

Conséquence de la chronologie des pluies
sur la rétention de particules dans les sols
structurés et insaturés

IV.1. Introduction

Le transfert vertical de particules de sol est connu pour faciliter le transport de polluants adsorbés à leur surface vers les nappes d'eau souterraine ou le transport de particules polluantes en elles-mêmes (exemple: virus, bactéries, nanoparticules) pouvant causer des risques sanitaires importants pour la nappe d'eau (McCarthy and Zachara, 1989 ; Gerba and Smith, 2005). C'est aussi le moteur d'un des processus majeurs de l'évolution des sols : le lessivage (Mackeague and Arnaud, 1969; Jamagne and Pedro, 1981). Ce dernier résulte de deux sous-processus : l'un de départ, supposé massif, de particules dans les horizons de surface (éluviation), l'autre de rétention également importante de particules en subsurface (illuviation).

Transfert et rétention de particules ont été étudiés dans des milieux poreux modèles, souvent saturés, et constitués de sable, de billes de verre, de sédiments ou plus rarement d'agrégats de sol recomposé. Les facteurs mis en évidence comme affectant la rétention et les mécanismes sous-jacents sont la filtration physique des particules (Bradford et al., 2006), la rétention par les forces colloïdales, elles-mêmes contrôlées par la force ionique, le pH et la valence des contre-ions présents en solution (Torkzaban et al., 2006, 2008b; a; Bradford et al., 2007; Chowdhury et al., 2012), la sédimentation dans des zones de faible courant (Gao et al., 2006), la sorption aux interfaces eau-air (Wan and Wilson, 1994; Sirivithayapakorn and Keller, 2003) ou eau-air-solide (Crist et al., 2004; Gao et al., 2008; Sang et al., 2013) ou encore la rétention dans des films d'eau d'épaisseur inférieure à la taille des particules (Wan and Tokunaga, 1997; Lenhart and Saiers, 2002).

Des modèles ont été établis pour prendre en compte tout ou partie de ces mécanismes de rétention. Le modèle le plus usité est la théorie de la filtration (Yao et al., 1971) et ses améliorations ultérieures (Logan et al., 1995; Tufenkji and Elimelech, 2004). Il permet de prédire la rétention de particules dans certains cas simplifiés (absence de barrière de potentiel et milieu poreux modèle saturé et homogène). Cependant ce modèle n'est, par hypothèse, pas applicable dans les sols structurés, dans lesquels des écoulements gravitaires non saturés sont susceptibles de se produire à travers un faible nombre de chemins d'écoulements préférentiels

(macropores constitués par exemple de terriers de vers de terre, ou résultant de la décomposition de racines), court-circuitant ainsi la plus grande partie des pores les plus fins (matrice). Dans les sols, où les conditions physico-chimiques varient transitoirement (Jarvis et al., 1999; Schelde et al., 2002; Bin et al., 2011), l'attention s'est surtout portée sur la mobilisation de particules autochtones du sol. La rétention de particules a été comparativement peu étudiée, et même si elle a été quantifiée dans une fourchette de 25 à 90 % par Cornu et al. (2014) la rétention est encore mal comprise et mal modélisée (Jarvis et al., 1999; Finke et al., 2014).

Il est probable que les mécanismes de rétention décrits dans les milieux modèles soient également actifs dans les sols structurés, mais leur importance relative est vraisemblablement différente (Jacobsen et al., 1997; Jacobs, 2007). En effet, la structure du sol semble jouer un rôle important dans la rétention. Des études phénoménologiques montrent - au champ et dans des colonnes de sol non remanié et insaturé - que les particules sont fortement retenues (i) dans les premiers centimètres sous la surface du sol, (ii) sur les parois des macropores à travers lesquelles l'eau s'est écoulée et (iii) dans la matrice proche (Cumbie and McKay, 1999; Driese and McKay, 2004; Burkhardt et al., 2008; Cey et al., 2009; Passmore et al., 2010; Nielsen et al., 2011).

Par ailleurs, au champ, les sols subissent une succession de cycles de mouillage-séchage. La chronologie des pluies - et plus particulièrement la durée de la période sèche entre deux pluies - contrôle l'étendue de trois processus (drainage gravitationnel, évaporation, et redistribution de l'eau des chemins d'écoulement préférentiel vers la matrice) qui affectent la teneur en eau initiale des chemins d'écoulements préférentiels au début de la pluie suivante. Il a été montré que ces variations de teneur en eau contrôlent en partie la mobilisation de particules autochtones (Schelde et al., 2002 ; Majdalani et al., 2008 ; Michel et al., 2010). Ces variations sont aussi susceptibles d'influer sur la répartition et les quantités des particules retenues dans le sol. Ceci n'a pas été étudié jusqu'à présent à notre connaissance dans un sol structuré.

Dans cette étude, nous avons pour objectif de quantifier l'effet de la chronologie d'une succession de pluies identiques (durée, intensité, composition chimique de l'eau) - mais séparées par des périodes sèches de durées différentes - sur la rétention de particules allochtones (microsphères fluorescentes) contenues

dans l'eau de pluie, dans des colonnes de sol non remanié et non-saturé. Une méthodologie originale en science du sol, reposant sur la cytométrie de flux est employée pour dénombrer les microsphères fluorescentes présentes dans les effluents. Elle permet aussi de quantifier la fraction de ces microsphères adsorbées sur des particules naturelles du sol, ainsi que la remobilisation - au cours d'une pluie - de microsphères retenues lors de pluies précédentes. Ces informations, ainsi que le suivi du comportement hydrique des colonnes et de la physico-chimie des effluents nous permettent de proposer un modèle conceptuel permettant d'expliquer les variations de rétention observées lorsque la durée de la période sèche augmente de 5 à 1200 heures. L'importance relative de ce mécanisme – comparée à d'autres affectant aussi la rétention de particules dans les sols – sera discutée, ainsi que les conséquences environnementales de la remobilisation de particules précédemment retenues.

IV.2. Matériels et méthodes

Le principe de notre approche expérimentale consiste à réaliser une succession de pluies simulées sur des colonnes de sol non remanié, ces pluies étant espacées d'une durée variable. Chaque pluie contient des microsphères (i.e. traceurs) dont le dénombrement précis dans les effluents des colonnes permet de quantifier la rétention par rapport à la quantité injectée dans la pluie.

IV.2.1. Colonnes de sol non remanié : échantillonnage et préparation

Trois colonnes de sol non remanié (12 cm de diamètre intérieur et 15 cm de haut) ont été prélevées dans un horizon E de luvisol développé sur loess (WRB, 2006) dont les caractéristiques sont favorables au processus d'illuviation (Quénard et

al., 2011; Cornu et al., 2014). Les colonnes ont été prélevées entre 35 et 50 cm de profondeur dans un champs cultivé à Ruillé sur Loir sur le lieu-dit « la Pilotière » (France, X= 471090 and Y= 2316012; coordonnées en Lambert 2) au printemps 2013. Le luvisol sélectionné a été caractérisé en détails par Cornu et al., (2014). Le Tableau II-1 résume ses principales caractéristiques. Des vers de terre ont été observés lors du prélèvement, ils ont été électrocutés afin d'éviter toute perturbation de la structure des colonnes avant le début de l'expérimentation. Les colonnes ont été conservées dans des sacs plastiques fermés hermétiquement, à 5°C au réfrigérateur avant l'expérimentation, 8 mois plus tard. Au préalable, chaque colonne a été collée sur une grille en PVC perforée (1 mm par 1 mm) et une embase en PVC.

IV.2.2. Dispositif expérimental

Le simulateur de pluie consiste en un réservoir cylindrique se terminant par 57 aiguilles hypodermiques (25 gauge), distribuées selon une maille carrée sur la surface de ce réservoir, et qui permettent d'appliquer l'eau de pluie en haut de la colonne. Une pompe à impulsion est connectée à ce réservoir et permet de contrôler l'intensité de la pluie (Majdalani et al., 2008a). Le diamètre des gouttes générées est proche de 2 mm et les aiguilles sont placées 10 cm au-dessus de la surface du sol. La surface du sol est laissée nue, mais l'impact des gouttes de pluie est limité car la distance entre la surface du sol et les aiguilles est faible. Le bas de l'embase supportant la colonne est placé sur un entonnoir permettant de récolter les effluents. Durant chaque infiltration, le poids de l'eau de drainage (effluent) est pesé en continu et permet de dresser les hydrogrammes de drainage (flux d'eau versus temps). Les effluents récoltés à l'aplomb de l'entonnoir sont échantillonnés durant l'ensemble de la manipulation jusqu'à l'arrêt du drainage. La fréquence de l'échantillonnage a été adaptée en fonction de la vitesse de drainage. La concentration en particules autochtones du sol est déterminée par un spectrophotomètre UV-visible par atténuation de la lumière à 400 nm (Varian, Carry 50). Une courbe de calibration reliant la concentration en particules autochtones et la densité optique est réalisée au préalable (Majdalani et al., 2008a). La concentration en microsphères a été mesurée en utilisant un cytomètre de flux (voir paragraphes suivants) et la conductivité des

effluents a été mesurée au moyen d'une électrode standard (VWR pHenomenal C0 3000H). Toutes les manipulations sont réalisées à la température constante de 22 °C.

IV.2.3. Procédure expérimentale

Un ensemble préliminaire de 5 infiltrations (1 heure d'irrigation à une intensité constante de 20 mm h^{-1} , et une pluie à la concentration de $5 \times 10^{-5} \text{ M CaCl}_2$) a été effectué sur chaque colonne afin d'atténuer les stress mécaniques subis par les colonnes lors de leur extraction. Le drainage a été laissé libre en bas des colonnes. Entre deux évènements pluvieux les colonnes sont emballées dans des sacs en plastique non hermétiques pour limiter l'évaporation (Michel et al., 2010).

Les colonnes de sol ont ensuite été soumises à 7 pluies successives séparées par des pauses de durée variable. Le tableau 2 regroupe la chronologie des pluies successives pour les trois colonnes. Chaque pluie consiste en l'application d'une solution de $5 \times 10^{-5} \text{ M CaCl}_2$ à une intensité de $20.7 \pm 1.1 \text{ mm h}^{-1}$ durant une heure. La solution appliquée contient une suspension de microsphères fluorescentes monodisperse de $0.5 \mu\text{m}$ de diamètre. Le nombre moyen de microsphères injectées dans chaque pluie est de $3.7 \times 10^9 \pm 1.1 \times 10^9$ microsphères (équivalent à une concentration $C_0 = 1.6 \times 10^{10} \pm 4.4 \times 10^9$ microsphères L^{-1}). Ces microsphères, dont les caractéristiques sont rassemblées tableau 3, présentent des groupes carboxylates chargés négativement et une mobilité électrophorétique négative sur une large gamme de force ionique ($10^{-5} - 10^{-3} \text{ M CaCl}_2$). Elles restent stables en suspensions sur cette gamme. Trois types de microsphères – différant uniquement par le type de fluorophore utilisé, voir tableau 3 - sont utilisées au cours de la succession de pluies. Cela permet d'identifier la présence de microsphères ayant été introduites dans la colonne lors de pluies n , et recueillies dans les effluents lors des pluies $n+1$ et $n+2$ (détails ci-dessous). Ces microsphères sont teintées dans la masse, les différents fluorophores ne modifient pas leurs propriétés de surface. Toute l'installation expérimentale est précautionneusement nettoyée et contrôlée entre chaque pluie afin d'éviter un mélange de microsphères d'une pluie à l'autre.

Tableau IV-1 Chronologie des pluies successives et couleurs des microsphères appliquées correspondantes.

Évènement pluvieux #	Microsphères appliquées	Durée de la Pause (heure)		
		Colonne 1	Colonne 2	Colonne 3
1	Fluoresbrite® 641	5	5	5
2	purple	23	23	23
3	Fluoresbrite® YG	48	48	48
4	Fluoresbrite® 641	118	118	148,5
5	purple	335	335	306
6	Fluoresbrite® YG	644	644	670
7	Fluoresbrite® 641	1200	1200	1200

Tableau IV-2 Principales caractéristiques des microsphères.

Nom des microsphères	Fabriquant	Taille (μm) ^z	Mobilité électrophorétique ($\text{m}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$) ^x	Excitation/émission optimale (nm)	Excitation effective (nm)	Filtre optique (nm) ^y	Position du détecteur
Purple	Spherotech Inc.	0.45 (0.0103)	-2,49 (0,21)	590/620	561	610/20	FL4
Fluoresbrite® YG	Polysciences Inc.	0.5 (0.015)	-2,29 (0,23)	441/486	488 et 405	530/30 450/50	FL1 et FL11
Fluoresbrite® 641	Polysciences Inc.	0.5 (0.015)	-2,59 (0,13)	641/662	633	670/14	FL8
dragon green	Bangs laboratories Inc.	0.51 (nd)	nd	480/520	488 et 405	530/30 450/50	FL1 et FL11

^x Mesurée à 20°C dans de l'eau ultrapure, valeur moyenne (\pm écart type)

^y Bande passante centrée sur la première valeur, et dont la largeur mesure la deuxième valeur

^z Diamètre indiqué par le fabriquant, valeur moyenne (\pm écart type)

IV.2.4. Mesures en cytométrie de flux

La cytométrie de flux, grâce à un dispositif de focalisation hydrodynamique de l'échantillon, permet de caractériser individuellement les particules d'une suspension. Des caractéristiques physiques sont enregistrées pour chaque événement analysé : i) l'intensité de la fluorescence (axes FL) et ii) la diffusion de lumière à 90° (Side Scattering, SSC-A) et iii) la diffusion de lumière aux petits angles (Forward Scattering, FSC-A). Les valeurs de fluorescence et de diffusion de lumière sont calculées par le cytomètre pour chaque événement, en multipliant l'intensité de

fluorescence (ou de la lumière diffusée) par la durée du passage de la particule devant le détecteur. La diffusion de la lumière (SSC-A et FSC-A) dépend de façon complexe de la taille, de(s) l'indice(s) de réfraction des matériaux composant la particule ainsi que de leur forme (Mishchenko et al., 2002). Les microsphères dans les effluents ont été dénombrées grâce à un cytomètre de flux BD LSRFortessa™. Ce cytomètre de flux possède quatre lasers émettant à 405, 488, 561 et 633 nm permettant d'exciter les fluorophores, et de dispositifs de détection associés (filtres, photomultiplicateurs). Les lasers d'excitation et les filtres associés utilisés pour détecter chaque type de microsphère sont détaillés tableau 3.

Toutes les mesures de cytométrie de flux ont été réalisées moins de 24h après l'échantillonnage des effluents. Les échantillons destinés à la mesure des concentrations en microsphères ont été préparés en ajoutant 50 µL d'effluent de drainage à 50 µL de microsphères de calibration (microsphères « dragon green ») de concentration connue, et dilués dans 2 mL d'eau ultrapure. L'ajout de microsphères de calibration permet de mesurer précisément le volume d'échantillon analysé par le cytomètre. Les échantillons sont ensuite homogénéisés juste avant la mesure. La mesure dure jusqu'à ce 10000 microsphères « dragon green » de calibration aient été dénombrées (en moyenne 90 secondes).

IV.2.5. Stratégie de dénombrement et incertitudes associées

L'acquisition ainsi que le traitement des données ont été réalisés pour tous les échantillons d'effluent à l'aide du logiciel BD FACSDiva fourni par le constructeur. Une stratégie de dénombrement a été élaborée afin de quantifier les microsphères de chaque couleur indépendamment les unes des autres et des particules de sol. Les microsphères analysées dans cette étude ayant systématiquement une SSC-A supérieure à 2×10^{-3} unités arbitraires [a.u.], une première étape a consisté à ne pas prendre en compte l'ensemble des évènements ayant une SSC-A inférieure à cette valeur. L'ensemble des évènements dénombrés est scindé en sous populations

d'intérêt dans des espaces de fluorescence à une ou deux dimensions selon les fluorophores. Chaque point de la Figure IV-1 (environ 200000 par échantillon) représente un événement (i.e. une particule ou un agrégat de particules) analysé par le cytomètre. Lorsque les fluorophores sont détectés uniquement dans un canal de fluorescence (exemple « purple »), les sous populations de microsphères d'intérêt sont séparées par de simples bornes sur l'histogramme de fluorescence. Dans l'espace de fluorescence FL 1 / FL 11 pour les microsphères YG, (Figure IV-1a) les sous populations sont matérialisées par des rectangles. Les particules autochtones du sol et le bruit de la mesure (impuretés dans l'eau des échantillons par exemple) se situent dans une zone l'espace de fluorescences FL 1 / FL 11 (Figure IV-1a) distincte de celles des microsphères, avec des intensités proches de 0 selon les deux axes. En revanche, les microsphères se distinguent clairement pour des intensités de fluorescence plus importantes et distinctes d'un type de microsphère à l'autre.

Les événements peuvent également être discriminés en analysant leur fluorescence et leur diffusion de lumière à 90°, dans un dans un espace SSC-A vs. Fluorescence (Figure IV-1b et 1c). La population de microsphères YG de la figure Figure IV-1a se subdivise en groupes distincts par leur intensité de fluorescence et par leur SSC-A. Ces groupes d'évènements sont caractéristiques de microsphères seules, homo-agrégées en doublets (intensité de fluorescence et SSC-A deux fois plus élevées), en triplets, voire en multiplets (Rollié and Sundmacher, 2008, 2010). Lorsqu'un échantillon contenant le même type de microsphères est mélangé avec des particules autochtones du sol (Figure IV-1c), on observe un étalement des sous populations de microsphères seules, de doublets et multiplets, selon l'axe de SSC-A. Cet étalement pour une fluorescence constante, correspond à une modification de la taille des événements analysés par le cytomètre. Nous interprétons cet étalement comme une hétéro-agrégation entre des microsphères et des particules autochtones du sol.

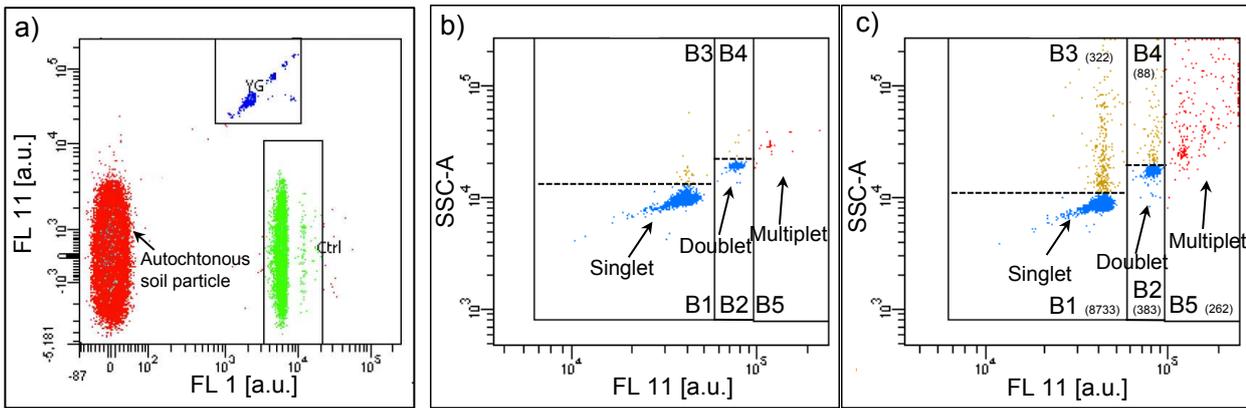


Figure IV-1 Stratégies de dénombrement des microsphères dans les effluents des colonnes a) Stratégie de dénombrement dans un double espace de fluorescence FL 11 / FL 1 pour un échantillon d'effluent contenant des microsphères YG, dragon green et des particules autochtones du sol. b) Stratégie de dénombrement dans un double espace SSC-A / FL 11 pour distinguer les microsphères seules, en doublets, en multiplets (pour un échantillon contenant uniquement des microsphères YG dans cet exemple). Dans les zones B1 et B2 sont dénombrées respectivement les microsphères seules et les doublets. c) Stratégie de dénombrement dans un double espace SSC-A / FL 11 pour distinguer les microsphères seules, en doublets, en multiplets et les microsphères YG adsorbées aux particules autochtones du sol (pour un échantillon contenant des microsphères YG et des particules de sol dans cet exemple). Outre les particules enregistrées dans B1 et B2, des particules sont dénombrées en B3 et B4 et correspondent respectivement aux microsphères seules et en doublets adsorbées à des particules autochtones du sol. La zone B5 correspond aux triplets et multiplets seuls ou adsorbées à des particules autochtones du sol. Le nombre d'évènements est indiqué entre parenthèse.

IV.2.6. Calcul des concentrations en microsphères

Pour chaque échantillon analysé par le cytomètre, nous obtenons Nb_{calib} , le nombre de microsphères de calibration dénombrées dans l'échantillon et $Nb_{microsphere}$, le nombre de microsphères d'intérêt total dénombrées dans l'échantillon (i.e. le nombre de microsphères contenue dans B1+B2+B3+B4+B5 (Figure IV-1)).

L'incertitude Δn sur le dénombrement des microsphères au cytomètre de flux ($\Delta n = \Delta Nb_{microsphere}$ ou ΔNb_{calib}) est évaluée en considérant que les n microsphères d'une sous population d'intérêt sont distribuées selon une loi binomiale de paramètres N et P . Ces microsphères sont individualisées parmi la totalité des particules dénombrées N lors de l'analyse de l'échantillon. $P = n/N$ représente la probabilité que la particule analysée soit une particule d'intérêt (Waite and Shou, 2012; Vaux, 2014). L'incertitude sur n dans ce cas est :

$$\Delta n = \left(\sqrt{NP(1-P)} \right) \quad eq. (1)$$

Le nombre cumulé $N_{inj}(i)$ de microsphères apportées par la pluie lors du prélèvement de l'échantillon i est calculé de la manière suivante :

$$N_{inj}(i) = I * C * t \quad eq. (2)$$

Avec I l'intensité de la pluie ($L h^{-1}$) ; C la concentration en microsphère d'intérêt dans la pluie apportée (nombre L^{-1}) mesurée au cytomètre et t la durée écoulée entre le début de la pluie et le prélèvement de l'échantillon i .

Pour chaque échantillon d'effluent i nous calculons N_{eff} , le nombre de microsphères dénombrées dans l'échantillon d'effluent i :

$$N_{eff}(i) = \left(\frac{C_{calib} * V_{sample\ cyto} * Nb_{microsphere}}{Nb_{calib}} \right) * \left(\frac{V_{effluent}}{V_{effluent\ cyto}} \right) \quad eq. (3)$$

Avec i , le rang de l'échantillons d'eau drainée ; $V_{sample\ cyto}$, le volume de l'échantillon préparé pour l'analyse au cytomètre (L) ; C_{calib} , la concentration de microsphère dragon green de calibration (nombre L^{-1}) ; $V_{effluent}$, le volume de l'échantillon d'eau drainée (L) ; $V_{effluent\ cyto}$, le volume d'effluent prélevé pour préparer l'échantillon analysé au cytomètre (L).

L'incertitude sur N_{inj} est évaluée de la façon suivante :

$$\Delta N_{inj}(i) = \left(\frac{\Delta Nb\ microsphere}{Nb\ microsphere} + \frac{\Delta Nb\ calib}{Nb\ calib} + \frac{\Delta V_{sample}}{V_{sample}} + \frac{\Delta C\ calib}{C\ calib} + \frac{\Delta V\ effluent\ cyto}{V\ effluent\ cyto} + \frac{\Delta I}{I} + \frac{\Delta V_{inj}}{V_{inj}} \right) * N_{inj} \quad eq. (4)$$

L'incertitude sur N_{eff} est évaluée de la façon suivante :

$$\Delta N_{eff}(i) = \left(\frac{\Delta Nb\ microsphere}{Nb\ microsphere} + \frac{\Delta Nb\ calib}{Nb\ calib} + \frac{\Delta V_{sample}}{V_{sample}} + \frac{\Delta V\ effluent\ cyto}{V\ effluent\ cyto} + \frac{\Delta V\ effluent}{V\ effluent} \right) * N_{eff} \quad eq. (5)$$

Pour chaque échantillon i , la fraction de microsphère adsorbée à des particules autochtone du sol F a été calculée comme suivant :

$$F = \frac{Nb\ microsphere\ B3 + Nb\ microsphere\ B4}{Nb\ microsphere\ total} \quad eq. (6)$$

Avec $Nb_{microsphèreB3}$ et $Nb_{microsphèreB4}$ correspondant respectivement aux microsphères seules et aux doublets de microsphères adsorbées à des particules autochtones et $Nb_{microsphère\ total}$, le nombre total de microsphères dénombrées dans les zones B1 à B5 (Figure IV-1c). Nous avons négligé les triplets et autres multipléts de microsphères adsorbées à des particules de sol car leur identification sur les cytogrammes est difficile et leur nombre représente une fraction négligeable du nombre total de microsphères adsorbées.

IV.2.7. Calcul du taux de rétention de microsphères

La rétention totale, R , des microsphères dans la colonne de sol, depuis le début de la pluie jusqu'au prélèvement de l'échantillon i est calculée grâce à l'équation suivante :

$$R(i) = \left(1 - \frac{\sum_i N_{eff}(i)}{N_{inj}(i)}\right) * 100 \quad eq. (7)$$

L'incertitudes sur $R(i)$ est évalué de la façon suivante :

$$\Delta R(i) = \left(\frac{\sum \Delta N_{eff}}{\sum N_{eff}(i)} + \frac{\Delta N_{inj}}{N_{inj}}\right) * R(i) \quad eq. (8)$$

Si l'on considère deux pluies successives, d'indice n et $n+1$, le pourcentage de récupération, Rec , à la pluie $n+1$ des microsphères d'une couleur particulière, introduites lors de la pluie n , est défini comme :

$$Rec(n + 1) = \left(\frac{N_{eff}(n + 1)}{N_{inj}(n)}\right) * 100 \quad eq. (9)$$

IV.3. Résultats

Les comportements hydriques de colonnes de sol non remanié durant la succession des pluies sont détaillés afin d'évaluer l'impact du temps de pause sur la répartition de l'écoulement dans les colonnes. Des indicateurs du fonctionnement hydrique (i.e. conductivité électrique et masse d'eau accumulée dans la colonne) sont également suivit afin d'évaluer quels comportements et quels mécanismes font évoluer la rétention des microsphères injectées en fonction du temps de pause. Pour finir, l'alternance des couleurs de microsphères injectées permettra d'évaluer la remobilisation de microsphères précédemment retenues dans la colonne, et le suivit

de l'état d'agrégation des microsphères à des particules autochtones du sol permettra de préciser les mécanismes à l'origine de leur rétention et remobilisation.

IV.3.1. Comportements hydriques des colonnes durant les pluies

Les hydrogrammes de drainage enregistrés se décomposent le plus souvent en trois phases (Figure IV-2a) : i) L'écoulement s'établit dans la colonne durant un court régime transitoire d'une dizaine de minute. Lorsque les premières gouttes d'eau sortent de la colonne (percée), le flux d'eau drainée augmente rapidement (il passe de 0 à 20 mm h⁻¹ en 5 minutes environ) ; ii) passé cette première phase, le flux se stabilise à un plateau proche de l'intensité de pluie appliquée sur la colonne (20 mm h⁻¹). La stabilisation du flux annonce le régime d'écoulement pseudo permanent de l'eau dans la colonne ; iii) à l'arrêt de la pluie, le flux décroît rapidement (i.e. il est divisé par 10 en 10 minutes) et devient nul en une heure en moyenne. Ce fonctionnement hydrique typique a été observé pour toutes les pluies de colonne 1, ainsi que pour les 3 dernières pluies appliquées sur la colonne 3 et les cinq dernières pluies de la colonne 2 (Figure IV-2a) et correspond à un fonctionnement principalement préférentiel.

La colonne 3 a présenté des fonctionnements hydriques variés durant les quatre premières pluies de la série (Figure IV-2c). Ces pluies ont été caractérisées par une accumulation d'eau en surface, suivie d'une vidange rapide de cette eau accumulée. La vidange est d'autant plus tardive que le temps de pause avant la pluie est grand, et elle se caractérise par une brusque augmentation du flux visible Figure IV-2c. Malgré cet effet de stockage temporaire d'eau en surface, ces hydrogrammes sont assez semblables à ceux observés pour la colonne 1, c'est à dire principalement contrôlés par des écoulements préférentiels.

La colonne 2 a eu des comportements hydriques très sensiblement différents des autres pluies durant les deux premières pluies (5h, 23h) de la série (Figure IV-2b). Ces deux premières pluies ont été caractérisées par une accumulation d'eau en surface et un flux de drainage très lent (inférieur à 7 mm h⁻¹ pour la deuxième pluie), témoignant d'une prépondérance des écoulements matriciels, malgré une percée rapide (inférieure à 10 min).

Il faut remarquer que, pour l'ensemble des pluies des colonnes, les temps de percée sont faibles même lors de phénomènes d'accumulation d'eau en surface (deux premières pluies de la colonne 2 et les quatre premières de la colonne 3). A l'arrêt de la pluie, le drainage est rapide et identique d'un événement pluvieux à l'autre pour toutes les pluies des colonnes 1, 2 et 3, excepté le drainage très lent ayant lieu pour les deux premières pluies de la colonne 2 (Figure IV-2). Cela suggère que des écoulements de types préférentiels existent dans les colonnes quel que soit le temps de pause. Vraisemblablement, ces chemins d'écoulements préférentiels de l'eau sont identiques d'une pluie sur l'autre lorsque les hydrogrammes des colonnes sont superposables.

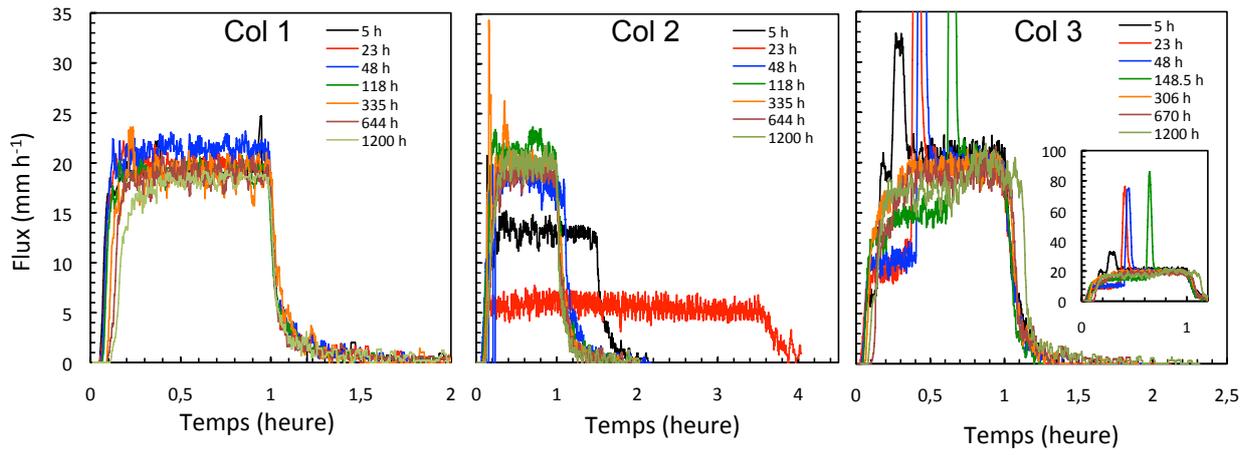


Figure IV-2 Flux d'eau drainée en fonction du temps pour les trois colonnes de sol et pour les différents temps de pause avant l'évènement pluvieux.

IV.3.2. Variation de la rétention de microsphères et de la mobilisation de particules autochtones au cours d'une pluie

L'évolution des courbes de rétention de microsphères, (R), en fonction du volume d'eau drainée cumulée (v) peut être décrit en deux phases (Figure IV-3a). La rétention des microsphères, initialement élevée juste après la percée, décroît rapidement durant les 5 à 6 premiers millimètres d'eau drainée c'est à dire jusqu'à la fin du régime transitoire de l'écoulement. Puis, dans un deuxième temps, la rétention diminue plus lentement avec la quantité d'eau drainée durant le régime pseudo-permanent. L'allure générale des courbes de rétention, (R), des microsphères pour les colonnes 2 et 3 est similaire à celle de la colonne 1 pour les pluies présentant le même type d'hydrogramme de drainage. Pour les autres pluies, on observe i) pour les quatre premières pluies de la colonne 3, une baisse brutale de la rétention des microsphères, concomitante avec la vidange rapide de l'eau accumulée en surface (i.e. augmentation du flux de drainage) (Figure IV-4a) ; ii) pour les deux premières pluies de la colonne 2, une diminution très lente et quasi monotone de la rétention de microsphères (Figure IV-4b).

En ce qui concerne les particules autochtones du sol, leur masse cumulée dans les effluents augmente rapidement durant les 3 à 4 premiers mm d'eau drainée (Figure IV-3b) qui correspondent au régime transitoire de l'écoulement. Cette augmentation rapide correspond à une concentration élevée de particules autochtones observée au début du drainage. Puis, la mobilisation se stabilise durant le régime permanent (i.e. après les 4 premiers mm d'eau drainée), quel que soit le type d'hydrogramme de drainage.

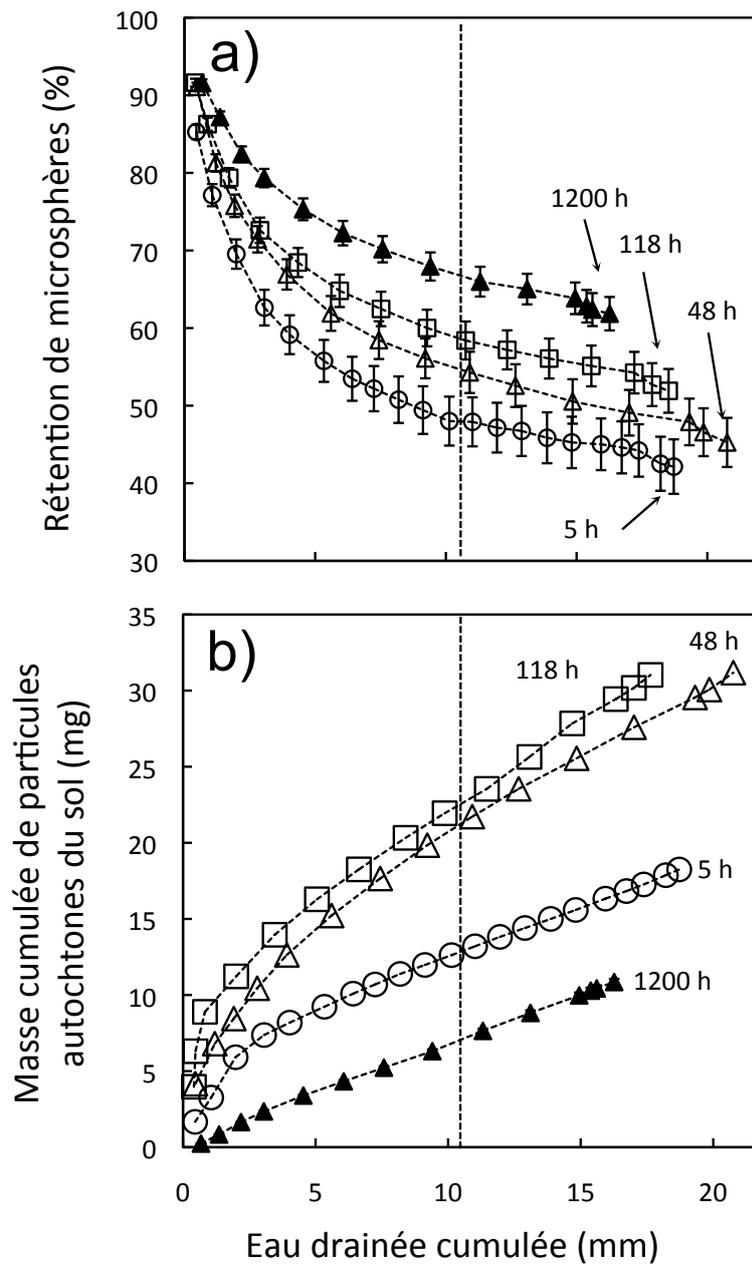


Figure IV-3 Evolution pour quatre pluies sélectionnées (colonne 1) de : a) la rétention R des microsphères injectées (%) en fonction de l'eau drainée cumulée (mm) ; b) la masse cumulée de particules autochtones du sol (g) en fonction de la masse d'eau drainée cumulée (g). Les lignes pointillées verticales matérialisent le volume d'eau drainée pour lequel les données sont présentées Figure IV-5.

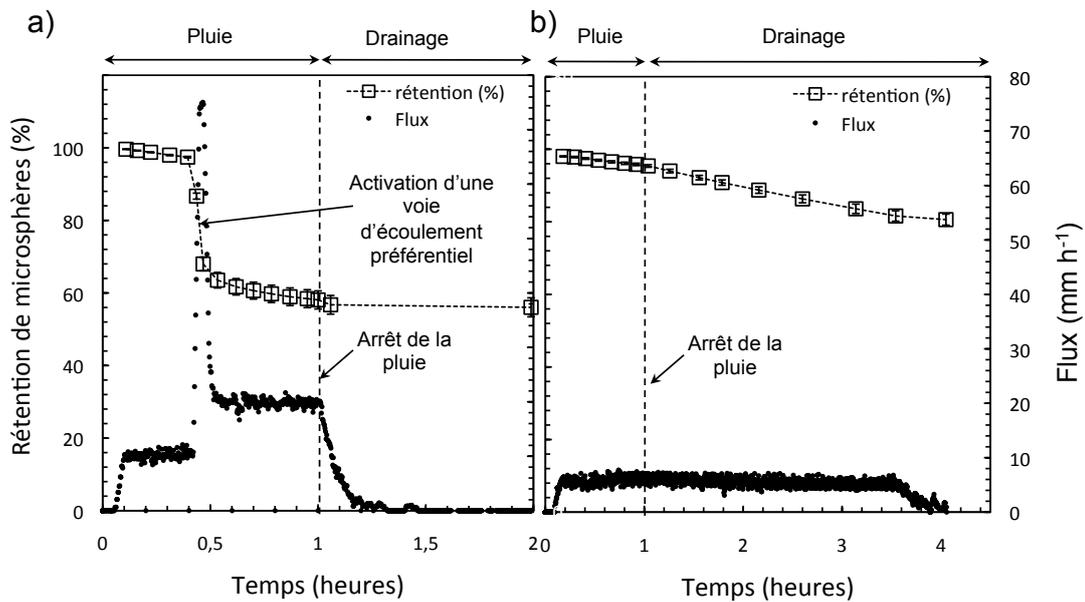


Figure IV-4 Influence du fonctionnement hydrique des colonnes sur la rétention des microsphères. a) Influence de l'activation d'une voie d'écoulement préférentiel sur l'évolution du flux et de la rétention de microsphères pour la pluie après 48h de temps de pause, colonne 3. b) Influence d'un écoulement majoritairement matriciel sur la rétention, pour la pluie après 23h de temps de pause, colonne 2.

IV.3.3. Effet du temps de pause sur la rétention des microsphères et la mobilisation de particules autochtones

La comparaison relative des courbes de rétention présentées Figure IV-3 montre que la rétention est d'autant plus forte que le temps de pause est long. Les courbes se différencient très vite au cours du régime transitoire, et la rétention diminue fortement peu après la percée.

La comparaison relative des courbes de masses cumulées de particules autochtones exportées (Figure IV-3) montre une augmentation de la mobilisation pour les trois premières courbes, puis une diminution nette pour la dernière (1200h).

Là encore, les courbes se différencient très fortement au tout début du régime transitoire.

Afin de pouvoir comparer la mobilisation de particules autochtones en fonction du temps de pause, il est nécessaire de considérer les exportations pour une même quantité d'eau drainée choisie arbitrairement à 11 mm (Figure IV-5b). La masse cumulée de particules autochtones du sol augmente jusqu'à un maximum situé entre 200 et 300 h de temps de pause (Figure IV-5b). L'évolution des valeurs de rétention (R) des microsphères est également présentée pour cette même quantité d'eau drainée pour faciliter les comparaisons entre rétention et mobilisation (Figure IV-5a). La rétention des microsphères augmente elle aussi avec le temps de pause, pour les temps de pause compris entre 5 et environ 300 h (Figure IV-5a) si l'on excepte les deux premières pluies de la colonne 2 dont le fonctionnement hydrique est particulier. Cette rétention augmente de 48 à 65 % pour la colonne 1 ; de 48 à 57 % pour la colonne 2 (si l'on ne considère pas les deux premières pluies) et de 56 à 77 % pour la colonne 3. Pour les temps de pause plus élevés (jusqu'à 1200h), la rétention des microsphères n'augmente plus aussi distinctement avec le temps de pause et fluctue autour de valeurs moyennes élevées (55, 80 et 60% pour les colonnes 1, 2 et 3 respectivement) tandis que les quantités de particules autochtones mobilisées décroissent fortement (division par 4, pour les trois colonnes).

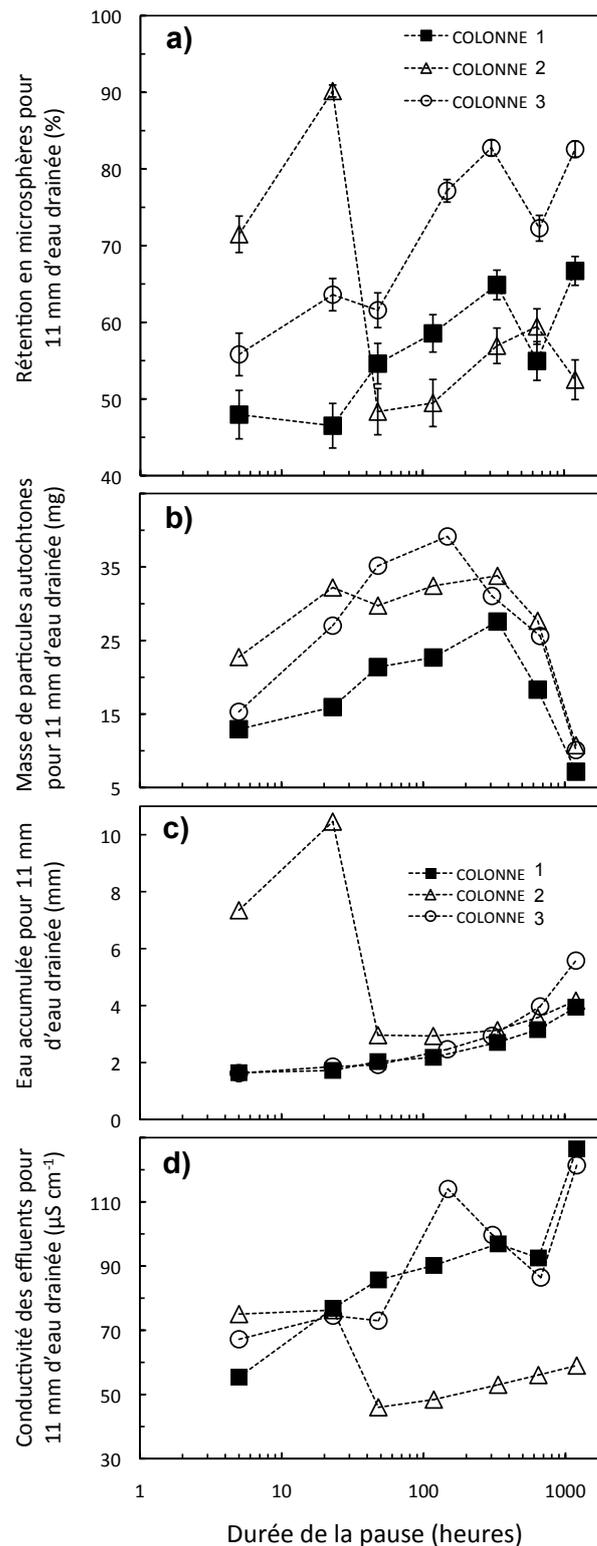


Figure IV-5 Evolution en fonction du temps de pause précédant la pluie de a) la rétention des microsphères ; b) la masse cumulée de particules autochtones du sol exportés durant la pluie ; c) la masse d'eau accumulée dans les colonnes de sol et d) la conductivité électrique des effluents (la conductivité électrique de l'eau de pluie étant d'environ $17 \mu\text{S cm}^{-1}$).

La masse d'eau accumulée dans la colonne ainsi que la conductivité électrique des effluents évoluent en fonction du temps de pause. La masse d'eau accumulée dans les colonnes pour un volume d'eau drainée de 11 mm augmente lorsque les temps de pause avant la pluie augmentent de 1,6 à 4 mm, de 3 à 4 mm et de 1,6 à 5,5 mm pour les colonnes 1, 2 et 3 respectivement (Figure IV-5c), en exceptant les deux premières pluies de la colonne 2, lors desquelles le fonctionnement hydrique a été différent. La conductivité des effluents pour 11 mm d'eau drainée augmente également en fonction des temps de pause croissants (de 55 à 130 $\mu\text{S cm}^{-1}$, de 45 à 60 $\mu\text{S cm}^{-1}$ et de 65 à 120 $\mu\text{S cm}^{-1}$ pour les colonnes 1, 2 et 3 respectivement) (Figure IV-5d), exceptées les deux premières pluies de la colonne 2 pour lesquelles les conductivités étaient plus élevées. Ces conductivités plus élevées sont cohérentes avec un transfert matriciel plus important que pour les autres pluies.

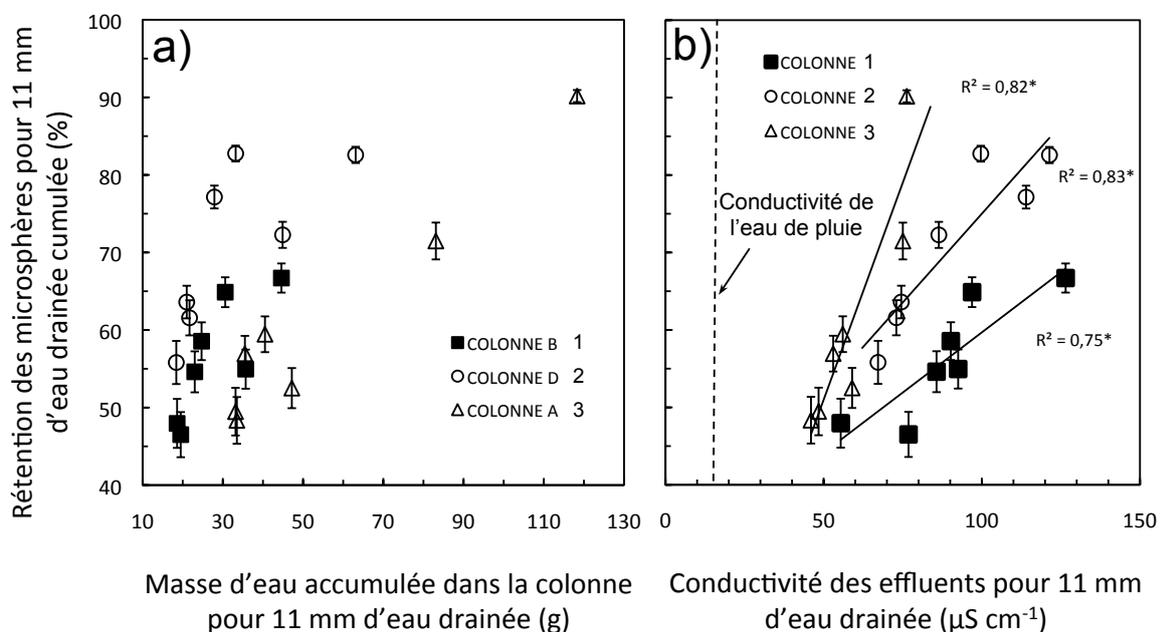


Figure IV-6 Evolution du taux de rétention de microsphères R en fonction de la quantité d'eau accumulée dans la colonne pour 11 mm d'eau drainée (A) et de la conductivité des effluents pour 11 mm d'eau drainée (B). *Significatif au niveau de probabilité 0.05.

La rétention de microsphères peut être mise en regard avec l'évolution de la masse d'eau accumulée et la conductivité des effluents (Figure IV-6) que nous venons de décrire (Figure IV-5c et d). On constate que le taux de rétention augmente avec la quantité d'eau accumulée dans les colonnes jusqu'à un maximum qui dépend de la colonne (Figure IV-6a). D'autre part, le taux de rétention est corrélé linéairement ($0,75 < r^2 < 0,83$) avec la conductivité des effluents (Figure IV-6b).

IV.3.4. Remobilisation des microsphères après leur déposition

Le protocole développé ici permet de quantifier, dans les effluents d'une pluie n+1 ou n+2, les microsphères injectées lors d'une pluie antérieure n. La remobilisation de microsphères diminue que ce soit en fonction du temps de pause précédent l'injection ou du temps de résidence des microsphères dans le sol (i.e. du temps durant lesquelles elles sont restées dans la colonne avant leur remobilisation) (Figure IV-7 et Figure IV-8). La quantité de microsphères remobilisées en fonction du temps de pause est légèrement plus importante lors des pluies n+1 que lors des pluies n+2 et varie entre 0,1 et 1,2 % du total des microsphères de cette couleur injectées lors de la pluie n (Figure IV-7).

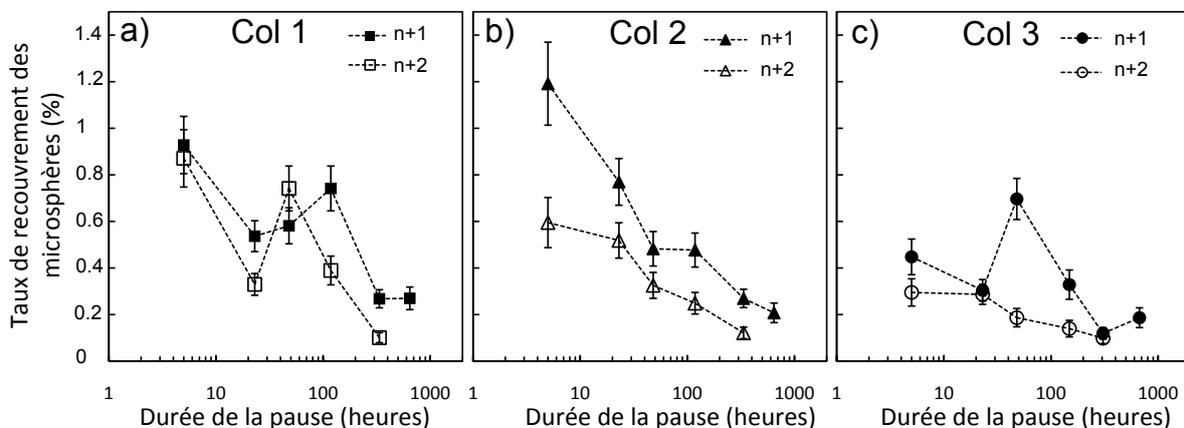


Figure IV-7 Taux de récupération, *Rec*, aux pluies n+1 et n+2 en fonction de la durée de la pause précédant l'injection (pluie n).

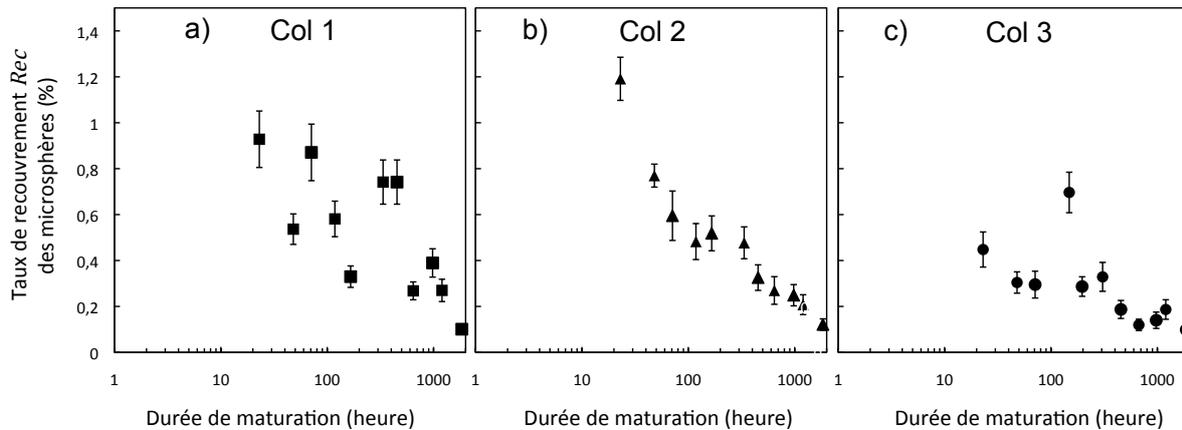


Figure IV-8 Taux de récupération, Rec , aux pluies $n+1$ et $n+2$, en fonction de la durée de maturation des microsphères dans la colonne avant leur remobilisation.

IV.3.5. Etat d'agrégation des microsphères

La proportion de microsphères agrégées à des particules naturelles du sol au cours des pluies successives est présentée Figure IV-9. Quatre à six pourcent des microsphères injectées lors de la pluie n ressortent agrégées à des particules naturelles du sol. En revanche, 18 à 26 % des microsphères retenues à la pluie n et remobilisées lors des pluies $n+1$ et $n+2$, sont agrégées à des particules naturelles du sol. Nous n'observons pas de tendances en fonction du temps de résidence ni du temps de pause précédent la pluie d'injection des microsphères dans le sol.

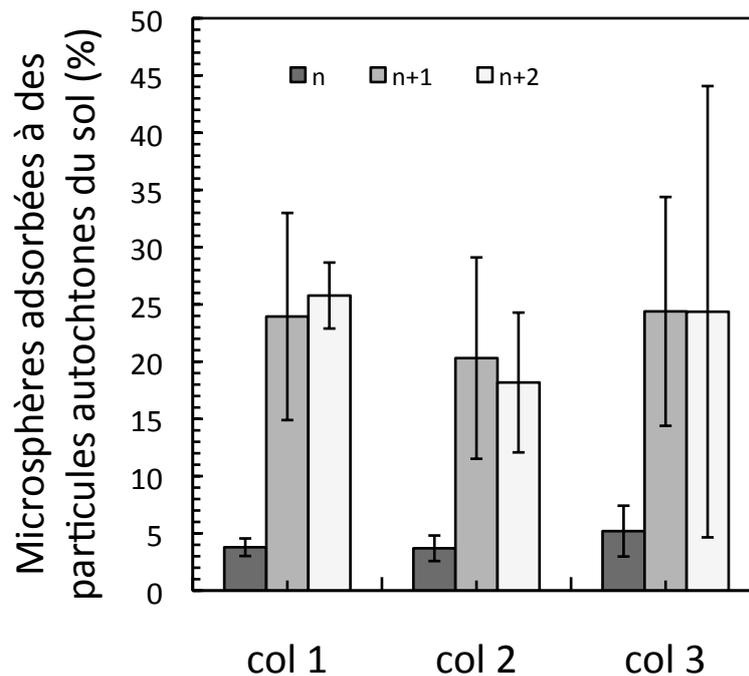


Figure IV-9 Pourcentage de microsphères adsorbées à des particules autochtones du sol et retrouvées aux pluies n , $n+1$ et $n+2$

IV.4. Discussion

Les mécanismes à l'origine de l'augmentation de la rétention des microsphères avec la durée de la pause sont discutés en nous basant sur les données issues des pluies de la colonne 1 pour lesquelles le comportement hydrique était identique au cours de l'ensemble de la série de pluies. Nous verrons ensuite comment ces mécanismes nous permettent d'interpréter le devenir des microsphères dans les autres colonnes pour lesquelles les comportements hydriques ont varié. Auparavant, nous mettrons en perspective la signification physique du temps de pause précédent une pluie avec son impact sur le fonctionnement hydrique des colonnes.

IV.4.1. Signification hydrique du temps de pause entre les pluies

A l'arrêt d'une pluie, l'eau stockée dans la porosité, que ce soit proche de la surface du sol ou dans la matrice à proximité des pores actifs, draine, s'évapore et se redistribue dans la matrice plus éloignée de ces pores (Or and Ghezzehei, 2007; Majdalani et al., 2008a; Lehmann and Or, 2009; Michel et al., 2010). La redistribution locale de l'eau, des parois des macropores vers la matrice, sous l'effet de gradients de pression capillaire peut avoir lieu dans tous les pores actifs (i.e. qui ont participé à l'écoulement) de la colonne. L'évaporation est probablement prépondérante à la surface de la colonne et dans la paroi des macropores connectés à la surface mais reste globalement faible à l'échelle de la colonne. Par conséquent, plus l'intervalle entre deux pluies est long, moins la matrice à proximité des macropores et à la surface du sol est humide.

La teneur en eau de la matrice au voisinage des macropores n'est pas accessible par des mesures globales (ex. gravimétrie) à l'échelle de la colonne (Majdalani 2008, Michel 2010). Cependant, la quantité d'eau accumulée dans la colonne au cours de la pluie suivante dépend – en plus de la géométrie du réseau poral - de l'humidité initiale des parois des pores participant à l'écoulement. Cette quantité d'eau accumulée est d'autant plus élevée que la matrice à proximité des pores est sèche au tout début de la pluie, c'est à dire que le temps de pause est élevé (Figure IV-5c). En effet, au cours d'une pluie les gradients de pression matricielle qui contrôlent l'écoulement de l'eau depuis les macropores vers la matrice à proximité des macropores (Gerke, 2006) sont d'autant plus importants que l'humidité de cette dernière est faible, c'est à dire qu'elle a séché longtemps et que l'eau s'est redistribuée loin du macropore. La masse d'eau accumulée pour 11 mm d'eau drainée peut donc être considérée comme un indicateur qualitatif de la teneur en eau de la matrice aux alentours des macropores au début d'un évènement pluvieux et pour une colonne donnée.

Le degré d'écoulement matriciel conditionne le mélange de l'eau de pluie avec la solution du sol préexistante (Jarvis et al 2007) et contrôle les variations de la conductivité des effluents observées en fonction des temps de pause (Figure IV-5d). Un écoulement davantage matriciel implique un mélange important de l'eau de pluie

avec la solution du sol préexistante. A l'inverse, lors d'une pluie survenant après une interruption courte, la matrice saturée canalisera le flux dans quelques grands macropores ne favorisant pas un mélange aussi important. Ainsi, la conductivité des effluents (Figure IV-5d) constitue un second indicateur qualitatif de la teneur en eau de la matrice à proximité des macropores au début d'un événement pluvieux, mais également du ratio entre écoulement matriciel et préférentiel.

IV.4.2. Rôle du temps de pause sur la rétention de microsphères et la mobilisation de particules autochtones.

Pour les pluies avec des temps de pause compris entre 5 et 300h, la mobilisation de particules autochtones du sol et la rétention de microsphères augmentent avec la durée de la pause. L'augmentation de la mobilisation des particules a été attribuée à un séchage croissant de la matrice de sol à proximité des pores actifs et un modèle basé sur cette hypothèse permet de reproduire cette augmentation (Majdalani et al., 2008; Michel et al., 2010, Michel et al., 2014). Les relations entre la rétention enregistrée pour ces pluies-là, et les deux indicateurs de la teneur en eau de la matrice au début de la pluie (masse d'eau accumulée et conductivité) (Figure IV-6) suggèrent que la teneur en eau de la matrice joue également un rôle dans l'augmentation de la rétention observée lorsque le temps de pause entre deux pluies augmente. Le mécanisme donnant lieu à cette augmentation est vraisemblablement lié au fait qu'au début de la pluie, la matrice proche de la surface de la colonne va stocker d'autant plus d'eau que la pause a été longue. Puis, lorsque l'écoulement préférentiel fini par s'initier, lorsque la capacité d'infiltration de la matrice à la surface du sol est dépassée, l'eau s'écoule sur la matrice constituant les parois des macropores qui est elle aussi d'autant plus sèche que la pause a été longue (Figure IV-10a et b). Une partie de cette eau, et des particules qu'elle contient est adsorbée dans cette matrice sous le contrôle des gradients de pression matricielle qui s'y exercent.

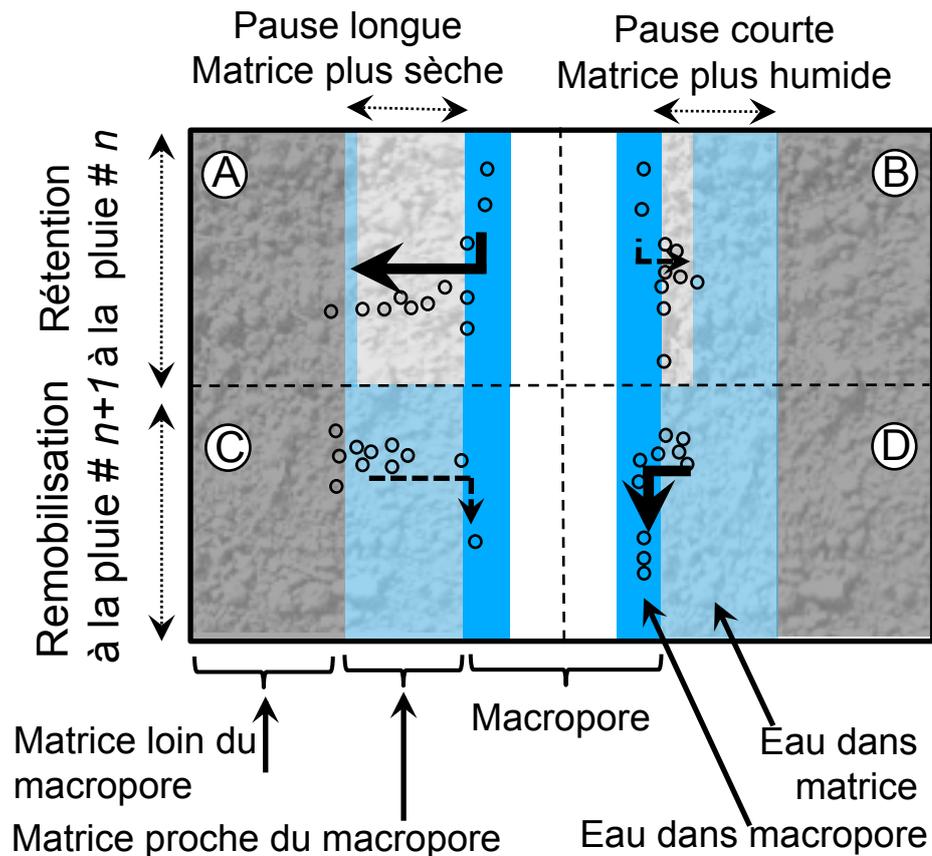


Figure IV-10 Modèle conceptuel synthétisant les principaux mécanismes impliqués dans la rétention (A et B) et le remobilisation (C et D) de particules. Les flèches indiquent les mouvements de microsphères et leur épaisseur l'intensité relative du mouvement selon les cas de figures proposés (pause longue (A et C); pause courte (B et C)).

Au cours d'une pluie n , l'eau et les particules sont vraisemblablement entraînées d'autant plus loin dans la matrice et dans un volume de matrice d'autant plus grand que l'évaporation de l'eau présente dans la matrice au voisinage des macropores à la fin de la pluie $n-1$ ou sa redistribution vers la matrice loin des macropores aura été importante, c'est à dire que la pause aura été longue (Figure IV-10a et b). Or, plus l'écoulement est matriciel, plus la probabilité des collisions entre les microsphères et les parois des pores – et donc la rétention - augmente. En effet, la surface de contact eau-sol (et donc la fréquence de collision particules-sites de dépôts) est plus grande lorsque l'eau circule dans un grand nombre de petits pores matriciels que lorsque l'eau est canalisée dans un faible nombre de

macropores (Kretzschmar et al., 1994, Jacobsen et al., 1997; Jiang et al., 2005; Seta and Karathanasis, 1997; Smith et al., 1985; White, 1985). A l'échelle de la pluie, la rétention est importante durant le régime transitoire lorsque la matrice constituant la paroi des pores actifs s'imbibe progressivement et diminue durant le régime permanent lorsque la paroi des macropores actifs se sature (i.e. lorsque les gradients de pression matricielle décroissent) (Figure IV-3a). La décroissance de la rétention au sein même d'une pluie étaye donc le mécanisme de rétention proposé précédemment.

Lorsque l'écoulement matriciel augmente avec le temps de pause, l'efficacité des collisions particules-site de dépôts augmente également. En effet, l'efficacité des collisions est contrôlée par la barrière d'énergie répulsive entre les particules et les sites de dépôts et cette barrière décroît lorsque la force ionique de la solution augmente. Or, la force ionique, estimée ici par la mesure de la conductivité des effluents, augmente en fonction des temps de pause croissant (Figure IV-6). Sans que nous puissions en mesurer quantitativement l'importance, l'augmentation de la conductivité abaisse la barrière de potentiel et augmente l'efficacité de collision particules-sites de dépôt.

L'augmentation de la rétention en fonction du temps de pause peut être discutée dans un cadre conceptuel analogue à celui de la théorie de la filtration, établie pour des milieux poreux modèles (Yao et al., 1971; Tufenkji and Elimelech, 2004), en considérant le processus de rétention contrôlé par la fréquence de collision des particules avec les sites de dépôts et par l'efficacité de ces collisions, c'est à dire la fraction de ces collisions donnant effectivement lieu à la rétention. La fréquence et efficacité des collisions sont d'autant plus importantes que l'eau s'écoule ou est stockée dans la matrice au voisinage des macropores. L'écoulement matriciel est d'autant plus important que l'eau contenue dans cette matrice à l'arrêt de la pluie précédente aura eu le temps de drainer, de s'évaporer, ou de se redistribuer loin des parois des macropores (i.e. d'autant plus important que le temps de pause entre les pluies aura été long).

La remobilisation décroissante des microsphères lorsque les temps de pause croissent (Figure IV-7) est cohérent avec le mécanisme proposé ci-dessus. Les microsphères déposées dans la matrice lors d'une pluie n sont d'autant moins remobilisées à la pluie $n+1$ qu'elles ont été déposées profondément dans la matrice

lors des grands temps de pause (Figure IV-10c et d). De plus, la redistribution capillaire de l'eau entre deux pluies, participe vraisemblablement aussi à leur pénétration dans la matrice. Ce mécanisme de redistribution capillaire de particules a été récemment observé par (Wang et al., 2013) et (Ibrahim and Burras, 2012) qui suggèrent respectivement que la répartition de bio-colloïdes (*Escherischa coli*) au sein d'agrégats de sol et le mouvement vertical ascendant de particules d'argiles dans des colonnes de sable sont causées par des mouvements capillaires de l'eau. D'autre part, il est également vraisemblable que le temps de résidence croissant des microsphères dans la colonne de sol permet de multiplier les interactions microsphères-sites de dépôt. En effet, des phénomènes de vieillissement i.e. transition de phase, gélation, polymérisation, clustering et solidification au sens large (Weaver and Feke, 1985; Dawson, 2002; Lu et al., 2008) peuvent renforcer les liaisons microsphères-sites de dépôt au cours du temps et limiter de ce fait leur remobilisation.

La fraction de microsphères adsorbées sur des particules autochtones du sol ne varie pas avec le temps de résidence des microsphères dans la colonne ou la durée de la pause avant injection (Figure IV-9). Ceci suggère qu'un seul cycle de mouillage puis de séchage, drainage et redistribution de l'eau d'une durée inférieure ou égale à 5h est suffisant pour que l'adsorption des microsphères sur les constituants du sol permet d'observer du co-transport microsphères-particules autochtones. Si 4 à 5 % des microsphères non retenues dans le sol durant une pluie n sont retrouvées adsorbées à des particules autochtones du sol, il est néanmoins remarquable que seulement 20% des microsphères remobilisées le soient (Figure IV-9). C'est à notre connaissance, la première fois que le co-transport microsphères-particules autochtones du sol est quantifié. Nous n'avons cependant pas de moyen d'évaluer la justesse de cette quantification. Certaines microsphères pourraient être adsorbées à des particules autochtones du sol sans changer significativement la diffusion de lumière à 90° (SSC-A) des événements mesurés. Notre quantification de 20% constituerait alors une borne inférieure de la fraction des microsphères remobilisées agrégées à des particules autochtones du sol. Même si ce chiffre peut être entaché d'un biais méthodologique, ce résultat est cohérent avec ceux de De Jonge et al., (2000) qui ont montré que seulement 1 % du glyphosate injecté avec l'eau de pluie était retrouvé adsorbé à des particules naturelles du sol dans les

effluents d'une colonne de sol non remanié et seulement 27 % lorsqu'il était appliqué à la surface du sol 96 h avant la pluie, pour un sol sablo-limoneux. Ces résultats peuvent s'expliquer par le fait que les particules, au même titre que le glyphosate, sont retenues dans le sol mais vraisemblablement pas totalement adsorbées sur les constituants du sol. Une rétention aux interfaces eau-air et eau-air-solide proposée par divers auteurs (Wan and Wilson, 1994; Saiers and Lenhart, 2003; Crist et al., 2005; Zhuang et al., 2007; Sang et al., 2013), suivie d'un 'flush' lors du passage d'un nouveau front d'infiltration pourrait expliquer le faible taux de co-transport, soulignant que la rétention est un processus multi-mécanismes.

IV.4.3. Rôle du fonctionnement hydrique des colonnes sur la rétention de microsphères

La variabilité des fonctionnements hydriques, observée sur les colonnes 2 et 3, n'est pas une exception pour des colonnes de sol non remanié (Cornu et al., 2014). Les changements de fonctionnement hydrique pour certaines pluies de ces deux colonnes sont attribués à des variations du partage de l'écoulement (préférentiel vs. matriciel) et mettent en lumière l'importance de la surface de contact eau-sol sur la rétention des microsphères. Ces variations des chemins d'écoulement permettent d'étayer le mécanisme de rétention dans la matrice au voisinage des macropores proposé précédemment.

Lors des quatre premiers évènements pluvieux de la colonne 3, une vidange rapide de l'eau accumulée en surface, (Figure IV-2), (i.e. une augmentation brusque de la fraction d'eau s'écoulant dans la macroporosité) coïncide avec une baisse quasi immédiate de la rétention en microsphères (Figure IV-4a) que nous expliquons par une baisse brutale de la surface de contact eau-sol dans la voie d'écoulement préférentielle.

Malgré ce changement ponctuel de fonctionnement hydrique, on retrouve pour la colonne 3 une variation de la rétention (Figure IV-5a) et de la quantité d'eau accumulée avec le temps de pause (Figure IV-5c) similaires à celles constatées sur

la colonne 1. Les hydrogrammes de ces quatre premières pluies, malgré ce changement temporaire du fonctionnement hydrique sont très similaires aux autres hydrogrammes de la colonne 1 et 3, expliquant de ce fait le faible impact sur la tendance globale d'accumulation d'eau et de rétention de microsphères dans la colonne.

En revanche pour la colonne 2, une augmentation des quantités d'eau accumulée dans la colonne, de la conductivité et un étalement du flux sur les hydrogrammes de drainage sont observés lors des deux premières pluies (Figure IV-4b), et sont attribués à un fonctionnement hydrique matriciel qui perdure durant la totalité de ces deux événements pluvieux (Figure IV-2). Comme déjà montrée dans la littérature (Smith et al., 1985) pour des bactéries, une rétention massive de microsphères est observée lors de ces infiltrations lentes et matricielles (comparativement aux autres pluies de cette colonne 2 et pour un même volume d'eau drainée). L'écoulement de l'eau essentiellement matriciel lors de ces deux pluies influe plus sur la rétention de microsphères que les variations de teneur en eau initiale consécutives des temps de séchage compris entre 1 et 1200h. Lorsque – pour une raison non identifiée - un fonctionnement hydrique préférentiel est recouvert (événements pluvieux 3 et suivants) l'influence de la durée de la pause sur la rétention redevient apparente.

Ainsi, si la durée de la pause entre deux pluies peut expliquer jusqu'à 27% de la rétention en présence d'écoulements préférentiels, cet effet est de second ordre sur la rétention lorsque l'écoulement est essentiellement matriciel. Ce dernier explique alors jusqu'à 90% de la rétention.

IV.4.4. Rétention et mobilisation pour de grands temps de pause

Nous avons jusqu'ici décrit les mécanismes que nous supposons à l'origine de l'augmentation concomitante de la rétention et de la mobilisation jusqu'à environ 300h de temps de pause. Pour des pauses supérieures à 300 heures, la décroissance de la mobilisation de particules autochtones a été expliquée par le

développement de force de Van der Waals lors de l'amincissement des films d'eau (Sirivithayapakorn and Keller, 2003; Chen and Flury, 2005), et par la précipitation de minéraux et de sels causée par la concentration de la solution du sol (Santamarina, 2003). Le ralentissement de la rétention apparaît vers 300h et coïncide avec la décroissance de la mobilisation de particules autochtones. Il est probable qu'à partir de ces temps de pause, les quantités d'eau perdues par la matrice au voisinage des macropores par évaporation et redistribution deviennent faibles et n'affectent plus significativement les quantités d'eau adsorbées par la matrice (et donc la rétention) lors de la reprise de la pluie. Les fluctuations de la rétention pour ces grands temps de pause seraient alors causées par des variations locales des chemins de l'écoulement.

IV.5. Conclusion

Cette étude a permis de quantifier l'impact non négligeable de la chronologie des événements pluvieux sur la rétention de particules (elle peut expliquer jusqu'à 27% des variations de la rétention), permettant ainsi d'approfondir la compréhension globale et la hiérarchisation des processus de rétention de particules dans les sols structurés et insaturés.

La rétention des microsphères est d'autant plus importante que l'eau est absorbée dans la matrice au voisinage des macropores. Cette absorption matricielle se produit d'avantage quand la matrice est plus sèche, lors des longues interruptions entre deux pluies. À la lumière de ces résultats, la prise en considération de la teneur en eau initiale de la colonne et la chronologie des pluies sera nécessaire à l'interprétation et à la conception de futures expérimentations destinées à explorer les mécanismes de rétention de particules. Cependant, les variations de teneur en eau initiale (i.e. séchage et de redistribution locale de l'eau à proximité des macropores actifs) consécutives à un temps de pause de 5 à 1200h ne couvrent pas l'ensemble des variations de teneur en eau des sols observées dans l'environnement. Des études complémentaires élargissant ces gammes de teneur en eau initiale permettraient d'élargir la portée environnementale de cette étude.

La chronologie des évènements ne permet d'expliquer qu'une part (jusqu'à 27 %) des mécanismes de rétention. La rétention dans son ensemble intègre donc d'autres mécanismes dans les sols structurés et insaturés, liés vraisemblablement à la physico-chimie de la solution du sol, à des mécanismes physiques de rétention aux interfaces eau-air et particulièrement liés à l'influence de la structure du sol sur l'écoulement. Une hiérarchisation de ces mécanismes est esquissée dans cette étude, car on observe la prédominance du partage de l'écoulement (préférentiels vs. matriciel) sur les autres mécanismes dépendant des variations du temps de pause. Les efforts de recherche futurs concernant la rétention de particules en sol non remanié devraient viser à comprendre l'effet de la structure du sol sur le partage entre écoulement préférentiel et écoulement matriciel et ses conséquences quantitatives sur la rétention.

Cette étude suggère que des évènements pluvieux espacés sur des sols secs pourraient favoriser la rétention des particules. S'il est difficile de quantifier l'impact de ce mécanisme sur le processus global de lessivage dans le cas d'un changement climatique, cette étude renforce l'idée que des évènements extrêmes (de type orages sur sol secs) sont importants dans le développement du lessivage. D'autre part, l'étude que nous avons menée a des implications dans la modélisation des mécanismes de rétention de particules dans les sols. Inclure l'effet de la teneur en eau dans des modèles existants suppose d'utiliser des modèles à double perméabilité-porosité prenant en compte un échange d'eau macroprores-matrice. Nos résultats suggèrent que le compartiment « matrice » pourrait être considéré comme un puits pour les particules (pas de transport).

Malgré un comportement de type « puit » dans la matrice, une remobilisation est possible, le risque étant le plus élevé lorsque la rétention a lieu sur un sol humide et qu'un nouvel évènement pluvieux a lieu peu de temps après, c'est à dire lors de successions de pluies assez rapprochées les unes des autres. Cela peut poser problème lors de la recharge de nappes à travers le sol par exemple, lors d'irrigation répétée avec des eaux usées peu ou pas épurée – et donc contenant des particules biotiques potentiellement pathogènes (DeNovio et al., 2004).

D'un point de vue méthodologique, la cytométrie de flux s'est avérée être une technique de choix pour (i) dénombrer précisément différentes populations de particules fluorescentes présentes simultanément dans les effluents d'une colonne

de sol et (ii) évaluer la fraction de ces particules fluorescentes adsorbées à des particules naturelles du sol. Cela a permis d'obtenir des informations concernant la remobilisation de microsphères précédemment retenues ainsi que leur adsorption à des particules naturelles du sol, informations qui ont été utiles pour étayer les mécanismes de rétention proposés.