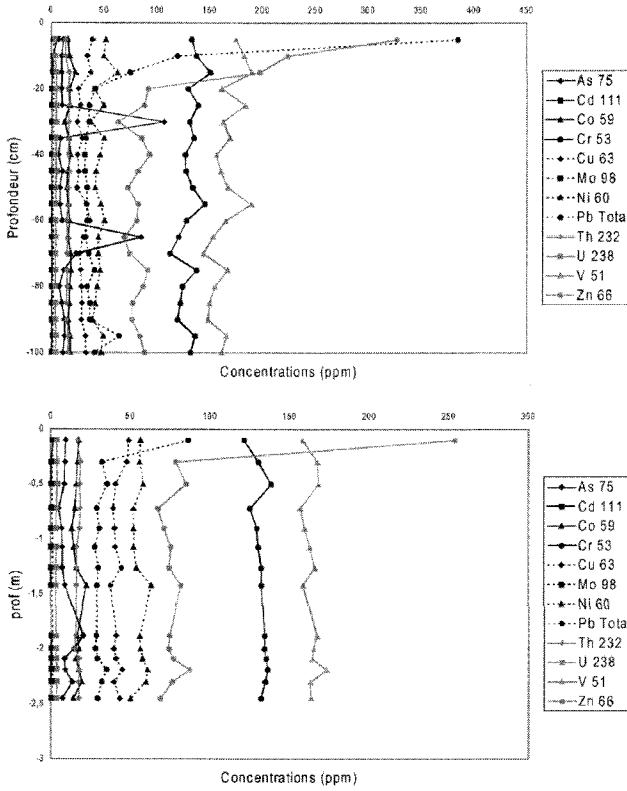


Figure 8 Analyses chimiques des échantillons solides prélevés en profondeur sur le site 1.
Chemical analysis of solid sampled at depth on site 1.

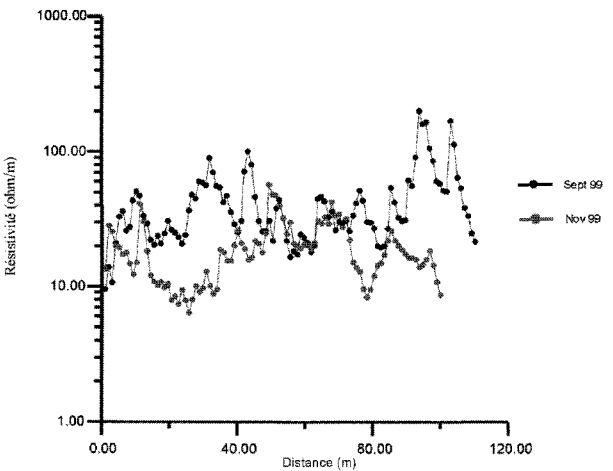


Figure 9 Exemple de profil RMT réalisé sur le site 2.
Example of a RMT profile realised at site 2.

Afin de déterminer si les eaux météoriques ont la possibilité de s'infiltrer en profondeur dans le terril, des mesures de perméabilité couplées à un échantillonnage des trois premiers mètres de matériaux ont été effectuées.

5.1.2 Barrières de perméabilité

Les essais Permeafor réalisés montrent que, globalement, le matériau est peu à très peu perméable (*figure 10*). Ils visualisent en outre l'existence de zones imperméables dont l'épaisseur varie de quelques centimètres à plus d'un mètre et qui s'échelonnent entre la surface et plus de 15 m de profondeur (profondeur maximale atteinte par les essais Permeafor ; *figure 10*). Il est impossible de tenter de corrélérer ces barrières entre elles, les essais étant trop éloignés les uns des autres et le mode de mise en place des matériaux limitant l'extension latérale des « corps sédimentaires ».

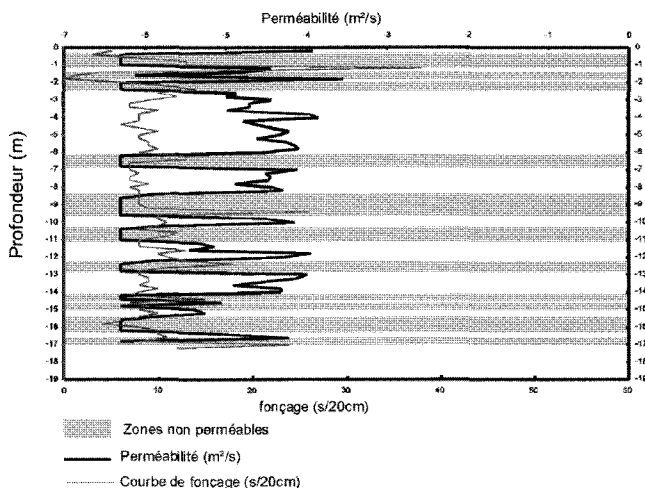


Figure 10 Exemple d'un essai « Permeafor » réalisé sur le site 2.

Example of a "Permeafor" test realised at site 2.

Afin de déterminer l'origine du caractère imperméable des barrières mises en évidence, les échantillons prélevés au lieu précis de chaque essai Permeafor ont fait l'objet d'une analyse granulométrique. À titre d'exemple, pour l'essai Permeafor OIG5, les échantillons prélevés à 0,3, 1,3, 1,8 et 2,7 m sont situés en zones perméables et les stériles échantillonnés à 0,6, 0,9 et 2,3 m correspondent à des barrières de perméabilité. Les analyses minéralogiques ne montrent pas de différences significatives d'un échantillon à l'autre. Il en est de même pour les analyses granulométriques : les particules de taille inférieure à 63 μm représentent entre 4 et 8 % de la masse totale tamisée et dans cette classe granulométrique, les argiles ne représentent que 23 à 28 % (*tableau 4*). De même, les barrières de perméabilité, visibles sur les autres essais Permeafor ne montrent généralement pas de différences granulométriques.

Tableau 4a Analyses granulométriques de la fraction supérieure à 63 µm (%).**Table 4a** Grain-size analysis of the > 63 µm fraction (%).

Nom échantillon	< 63 µm	Sable très fin	Sable fin	Sable moyen	Sable grossier	Sable très grossier	Granules	Cailloux
OIG5-0,30m	4	1	1	2	2	3	4	84
OIG5-0,60m	6	2	2	3	4	5	6	73
OIG5-0,90m	5	2	2	3	4	5	7	71
OIG5-1,30m	8	2	3	4	4	6	9	64
OIG5-1,80m	8	1	2	3	4	5	7	69
OIG5-2,30m	7	2	3	4	5	6	7	66
OIG5-2,70m	5	2	2	4	3	5	6	73

Tableau 4b Analyses granulométriques de la fraction inférieure à 63 µm (%).**Table 4b** Grain-size analysis of the < 63 µm fraction (%).

Nom échantillon	Argile	Silt très fin	Silt fin	Silt moyen	Silt grossier
OIG5-0,30m	28	20	18	17	17
OIG5-0,60m	27	19	17	17	19
OIG5-0,90m	25	19	18	17	20
OIG5-1,30m	26	19	19	18	18
OIG5-1,80m	29	20	19	18	15
OIG5-2,30m	29	20	18	17	15
OIG5-2,70m	29	22	21	17	10

5.2 Interprétations

Les résultats mettent en évidence que les matériaux superficiels sont imbibés en période de pluie (diminution de la résistivité), mais les eaux ne peuvent pas s'infiltrer du fait du caractère peu perméable d'ensemble et du fait de l'existence de barrières de perméabilité. Ces barrières ne peuvent avoir qu'une extension latérale limitée mais elles sont présentes en grand nombre à chaque site d'essai Permeafor. Il est donc probable que ces barrières sont interdigitées et qu'elles limitent très fortement l'infiltration des eaux météoriques au-delà du premier mètre sous la surface.

La granulométrie des stériles n'est pas seule responsable du caractère plus ou moins perméable des stériles analysés, l'agencement des grains ainsi que la compaction des niveaux en profondeur doivent également jouer un rôle.

Il apparaît donc que les eaux météoriques, lorsqu'elles s'infiltrent dans le terriil, ne peuvent pénétrer à plus de quelques mètres de profondeur, suivant la position de la première barrière de perméabilité. L'existence de ces zones imperméables, en limitant l'infiltration des eaux en profondeur, limite également la quantité de sulfure potentiellement oxydable et donc la quantité de sulfates entraînée vers l'aquifère de la craie.

6 – CONCLUSION

Deux terrils de charbon ont été étudiés dans le bassin minier du Nord-Pas-de-Calais (France). La lixiviation d'origine météorique de la partie superficielle de ces édifices provoque l'exportation d'ions sulfate dans l'aquifère de la craie. Grâce à l'étude de la composition isotopique des fluides, l'influence des terrils sur la minéralisation sulfatée de l'aquifère peut être clairement distinguée de celle des terrains cénozoïques parfois intercalés entre l'aquifère et la base des terrils. Aucune autre source de sulfates ne semble devoir être invoquée sur la zone étudiée.

En même temps que des ions sulfate, les terrils exportent dans l'aquifère du carbone organique dissous. Ces deux constituants permettent une activité bactérienne (bactéries sulfatoréductrices) qui est sensible là où la couverture cénozoïque rend l'aquifère de la craie captif. Dans ce cas en effet, des conditions réductrices se développent dans l'aquifère et soustraient à la nappe une part des ions sulfate qu'elle peut contenir, créant ainsi un phénomène d'auto-épuration de l'aquifère là où celui-ci est captif.

L'acidité résultant de l'oxydation de la pyrite est neutralisée lors de son infiltration dans l'aquifère de la craie (milieu tampon). Le principal témoin de ce « drainage acide minier neutralisé » est alors l'augmentation des teneurs en sulfate à l'aval des deux terrils étudiés (accompagnée par l'augmentation des teneurs en éléments signant la dissolution de la craie). Les terrils n'exportent pas de métaux vers l'aquifère de la craie de façon détectable.

Les mesures sur le terrain ont permis de déterminer l'existence de zones d'infiltration préférentielle et de barrières de perméabilité en profondeur. Il apparaît donc que les eaux météoriques, lorsqu'elles s'infiltrent dans le terril, ne peuvent pénétrer à plus de 1 m, voire quelques mètres de profondeur. Les barrières de perméabilité, en limitant l'infiltration des eaux en profondeur, limitent également la quantité de sulfure potentiellement oxydable et donc la quantité de sulfate entraînée vers l'aquifère de la craie. Sur cette base de raisonnement, et en ne prenant en considération que les terrils étudiés ici, il est raisonnable de penser que le transfert de sulfates des terrils vers la nappe phréatique ne va pas prendre d'ampleur. Le phénomène doit même pratiquement disparaître, une fois que la faible épaisseur de matériau des terrils concernée par la météorisation aura été lessivée.

REMERCIEMENTS

Cette étude a bénéficié du soutien financier ou technique de charbonnages de France, du Pôle de compétence sites et sols pollués du Nord-Pas-de-Calais, du CETE du Nord-Pas-de-Calais, et de la FRE 2255 CNRS-Université Lille 1. Nous remercions Philippe RECOURT, Deny MALENGROS et Françoise DUJARDIN pour leur aide technique, ainsi que les deux relecteurs anonymes qui ont permis d'améliorer notre manuscrit.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- AGLAVE S., 2000. Étude de la diagenèse précoce de dépôts miniers : les terrils, Université de Lille, Rapport de DEA, 51 p.
- BERGER A.C., BETHKE C.M., KRUMHANSL J.L., 2000. A process model of natural attenuation in drainage from a historic mining district. *Applied Geochem.*, 15, 655-666.
- BERNARD D., 1979. Contribution à l'étude hydrogéochimique de l'aquifère de la craie dans le Nord de la France. État et acquisition du chimisme de l'eau, *Thèse université de Lille*, 179 p.
- BULLOCK S.E.T., BELL F.G., MARSH C.A., 1997. The environmental impacts associated with a coal mine in the witbank coalfield, Republic of South Africa. *In: Enginering Geology and the Environment*, The Greek National Group of IAEG, Athens, Greece. 2327-2333.
- CAMMAER C., 1998. Coal mining and groundwater in Flanders (Belgium). *Aard. Meded.*, 9, 83-96.
- COLEMAN M.L., SHEPERD T.J., DURHAM J.J., ROUSE J.E., MOORE G.R., 1982. Reduction of water with zinc for hydrogen isotope analysis. *Anal. Chem.*, 54, 993-995.
- DROZ B., 1985. Influence de la structure et de la nature des terrains du Valenciennois sur la qualité de l'aquifère de la craie (Nord de la France). Apport du krigage à l'hydrochimie régionale et gestion qualitative des eaux souterraines, *Thèse université de Lille*.
- DUPIS A., CHOQUIER A., BOSSUET G., 1995. La radio magnétotellurique : une nouvelle méthode de la géophysique appliquée. *Bull. Soc. Géol. France*, 66 (2), 231-242.
- EPSTEIN S., MAYEDA T., 1953. Variation of ^{18}O content of waters from natural sources. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 4, 213-224.
- HOLTZAPFFEL T., 1985. Les minéraux argileux, préparation, analyse diffractométrique et détermination, 136 p.
- MC CREA J., 1950. On the isotope chemistry of carbonates and paleotemperature scales. *J. Chem. Phys.*, 18, 849-857.
- MOORE D.M., REYNOLDS R.C., 1989. X-ray diffraction and the identification and analysis of clay minerals, 322 p.
- PAPROTH E., CONIL R., BLESS M.J.M., BOONEN P., BOUCKAERT J., CARPENTIER N., COEN M., DELCAMBRE B., DEPRIJCK C., DEUZON S., DREESEN R., GROESSENS E., HANCE L., HENNEBERT M., HIBO D., HAHN G.R., HISLAIRE O., KASIG W., LALOUX M., LAUWERS A., LEES A., LYS M., 1983a. Bio- and lithostratigraphic subdivisions of the Dinantian in Belgium: a review. *Ann. Soc. géol. Belgique*, 106, 185-239.
- PAPROTH E., DUSAR M., BLESS M.J.M., BOUCKAERT J., DELMER A., FAIRON-DEMARET M., HOULLEBERGS E., LALOUX M., PERARD P., SOMERS Y., STREEL M., 1983b. Bio- and lithostratigraphical subdivisions of the Silesian in Belgium: a review. *Ann. Soc. géol. Belgique*, 106, 241-283.
- ROSE A.W., CRAVOTTA III C.A., 1998. Geochemistry of coal mine drainage. *In: The Pennsylvania Department of Environmental Protection (ed.), Coal mine drainage prediction and pollution prevention in Pennsylvania*, 1-22.
- SCHÜRING J., KÖLLING M., SCHULZ H.D., 1997. The potential formation of acid mine drainage in pyrite-bearing hard-coal tailings under water-saturated conditions: an experimental approach. *Environmental Geology*, 31, 59-65.
- SHAKUR A., 1982. ^{34}S and ^{18}O variations in terrestrial sulphates, University of Calgary, Thesis.
- TEZKAN B., GOLDMAN M., GREINWALD S., HÖRDT A., MÜLLER I., NEUBAUER F.M., ZACHER G., 1996. A joint application of radiomagnetotellurics and transient electromagnetics to the investigation of a waste deposit in cologne (Germany). *Applied Geophysics*, 34, 199-212.
- THODE H.G., MONSTER J., DUNFORD H.B., 1961. Sulphur isotope geochemistry. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 25, 159-174.
- TRIBOVILLARD N., BARBECOT F., DENIMAL S., 1998. Traçage chimique et isotopique des eaux souterraines en relation avec les eaux de lixiviation de

- terrils. Rapport inédit Charbonnages de France, 16 p.
- VACHIER P., CAMBIER P., PROST R., 1979. Structure d'un milieu poreux : la craie. *Ann. Agro*, 30 (3), 247-263.
- VACHIER P., DEVER L., FONTES J.Ch., 1987. Mouvements de l'eau dans la zone non saturée et alimentation de l'aquifère de la craie de champagne (France) : Approches isotopique et chimique. *In : Int. Symp. on Isotope Hydrology, I.A.E.A*, Vienne.
- WEBB J.A., SASOWSKY I.D., 1994. The interaction of acid mine drainage with a carbonate terrane: evidence from the Obey River, north-central Tennessee. *J. of Hydrology*, 161, 327-346.
- WEDEPOHL K.H., 1991. The composition of the upper earth's crust and the natural cycles of selected metals. *In: VCH-Verlagsgesellschaft (ed.), Metals and their compounds in the environment*, 3-17.
- YU J.-Y., 1996. Pollution of Osheepcheon Creek by abandoned coal mine drainage in Dogyae area, eastern part of Samcheok coal field, Kangwon-Do, Korea. *Environmental Geology*, 27, 286-299.